

平成26年度  
災害環境研究成果報告書

第2編

環境回復研究1

—放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発—

平成27年9月

国立研究開発法人国立環境研究所



## 第2編 環境回復研究1

### -放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発-

<b>1. 処理プロセスでの制御技術システムの開発・評価</b> .....	1
1.1 熱挙動メカニズムの解明.....	1
1.1.1 熱処理シミュレーターの開発.....	1
1.1.2 汚染バイオマスの熱処理挙動.....	19
1.2 洗浄・水処理技術.....	29
1.2.1 飛灰洗浄技術の開発・評価.....	29
1.2.2 浸出水処理技術の開発・評価.....	33
1.3 不燃系減容化技術.....	37
1.3.1 汚染コンクリートの放射性Cs浸透深さ解析と除染 .....	37
1.3.2 コンクリートの汚染の作用機構.....	53
1.3.3 不燃系減容化技術のまとめ.....	56
1.4 コンクリート技術適用.....	57
1.4.1 はじめに.....	57
1.4.2 放射性Csに汚染した焼却飛灰を鉄筋コンクリート製遮断型最終処分場において 処分する際に考えるべき事項.....	57
1.4.3 高濃度塩水に対する抑制対策.....	59
1.4.4 アルカリ骨材反応抑制対策.....	127
1.4.5 コンクリートへのCs吸着と移動.....	138
1.4.6 コンクリートピットの竣工検査と透気係数測定.....	201
1.4.7 コンクリート技術適用のまとめ.....	210
1.5 保管・貯蔵・最終処分技術.....	214
1.5.1 埋立等の設計に向けた条件パラメーターの設定に関する研究.....	214
<b>2. 処理施設の長期管理等技術の確立</b> .....	220
2.1 焼却施設等の長期的な維持管理・廃止撤去手法の確立.....	220
2.1.1 耐火物中の放射性Csの浸透・脱離挙動の解明.....	220
<b>3. フローストックモデルの構築、測定モニタリング技術等の確立</b> .....	224
3.1 フローストックのリスク評価と管理システム開発.....	224
3.1.1 放射性物質に汚染された廃棄物等のマテリアルフローの把握.....	224
3.1.2 人口圏における放射性物質のフロー・ストックモデルの作成.....	227
3.1.3 中間貯蔵施設への汚染土壌等ロジスティックシステムの構築と評価.....	236
3.2 測定モニタリング管理手法開発.....	239

3.2.1	被災建築物解体に係る放射線・放射能の調査.....	239
3.2.2	福島市における大気降下物等環境試料における放射性物質等の分析.....	273
3.2.3	焼却灰等に含まれる放射性ストロンチウム等他核種の評価.....	291
3.3	リスクコミュニケーション社会開発.....	299
3.3.1	指定廃棄物処分場の立地問題に関する一考察～東日本大震災後の廃棄物処理施設の 立地問題に関する一考察～仮置場の立地を例として～.....	299
3.3.2	情報源と信頼度からみるリスクコミュニケーションの課題.....	308

## 1. 処理プロセスでの制御技術システムの開発・評価

### 1.1 熱挙動メカニズムの解明

#### 1.1.1 熱処理シミュレーターの開発

##### (1)はじめに

放射性セシウム (Cs) で汚染された都市ごみ<sup>14</sup>、下水汚泥<sup>5-7</sup>、農業副産物 (草木バイオマス)<sup>8-10</sup>等を焼却処理すると放射性 Cs は焼却灰に濃縮されるため、焼却灰中の放射性 Cs の濃度と灰からの溶出特性は、汚染廃棄物と灰の適正処理を考える上で重要であり、各機関の調査<sup>8-10</sup>より、主灰 - 飛灰間の分配や溶出率は燃やすものの種類および炉の形式によって異なることが明らかになっている。元素の溶出特性はその焼却灰中の物理・化学的形態によって変化するが、ごみや汚泥の焼却灰中の Cs は放射性 Cs と安定 Cs とをあわせても微量であるため、その形態の分析は特に安定 Cs を添加した焼却試験などを行わない限り難しい。また Cs (放射性、安定とも) の挙動は同じアルカリ金属であるナトリウム (Na)、カリウム (K) の挙動から類推できるが、Cs と Na、K の挙動や化学形態が全く同じという保障はなかった。本研究ではごみの焼却時の Cs の挙動を推定するために、マルチゾーンの熱力学平衡計算 (以下、マルチゾーン計算) を用いて都市ごみの焼却処理プロセスにおける灰分の変化を計算した。ごみに多く含まれる元素の挙動を解析し、既往の焼却灰の分析結果と比較して計算の妥当性を評価するとともに、ごみ焼却における Cs の挙動、特に炉の形式や運転温度による影響について考察した。なお、放射性 Cs は安定 Cs と混在していると考えられるため、以下の解析では安定 Cs の濃度を用いて安定 Cs の挙動を計算している。

##### (2)計算方法

###### 1)計算の概要

マルチゾーン計算とは、焼却施設における重金属の挙動を把握するために Ginsberg らが提案したモデル<sup>11</sup>であり、廃棄物が焼却施設に投入されてから焼却残渣となって搬出されるまでを計算対象として、焼却施設を焼却炉、二次燃焼炉、排ガス冷却装置等の温度の異なる複数のゾーンに分割して各ゾーンにおける化合物組成を計算することで、各ゾーンにおける無機元素の変化を逐次推定するというものである。

廃棄物の焼却・熱処理の方式には様々なものがある<sup>12</sup>が、どの方式においても廃棄物は炉に供給され、乾燥・熱分解・燃焼されたのちに、残渣として燃え殻 (主灰) もしくは不燃物が炉底部より取り出される。一方で排ガスは冷却され、酸性ガスの中和や水銀、ダイオキシン等の有害物質の除去など大気汚染防止のための処置を施したのちに、排ガスから凝結した固体 (ばいじん、ばい煙) を集じん器によって除去し、状況に応じてさらに排ガスの処理をしたのちに煙突から放出される。そこで除去された固体は飛灰と呼ばれる。焼却炉の温度はストーカ炉の場合 850 から 1000°C 程度 (炉出口ガスの温度) であり、焼却主灰の分析において灰分にガラス相が見つかるなど、炉内における灰分の部分的熔融の痕跡が報告されている。また二次燃焼室から集じん器にかけての温度 (バグフィルタの温度は通常 170-200°C 程度) では無機塩の蒸気圧が大幅に低下するため、無機塩は大部分が凝結して固体結晶となる。これらの現象を表し、放射性物質が焼却残渣および施設内のどの箇所にどのような形態で分配されるのかを推定するためには、炉内における

灰化と熔融相の生成・固体の晶析および、冷却段階における排ガス中の無機塩の凝結を取り入れたモデルが必要である。以上より、本計算のゾーン分割を図 1.1-1 のように設定した。

炉内で固体が燃焼する部分は、実際の炉に合わせて乾燥・熱分解・燃焼・おき燃焼ゾーンに分割し、それぞれに燃焼用空気が送られるとした。各ゾーンでは変換率 ( $R_c$ ) を設定した。また火格子上から二次燃焼炉へ火炎やガスの流れによって灰や未燃固体が巻き上げられるため、燃焼ゾーンから二次燃焼炉への固体の混入率 ( $\phi$ ) を設定した。ゾーンの設定温度は、実際の都市ごみ焼却炉の運転条件を参考に決定した。 $\phi$  については、一般廃棄物の主灰と飛灰の発生量と元素組成データ<sup>13,14</sup>から揮発しない元素 Si, Al の飛灰への移行率を計算し (式(1))、 $\phi$  は 15% とした。

$$\phi = \text{不揮発性元素の移行率} = \frac{(\text{飛灰中の濃度}) \times (\text{飛灰発生量})}{(\text{主灰中の濃度}) \times (\text{主灰発生量}) + (\text{飛灰中の濃度}) \times (\text{飛灰発生量})} \quad (1)$$

炉内で灰分が熔融して固化する過程は、図 1.1-1 の下図に示すように、燃焼ゾーンをサブゾーンに分割して、はじめに火格子上の固体の推定最高温度において平衡計算を行った後、生成物のうち熔融相と気相の一部と燃焼用ガスの組成を合わせたものを次ゾーンへ送り、前ゾーンより温度を下げた条件で再び平衡計算を行う、という操作をゾーンの温度が 800°C (仮値) になるまで繰り返し行った。この熔融 - 晶析の計算で生成した全ての結晶相 (ただし、二次燃焼ゾーンへの混入分を差し引く) に、最後のゾーンで残った熔融相 (冷却されたときに非晶質相となると仮定) を合わせたものを焼却主灰とした。固体の最高温度は 1000-1200°C の範囲で変化させた。

排ガスの冷却過程では、ボイラー、減温塔のゾーンにおいて気相、液相ごとに平衡計算を行い、冷却時の反応と凝縮・凝結過程を表現した。固体は変化しないとした。各ゾーンの変換率 ( $R_c$ ) は飛灰の組成が実測と合うように設定した。なおボイラー灰、減温塔灰の発生量は主灰、飛灰に比べると微量であり、析出物のうちボイラー灰、減温塔灰に含まれる割合を 1% (仮値) とした。

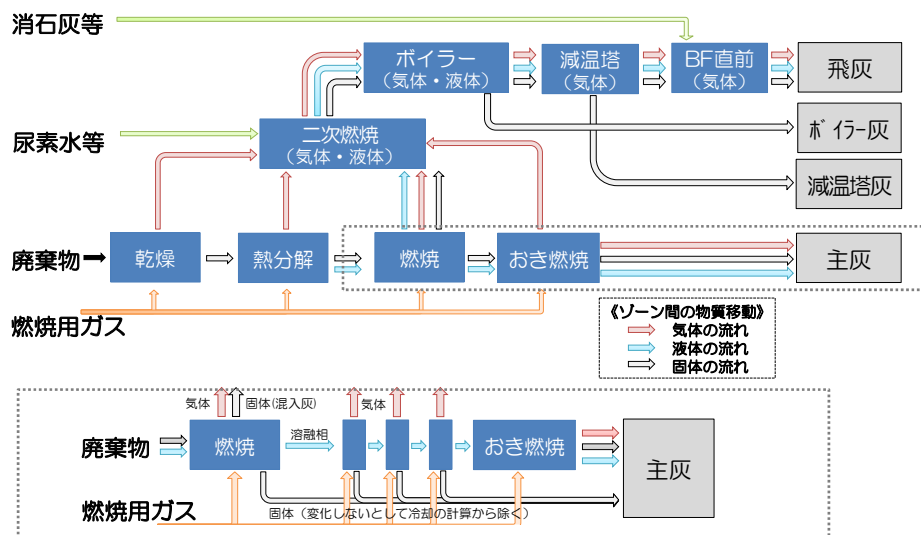


図 1.1-1 ストーカ式焼却炉のモデル (上: 全体図、下: 燃焼ゾーン拡大図)

マルチゾーン計算の設定パラメータを図 1.1-2 に示す。ストーカ炉の形式の違いを表すため、ガスの流れを二通り計算した。図 1.1-2(a) は火格子から導入された排ガスが二次燃焼炉へすぐに移行するとした場合の物質の流れを示したものであり、図 1.1-2(b) は、燃焼室のガスがおき燃焼ゾーンを通過してから二次燃焼炉へ移行するとした場合の設定である。ゾーン間の各相の移行率は仮値で

ある。燃焼ゾーンの最高温度（図(a),図(b)の下段左から3つめのゾーンの温度）はカリウム（K）の主灰-飛灰間分配率が最近の焼却施設における元素の分配挙動の調査結果<sup>13</sup>と合うように1100℃（仮値）とした。燃焼ゾーンでは主灰中のSi,Alの非晶質相と結晶相の割合が既往の報告と合うように溶融相が固化する段階である1000~800℃のゾーンの変換率を0.5, 0.2, 0.2（仮値）とした。排ガスラインのボイラー部（650℃とした）と減温塔もしくは節炭器（450℃）の段階での変換率は、実際の飛灰の組成を表すために暫定的に0.1とした。ボイラー灰、減温塔灰の発生量は主灰、飛灰に比べると微量であり、析出物のうちボイラー灰、減温塔灰となるものの割合を1%（仮値）とした。

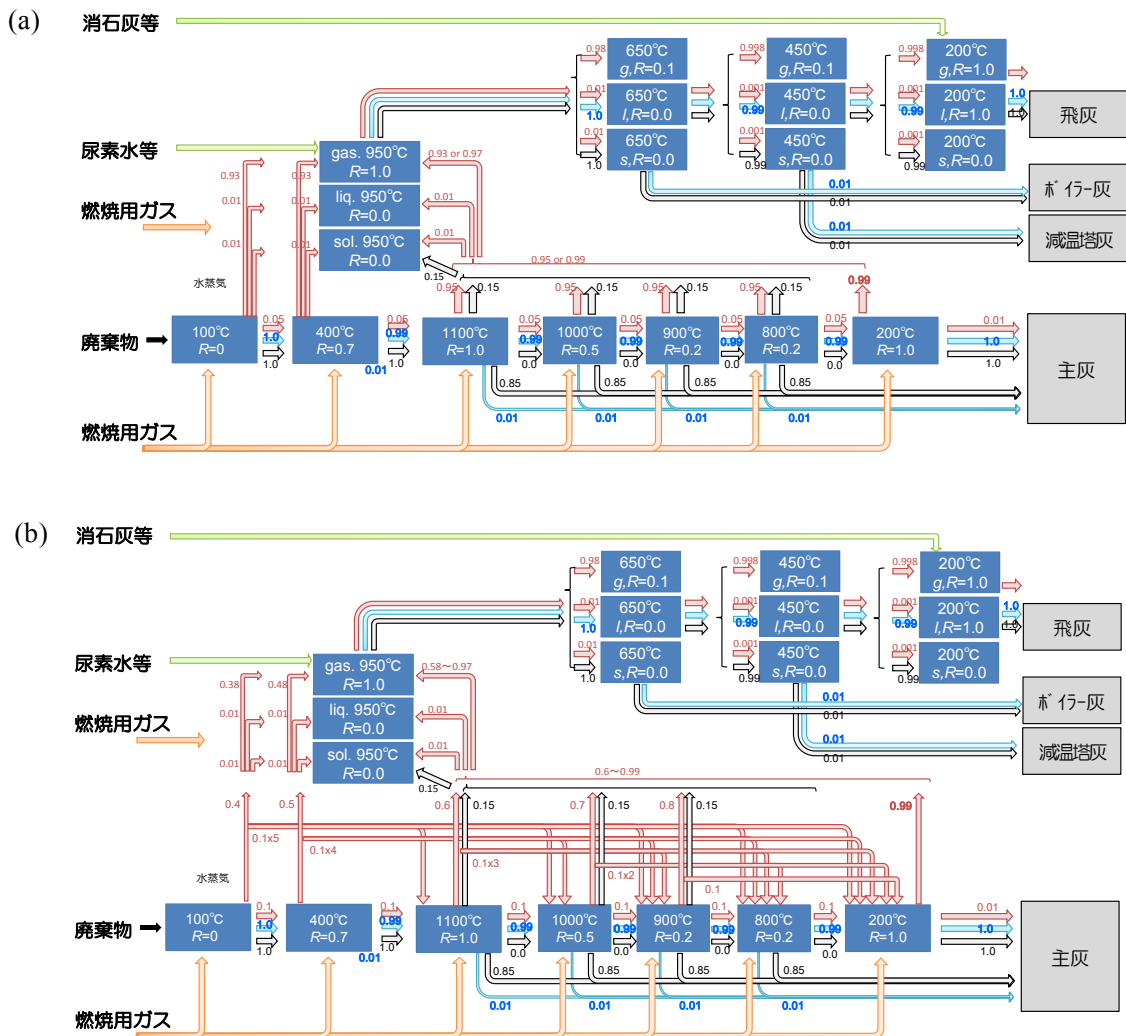


図 1.1-2 マルチゾーン計算の設定パラメータ

(a) 燃焼室のガスが焼却炉内で滞留せずに二次燃焼炉へ移行するとした場合の物質の流れ、(b) 燃焼室のガスがおき燃焼ゾーンを通過してから二次燃焼炉へ移行するとした場合の物質の流れ

## 2) 計算プログラム

本計算では、市販の熱力学平衡計算ソフト FactSage<sup>15</sup> (ver 6.3.1, GTT- Technologies) に含まれる純物質および溶体の熱力学データベースを用いて、Microsoft Excel 上で熱力学平衡計算を行う

ための市販のアドイン ChemSheet<sup>16</sup> (VTT-Technologies) を組み込んだ Excel 上で、化合物ごとのゾーン間移行挙動の記述と各ゾーンにおける平衡組成の計算を行った。

### 3) 熱力学データベース

熱力学平衡計算とは、系を構成する各化合物の Gibbs エネルギーを用いて系の全自由エネルギー  $G^{\text{tot}}$  が極小となる組成をラグランジェの未定係数法にて求めるというものであり、ごみや空気や添加薬剤の組成と、生成する可能性のある化合物の Gibbs エネルギーが必要である。焼却施設では熱処理と冷却の過程において、廃棄物中の元素を含む気体、液体、固体の純物質に加えて、金属酸化物の熔融相と鉱物の固溶体相、塩化物、水酸化物、硫酸塩の熔融塩と固溶体相の生成が予想される。熱力学データは主として FactSage (ver 6.3.1) のデータベースを用い、純物質の気・液・固相、無機塩の固溶体と熔融塩、金属酸化物の熔融相を計算に含めた。放射性 Cs の化合物の熱力学データは見つからなかったが、放射性 Cs と安定 Cs は焼却処理において同じように変化すると考えられるため、放射性 Cs の化合物の熱的性質は安定 Cs のものと同じと仮定した。データベースに含まれないもしくはデータが最新でない安定 Cs の化合物の熱力学データ (標準生成エンタルピー、エントロピー、比熱の温度依存性の式) は、文献値<sup>17-22</sup> または経験的推算式<sup>23,24</sup> による推定値を用いた。計算に追加した熱力学データを表 1.1-1 に示す。(シリケートは文献値<sup>17</sup> をそのまま用いたため除く) ここで、pollucite( $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$ )は leucite と焼却の温度では同じ結晶構造をもち、互いに固溶することが知られるため<sup>25</sup>、pollucite と leucite が理想溶体として固溶するとして計算した。また、Cs の化合物の金属酸化物熔融相への溶解性や活量係数のデータが見つからなかったため、活量係数の値はいくつか変化させて計算した。

表 1.1-1 Cs 化合物の熱力学データとその出典

Name	$-\Delta_f H_{298} /$ $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	$S_{298} /$ $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	$C_p / \text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	Range of $T$ / K	Ref
$\text{Cs}_{0.84}\text{Na}_{0.11}\text{Al}_{0.88}$ $\text{Si}_{2.10}\text{O}_6\cdot 0.17\text{H}_2\text{O}$	(s) 3090	197	$131.37+0.18197 T - 1184000 T^{-2}$	298-500	18
$\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$	(s) 3083.4	208.2	$206.79+0.044631 T - 4200000 T^{-2}$ *	298-1200	19,23,24 <sup>a</sup>
$\text{CsAlSiO}_4$	(s) 2121	159.4	$114.956+0.032678 T - 294000 T^{-2}$ *	298-1200	20,23,24 <sup>a</sup>
$\text{Cs}_2\text{O}$	(s) 345.96	146.83	$65.89 + 0.033856T - 2.4942 \cdot 10^{-7} T^2$	298-1200	21,22 <sup>b</sup>
	(l) 329.93	159.61	104.604	298-3000	
	(g) 158.81	317.97	$47.1676 + 0.0314118T - 2.51427 \cdot 10^{-5} T^2$ $54.9665 + 0.004639435T - 1.82085 \cdot 10^{-6} T^2$ $57.4276 + 0.000532112T - 9.97728 \cdot 10^{-9} T^2$	298-600 600-1400 1400-300	

<sup>a</sup>  $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6, \text{CsAlSiO}_4$  の標準状態量は文献値<sup>19,20</sup>、比熱は経験的推算式<sup>23,24</sup> で推算した。比熱の推算に必要な 298 K の比熱は  $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$  は文献値<sup>19</sup>、 $\text{CsAlSiO}_4$  は Neumann-Kopp 則による推算値を用いた。同じく推算に必要な融点は  $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$  の融点は 1900°C 以上<sup>26</sup> とされるため 1900°C (仮値) とした。 $\text{CsAlSiO}_4$  は 1000°C まで安定<sup>27</sup> とするものと pollucite に変化する<sup>28</sup> とするものがあり、 $\text{KAlSiO}_4$  の融点 (1759°C<sup>29</sup>) から類推して 1800°C (仮値) とした。



<sup>b</sup> 標準状態で安定な相以外の相の  $\Delta_f H_{i,298}$ ,  $S_{i,298}$  (平衡計算で用いるための仮想的標準状態量) は、以下のように計算した。  $T_r$ ,  $\Delta H_{tr}$  は相  $\alpha$  から相  $\beta$  への相変化の温度とエンタルピー変化である。

$$\Delta_f H_\beta(T^\circ) = \Delta H_{tr} + \Delta_f H_\alpha(T^\circ) + \int_{T^\circ}^{T_{tr}} (C_{p,\alpha} - C_{p,\beta}) dT, \quad S_\beta(T^\circ) = \frac{\Delta H_{tr}}{T_{tr}} + S_\alpha(T^\circ) + \int_{T^\circ}^{T_{tr}} \left( \frac{C_{p,\alpha} - C_{p,\beta}}{T} \right) dT$$

#### 4) 被焼却物の組成

計算に必要なごみの組成は、ごみの元素分析値もしくは、焼却灰の組成と焼却灰の発生量から算出した。本計算に用いたごみの組成と計算式を表 1.1-2 に示す。Cs は安定 Cs の分析値である。

$$(\text{ごみ中の元素組成}) = \frac{(\text{主灰中の濃度}) \times (\text{主灰の発生量}) + (\text{飛灰中の濃度}) \times (\text{飛灰の発生量})}{\text{ごみの処理量}} \quad (2)$$

表 1.1-2 都市ごみ 1 kg に対する元素組成 (mass%)

H <sub>2</sub> O	C	H	O	N	S	Cl	P
46.4	24.2	3.87	18.1	0.407	0.0403	0.632	0.0314
Al	Si	Fe	Ca	Mg	Na	K	Cs
0.367	1.05	0.190	0.765	0.0921	0.169	0.164	4.0·10 <sup>-7</sup>

### (3) 結果と考察

#### 1) シングルゾーン平衡計算

マルチゾーン計算の予備計算として、表 1.1-2 の組成で通常の平衡計算を行った。空気比は 1.5 とした。主な結晶相・熔融相を図 1.1-3 に、アルカリ金属の計算結果を図 1.1-4 に示す。以下では、安定 Cs と放射性 Cs をあわせたものを Cs と表す。900°C 以下では酸化鉄と各種シリケート、アルミノシリケートが安定相であるが、1000°C 前後から酸化物の熔融相が生成した。現実のごみの組成は均一でないことから、計算で得られた熔融開始温度は目安と捉えるのが正しいが、ごみに含まれる灰分の一部が焼却炉内で熔融することは熱力学的には可能である。

アルカリ金属は低温ではシリケートやアルミノシリケート結晶相または気体の塩化物として存在し、酸化物熔融相が生成する温度では熔融相に一部溶解した形と気体状の塩化物、水酸化物が

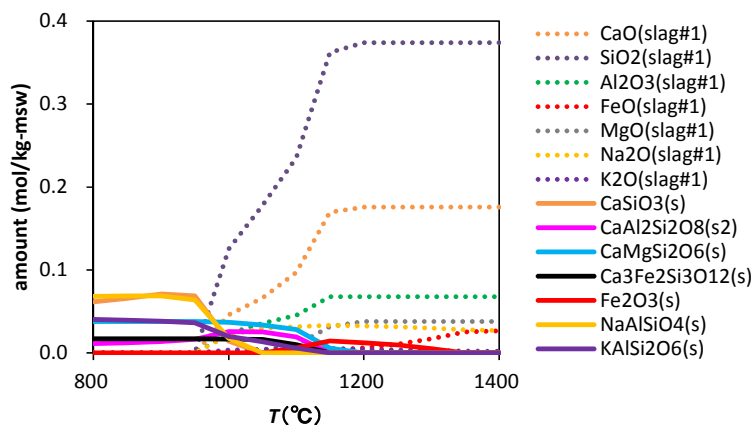


図 1.1-3 シングルゾーン平衡計算によるおもな固体と熔融相の平衡時の化合物

空気比 1.5 による計算結果。縦軸はごみ 1kg 当たりの生成量であり、s は固体、slag は酸化物の熔融相を表す。

共存した状態が平衡組成として得られた（図 1.1-4）。なお Cs に関しては、今回の組成のごみでは Cs<sub>2</sub>O のスラグ中の活量係数が 10<sup>-15</sup> 以下、もしくは CsCl の活量係数が 1 以下の場合に酸化物溶融相に溶解するという結果となった。

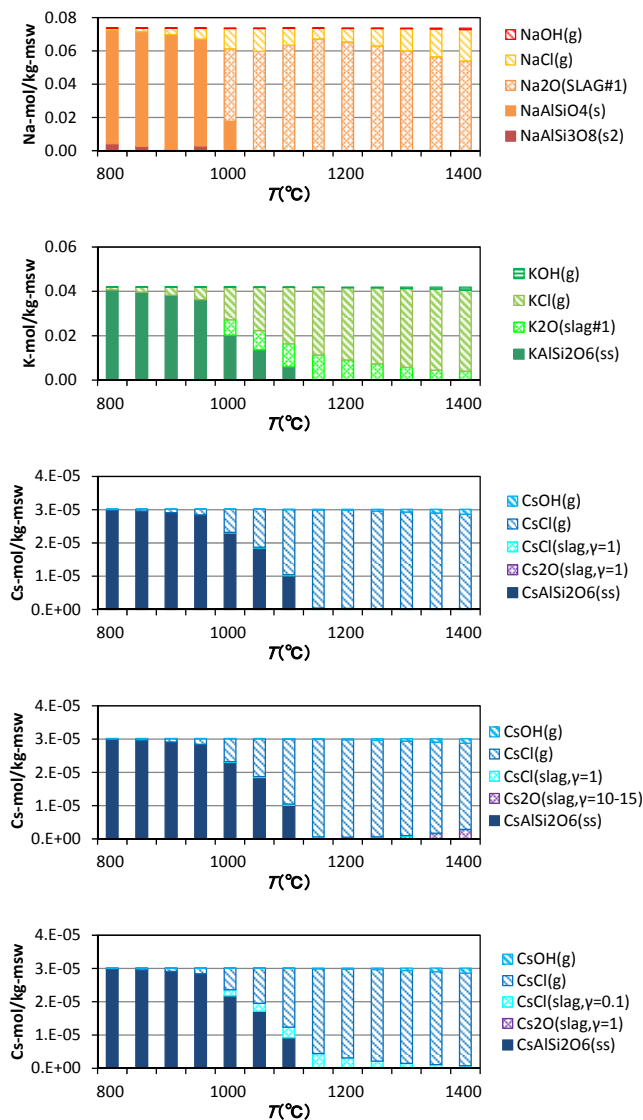


図 1.1-4 シングルゾーン平衡計算による焼却温度におけるアルカリ金属の生成物

空気比 1.5 についての計算結果。g はガス、s は固体、ss は固溶体、slag は酸化物溶融相を表す K, Na 化合物の酸化物溶融相中の活量係数は FactSage の FToxid-slagH のものをそのまま用いた。

## 2) マルチゾーン計算① 既往研究と比較

### (a) 排ガスの組成

表 1.1-2 の組成を用いて、図 1.1-2(a)の条件で計算した場合のストーカ炉各部の気体の組成を、実際の施設調査によるストーカ上部、二次燃焼出口における測定値<sup>30</sup>とともに表 1.1-3 に示す。文献値と現存の施設では炉の形式や運転条件が異なると思われるが、主なガス成分の濃度は文献値と矛盾しないことを確認し、主要ガスの計算結果は妥当なものと考えられる。

表 1.1-3 一次燃焼ゾーンと二次燃焼ゾーンの主要排ガス組成の計算結果と文献値 (vol%)

	熱分解上部	一次燃焼上部	ストーカ上部 (文献値)	二次燃焼出口	二次燃焼出口 (文献値)
CO	0.26	0.0	2~6	0.0011	0.02~0.08
CO <sub>2</sub>	11	11	14~16	9.4	8.6~15
O <sub>2</sub>	4.8	8.0	1.4~4.8	5.3	6~12
H <sub>2</sub> O	18	5.4	15~28	22	14~25
H <sub>2</sub>	5.0	0.0	4.1~7.2	0.021	-
HCl	0.16	0.070	0.05~0.07	0.067	-

### (b) 灰の化学組成

都市ごみの焼却灰の分析研究は、過去の多くの研究者らによる報告があるため、今回の計算結果を既往の報告と比較して、計算の妥当性や問題点を把握するのに用いた。以下では主灰、ボイラー灰、飛灰の順に比較した結果について報告する。

都市ごみ焼却主灰<sup>31-40</sup>の分析からは、主な結晶質として quartz SiO<sub>2</sub>, mellilite (gehlenite Ca<sub>2</sub>Al(AlSi)O<sub>7</sub>, åkermanite Ca<sub>2</sub>MgSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub>を端成分とする固溶体), anorthite CaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>, hematite α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, magnetite Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, spinel, lime CaO, calcite CaCO<sub>3</sub>, larnite Ca<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>, (pseudo)wollastonite CaSiO<sub>3</sub>, anhydrite CaSO<sub>4</sub>とその複塩、まれに albite NaAlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, leucite KAlSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>等のアルカリ金属ケイ酸塩と塩化物<sup>40</sup>が、非晶質成分として、Ca, Si, Al, Fe等を含む酸化物のスラグ相が報告されている<sup>33,35,40</sup>。焼却主灰の形態は mm から μm オーダーの不定形粒子もしくはガラス状非晶質相とされ、非晶質相内部には mellilite 等の結晶がみられ、球状の空隙があることがある<sup>33,35,40</sup>。灰は多孔質であり塩化物等の炉内のガスが取り込まれる可能性が指摘<sup>38,40</sup>されている。主灰中の塩素の含有率は 0.2-5mass%<sup>40</sup>とされ、その内訳は、水冷主灰の場合、無機塩と Friedel 氏塩のような不溶性の鉱物相とされる<sup>40</sup>。アルカリ金属はケイ酸塩鉱物、硫酸塩、塩化物、非晶質相が報告されている。なおアルカリ金属を含む鉱物相 (albite, leucite 等) の起源が不燃物 (土砂、セラミック等) に由来するのか焼却によって生成するのかは明らかになっていない。これらはいずれも融点が高く<sup>29</sup>、廃棄物に混入していても単独では分解しないためである。廃棄物中の Cs 含有量は安定 Cs を含めても極微量であるため、従来の分析では Cs の化学形態を同定できないが、RDF に安定 Cs 塩を添加した焼却試験では Cs は酸化物の非晶質相と pollucite の組成を持つ結晶相、硫化物の非晶質相中に検出され<sup>41</sup>、実灰でも放射性 Cs はガス態となるか非晶質相および結晶相になると考えられる。

図 1.1-2(a)の設定における、主な主灰成分を図 1.1-5(a)に示す。主な成分は anorthite, wollastonite 等のケイ酸塩と酸化鉄であり、文献で報告される化合物種と一致した。ただし計算では、実灰にみられる石英 (quartz) と gehlenite が少なく、実灰では報告数が少ないリン酸 Ca が得られた。リンの酸化物溶融相への溶解を計算する必要があることが分かった。また計算による主灰中の塩化物の量は実測より少なく、塩化物の挙動をモデルに組み込む必要があることも分かった。(後述)

石英は土砂等の主成分の一つであり、融点が高いため焼却処理では溶け残る可能性がある。そこで、廃棄物中の Si の半数が石英であり焼却処理で変化しなかったとして (仮値)、表 1.1-2 の組成から石英分を除いた組成で計算を行い、得られた主灰に石英分を足し合わせて主灰組成を計算した。結果を図 1.1-5(a2)に示す。gehlenite, åkermanite の割合が増加して実測に近い結果が得ら

れた。このことは、廃棄物中に反応に関与しない成分があること、反応に関与しない成分を除けば焼却における廃棄物の灰化が熱力学の平衡論である程度説明可能であることを示している。ただし、石英など単独では融点の高い鉱物も他の成分と反応するため<sup>42</sup>、実際の焼却過程では、鉱物等の不燃分と可燃分中の灰分が個々に融解したりガスが溶解したりして灰化の変化が進行していることを念頭に置きながら計算結果を解釈する必要がある。

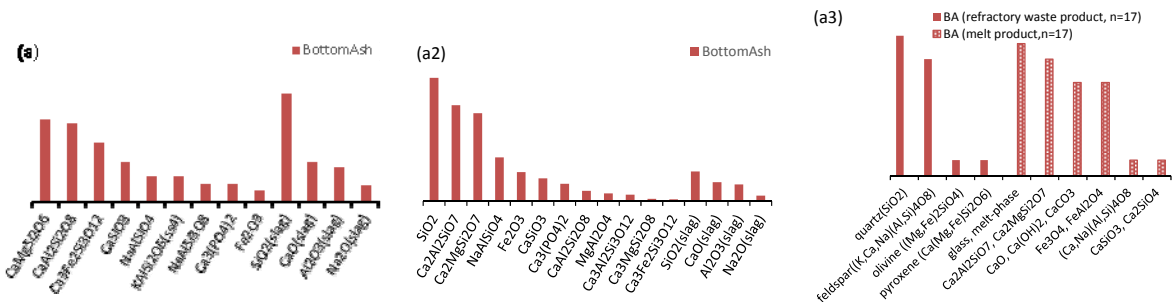


図 1.1-5 マルチゾーン平衡計算から推定される主灰の化学形態と文献値

(a)表 1.1-2 の組成による計算結果、(a2) 表 1.1-2 の組成から SiO<sub>2</sub>分を除いた結果、(a3) 文献報告数

次に、ボイラー、減温塔など排ガスが冷却される部分の灰もしくはクリンカについて検討した。既往の報告によると、ボイラー水冷管などにアルカリ金属の塩化物、硫酸塩や重金属の塩化物とシリケート等の主灰由来成分が付着することが知られる<sup>30,43-46</sup>。今回の計算でも、ボイラー灰には主灰成分の他に、アルカリ金属の硫酸塩が析出する可能性があるという結果が得られた。(図 1.1-6) なお、ボイラー灰に酸化鉄 (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) があるという結果になっているが、これは焼却炉の固体が一律 15%二次燃焼炉に混入するとしたためであり、実際は酸化鉄など比重の重い成分は混入しないと考えられる。Si の半量を廃棄物の組成から除外して計算した場合 (図 1.1-6(a2))、減温塔部以降の塩化物の析出量が増加した。なお計算では塩化物と硫酸塩の固溶相を含めていないため、ボイラー、減温塔への塩化物の付着は実際よりも少なく見積もっている可能性がある。

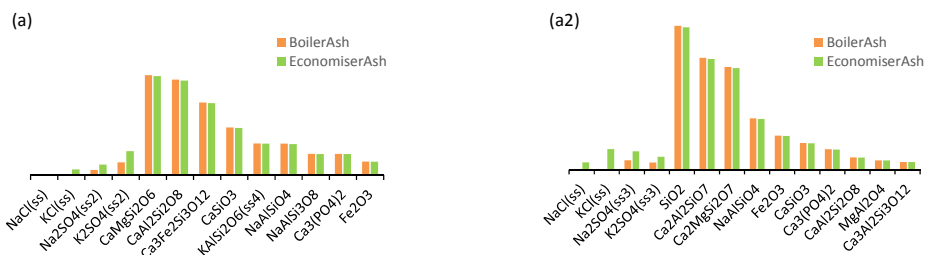


図 1.1-6 マルチゾーン平衡計算から推定されるボイラー灰等の化学形態

(a)表 1.1-2 の組成による計算結果、(a2)表 1.1-2 の組成から SiO<sub>2</sub>分を除いて計算した結果

最後に飛灰の結果について示す。既往の報告<sup>47-56</sup>によると、都市ごみ焼却飛灰は μm オーダーの Si,Al に富む粒子と μm からサブ μm サイズの Na,K,Ca,Cl に富む微細な粒子から構成され<sup>50</sup>、粉末 X 線回折 (XRD) で同定される結晶相は主灰成分の quartz, calcite 等と halite NaCl, sylvite KCl, anhydrite CaSO<sub>4</sub>, portlandite Ca(OH)<sub>2</sub>, CaCO<sub>3</sub>, CaClOH, CaCl<sub>2</sub> 等であり、Ca 塩は酸性ガスの中のための石灰吹き込みによるものである。なお、実飛灰には、有害物質除去のための活性炭吹き込み

による活性炭が含まれる場合もある。飛灰の安定 Cs の分析<sup>12</sup> および放射性 Cs の溶出率の測定<sup>2,57,58</sup> より、アルカリ金属の溶出率が高いことが分かっており、XRD の結果と対応している。

図 1.1-7 に計算結果を示す。主灰成分と消石灰吹き込みによる生成物を除くと、飛灰は主にアルカリ金属の塩化物であり既往の報告と対応している。なお Si の半量を廃棄物の組成から除外して計算した場合 (図 1.1-7(a2))、生成する化合物は同じであるが、Na,K の塩化物量が増加した。

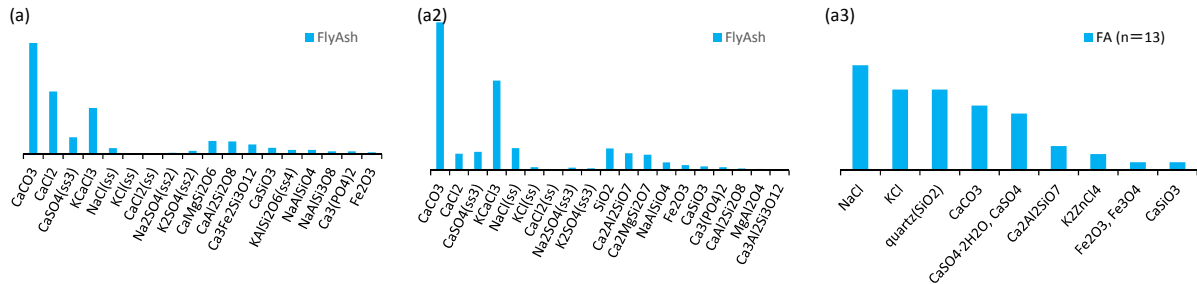


図 1.1-7 マルチゾーン平衡計算から推定される飛灰の化学形態

(a)表 1.1-2 の組成による計算結果、(a2) 表 1.1-2 の組成から SiO<sub>2</sub>分を除いた結果、(a3)文献報告数

### (c) 元素分配率

元素分配率の計算結果を灰の分析による値<sup>13</sup> とともに図 1.1-8 に示す。Ca の分配率は計算、分析とも薬剤添加分を補正している。図 1.1-8(a2)は、前述のようにごみに含まれる Si の半量を未反応の SiO<sub>2</sub> として計算したものである。計算と実測は概ね一致した。アルカリ金属は Cs > K > Na の順に飛灰への移行率が高いという結果が得られた。廃棄物の組成から Si の半量を廃棄物の組成から除外して計算した場合は、アルカリ金属の飛灰への移行率が増加した (図 1.1-8(a2))。廃棄物の塩基度が増大したためと考えられる。

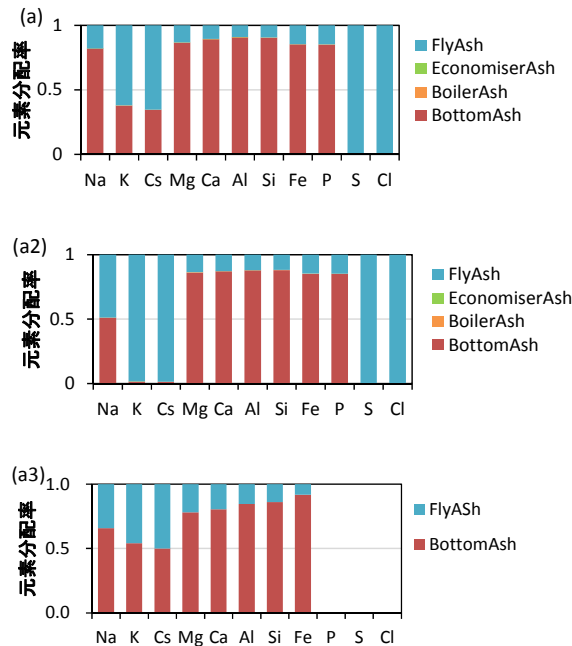
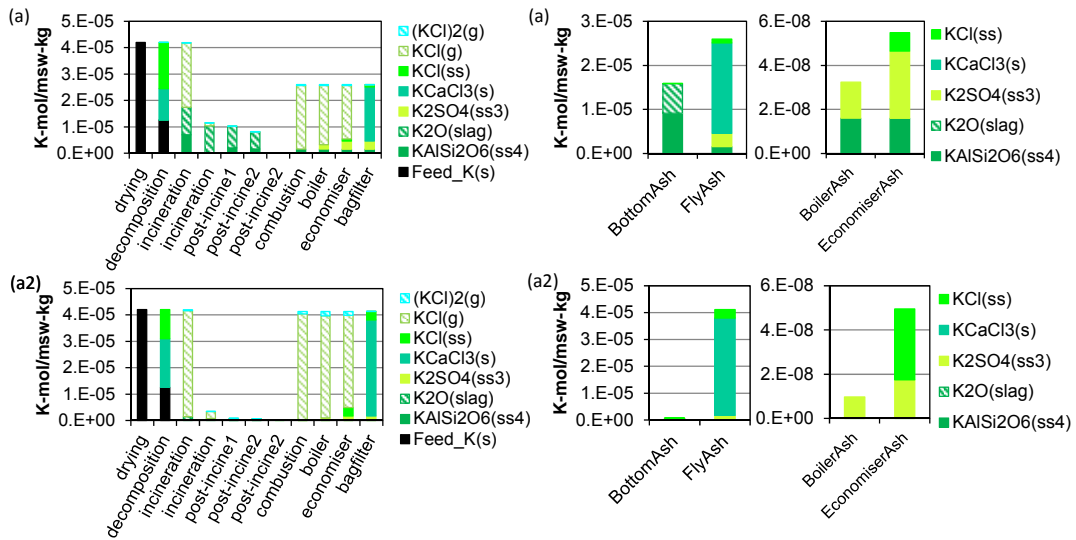


図 1.1-8 マルチゾーン平衡計算から推定される元素の分配率

(a)表 1.1-2 の組成による結果、(a2) 表 1.1-2 の組成から SiO<sub>2</sub>分を除いた結果、(a3) 実測<sup>13</sup>

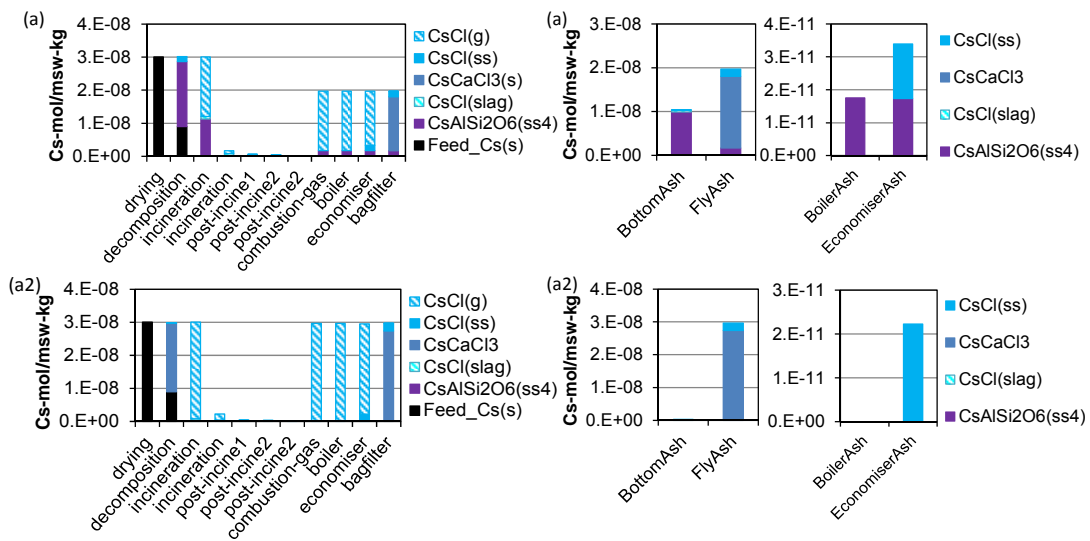
**(d) アルカリ金属元素の挙動と化学形態**

カリウム (K) の各ゾーンにおける化学形態 (変換率補正後) と各灰への分配挙動を図 1.1-9 に、セシウム (Cs、安定、放射性とも) の挙動を図 1.1-10 に示す。K と Cs の挙動は類似しており、主灰では主にアルミノシリケートと非晶質相、飛灰は塩化物と硫酸塩という結果が得られた。図 1.1-9(a2), 1.1-10(a2)は、ごみの Si の半数が石英であり、焼却処理で変化しなかったとした場合の結果である。図 1.1-9(a)、1.1-10(a)と比べて、K、Cs とも飛灰移行率が増加した。廃棄物に反応可能な形の Si が少ないと、ごみ全体として Si 割合が多くても塩基度が高くなりアルカリ金属は飛灰へ移行しやすいことが推察された。



**図 1.1-9 マルチゾーン計算による K の推定挙動**

(a)表 1.1-2 の組成による計算結果、(a2) 表 1.1-2 の組成から SiO<sub>2</sub>分を除いて計算した結果



**図 1.1-10 マルチゾーン計算による Cs (安定、放射性とも) の推定挙動**

(a)表 1.1-2 の組成による計算結果、(a2) 表 1.1-2 の組成から SiO<sub>2</sub>分を除いて計算した結果

図 1.1-9, 1.1-10 の左図に示したものは、各ゾーンにおける化学形態である。乾燥ゾーン(100℃)では蒸気圧から考えて無機塩があったとしてもほとんど揮発しない。計算による熱分解ゾーン(400℃)での安定化学形態は固体塩化物やアルミノシリケートであったが、この温度ではアルミノシリケートの生成はほとんど進まないため、実際は Cs (安定、放射性とも)は、固体は他の固体とともに燃焼ゾーンへ送られ、ガス化するものは、一部は固体の細孔などに留まり、残りは気相へ移行すると考えられる。Cs の気相への移行量を試算したところ、ごみの処理量を 5 ton/h、熱分解ゾーンへの送風量を仮に 2000m<sup>3</sup> (NTP) /h とすると、ごみに含まれる Cs が安定 Cs と放射性 Cs 合わせて毎時 2 g 熱分解ゾーンへ導入され、Cs が全て CsCl である場合、純粋な CsCl の蒸気圧<sup>59</sup>から計算すると、400℃で最大で 0.3 g/h が CsCl ガスとして除去される可能性がある。すなわち Cs の排ガスへの移行量は最大でごみに含まれる量の 0.3/2= 約 15% である。ごみの Cs 含有量が多いか、燃焼用空気の送風量が少なければ、排ガスへの移行割合は相対的に減少する。

燃焼ゾーンにおいては、Cs はアルミノシリケート、スラグ相に溶け込んだ状態と気体の塩化物が共存した状態が安定であるという結果が得られた。溶融相に溶けたものは冷えていく段階で固化していくが、通常条件では安定 Cs を含めても Cs の存在量が少ないため、純粋な pollucite (CsAlSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>) として析出するよりは、析出しないで非晶質相に含まれるか、他の固体に不純物として取り込まれると推察される。計算では pollucite が leucite と固溶可能であるとしたところ固溶体が生成するという結果が得られた。Cs は pollucite、leucite 以外の鉱物相に含まれる可能性もあるが、現在のところ、Cs がどの鉱物に含まれやすいかの情報は入手できていない。排ガス冷却ラインでは、主にボイラーから減温塔にかけて硫酸塩が析出し、塩化物はより後段で析出するという結果となった。

### 3) マルチゾーン平衡計算② 運転条件による影響

#### (a) 炉内のガスの流れによる影響

前節までの結果は、焼却で発生した気体のほとんどが二次燃焼ゾーンへ直接移行するという計算によるものであるが、排ガスの一部がおき燃焼ゾーンを通過してから二次燃焼炉へ移行する場合(図 1.1-2(b)の設定)についても計算した。ストーカ各部からのガスの供給量は図 1.1-2(a)と同じとした。各灰の主成分の化学形態を図 1.1-11 に示す。主灰・飛灰とも主な生成物は図 1.1-5(a)~7(a)とほぼ同じであるが、主灰中にアルカリ金属の塩化物がみられるようになった。すなわち塩化物が主灰に含まれる過程を表現できた。ただし実際の主灰中の塩化物が排ガス中の無機塩によるものかどうかは不明瞭であるため、主灰の分析による塩化物の生成機構の解明が必要である。

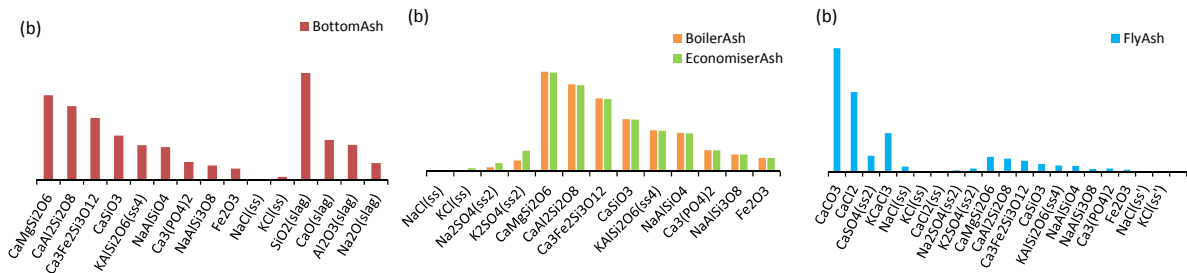


図 1.1-11 炉内を排ガスが滞留する場合の各灰の化学形態 (計算結果)

図 1.1-2(b)の設定で計算した結果。ストーカ各部への送風量は図 1.1-2(a)と同じとした。

アルカリ金属の挙動を図 1.1-12 に、元素の分配挙動を図 1.1-13 に示す。塩素と硫黄の主灰への移行率が増加した。また同時にアルカリ金属の主灰へのアルミノシリケートとしての分配率も増加して、ボイラー灰、飛灰中のアルカリ金属の塩化物量が減少するという計算結果が得られた。(図 1.1-12(b)) 排ガスが炉内で滞留して燃焼ゾーンが酸化雰囲気になるためと考えられる。

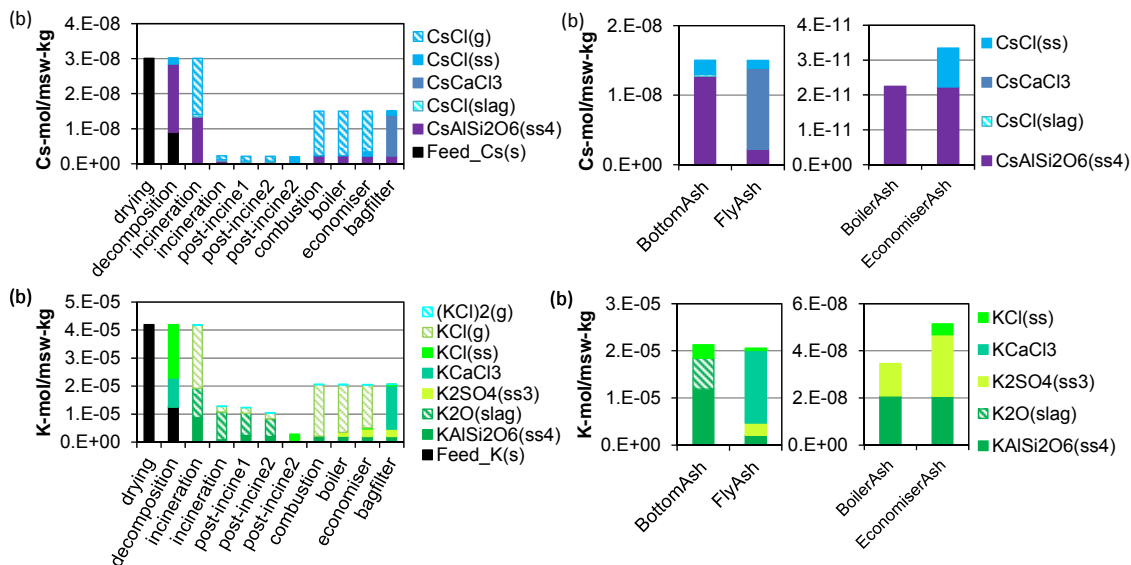


図 1.1-12 炉内を排ガスが滞留する場合のアルカリ金属の推定挙動 (計算結果)

図 1.1-2(b)の設定で計算した結果。ストーカ各部への送風量は図 1.1-2(a)と同じとした。

s は固体、ss は固溶体、slag は酸化物溶融相が固化した非晶質相を表す

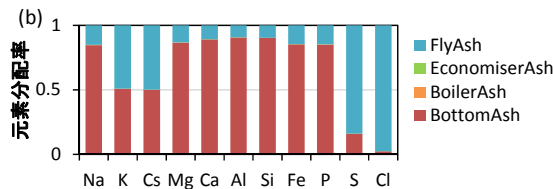


図 1.1-13 炉内を排ガスが滞留する場合の元素の分配率 (計算結果)

図 1.1-2(b)の設定で計算した結果。ストーカ各部への送風量は図 1.1-2(a)と同じとした。

### (b) 燃焼ゾーン温度による影響

運転条件による影響として、燃焼ゾーンの温度を変えた場合の各灰の成分の変化を調べた。図 1.1-14 に元素の分配挙動を、図 1.1-15 に各灰の主成分の化学組成を、図 1.1-16 にアルカリ金属の挙動を示す。燃焼ゾーンの温度が高いほど、K と Cs は飛灰側へ移行して飛灰の塩化物量が増えるが、ナトリウムは逆に主灰の非晶質相により多く取りこまれるという結果となった。(図 1.1-14, 1.1-16) 主灰では燃焼ゾーンの温度が高いほど、金属酸化物の非晶質相が増加して結晶が減少した。(図 1.1-15)



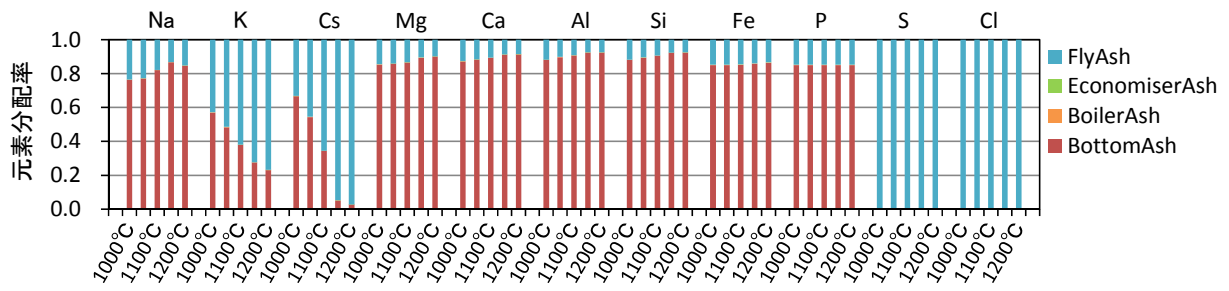


図 1.1-14 元素の分配率に対する燃焼ゾーン温度の影響

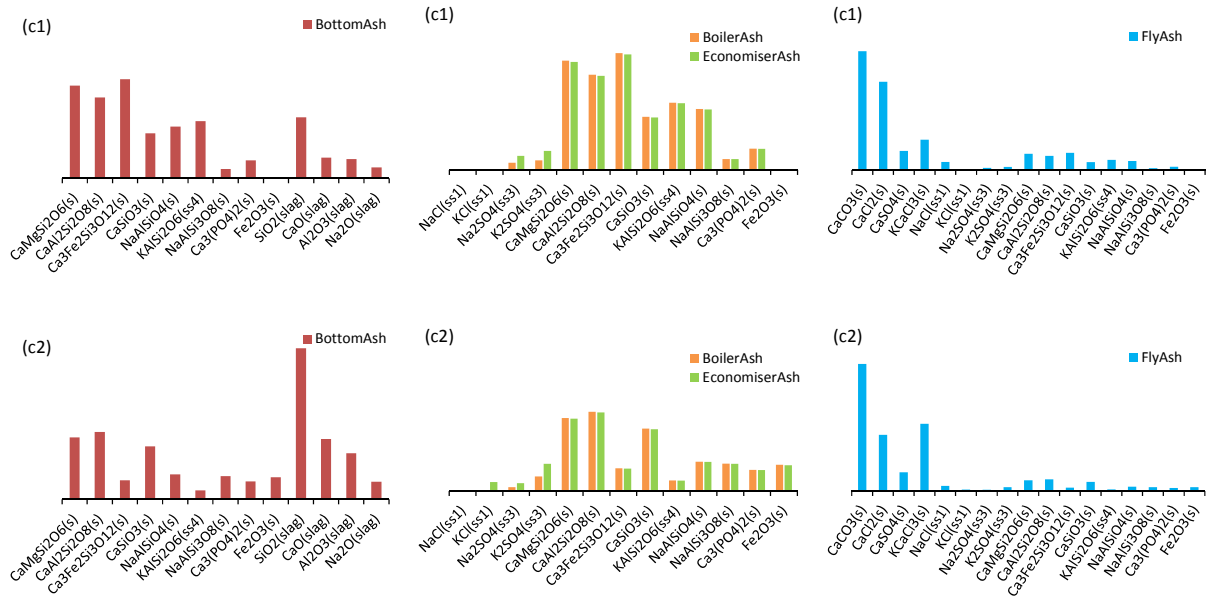


図 1.1-15 主灰の化学組成に対する燃焼ゾーン温度の影響 (c1) 1000°C、(c2) 1200°C

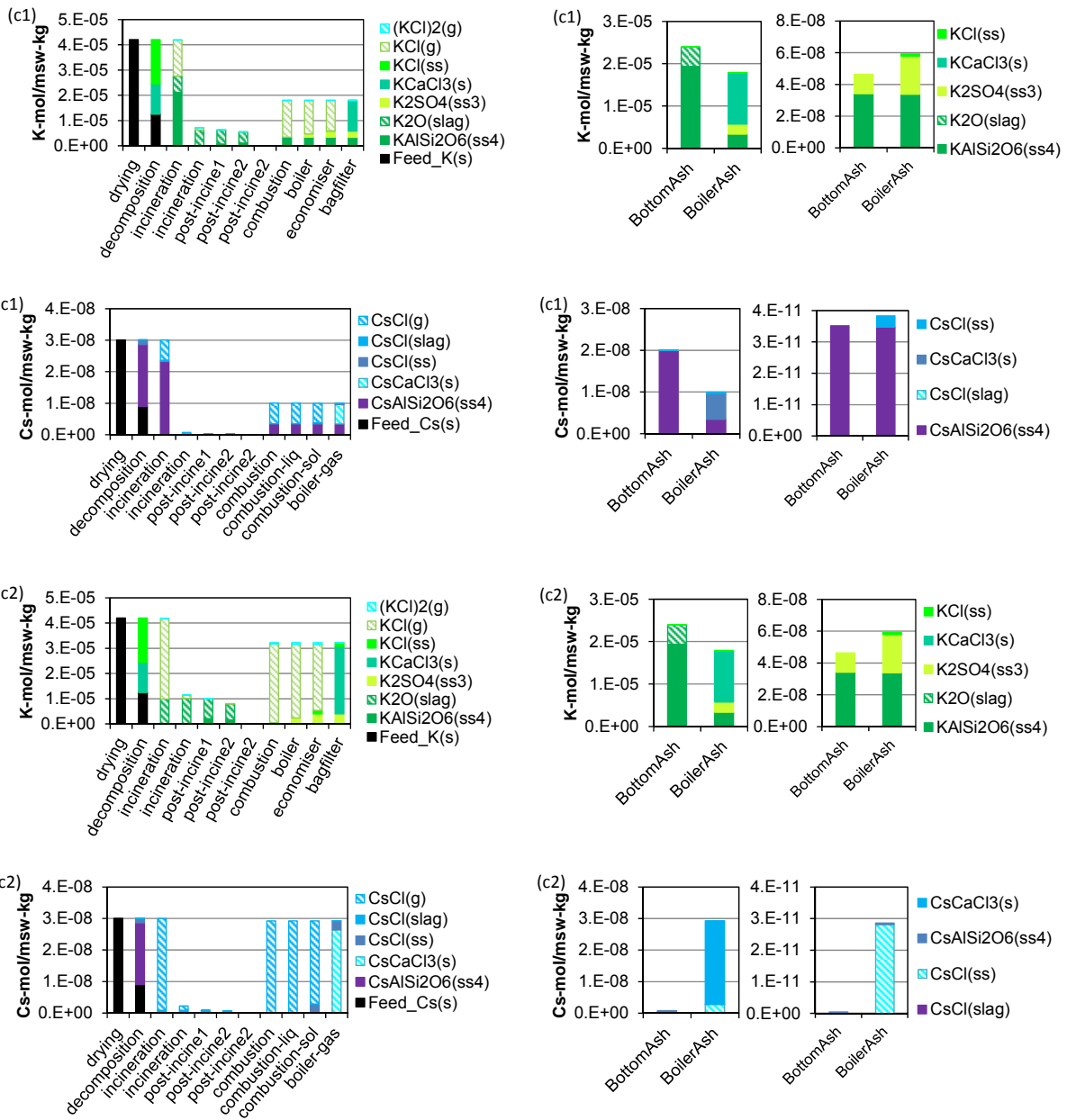


図 1.1-16 アルカリ金属の化学形態に対する燃焼ゾーン温度の影響 (c1) 1000°C、(c2) 1200°C

#### (4) 結論

廃棄物の焼却シミュレーションのためのマルチゾーン平衡計算のプログラムを作成し、ストーカ炉による都市ごみの焼却に適用した。プログラムの作成において安定セシウム化合物に関する新たな熱力学データを整備しつつ、熔融相や固溶体相も考慮した計算を実施し、これまでの計算手法よりも現実に近い条件で計算を行った。計算結果は、都市ごみの焼却における主灰、飛灰間の元素分配率の傾向や、灰の鉱物組成や元素組成の実測値を再現できた。このことは、廃棄物中の灰分の焼却処理による変化、特に高温の炉内におけるガス態と固体もしくは熔融相への分配挙動が、熱力学の平衡論で説明できる可能性を示唆している。ただし実際の焼却過程では、鉱物等

の不燃分と可燃分中の灰分は個々に融解したりガスが溶解したりして灰化の変化が進行していくと考えられ、完全に焼却を均一組成の平衡とすることには限界があると考えられる。これらの現象を正しくとらえるための灰の分析研究は今後も重要である。

炉の温度や炉内のガスの流れによる影響も検討した。ガスの流れが灰中の塩化物の濃度に影響を及ぼすことが示唆された。ただし、実際の主灰中の塩化物が排ガス中の無機塩が析出したものかは不明であり、実灰の分析等による主灰の塩化物の生成機構の解明が必要である。

Cs（安定、放射性とも）の挙動としては、ストーカ上で他の灰分と反応してアルミノシリケートの一部となるか、炉内の金属酸化物の熔融相に溶解して主灰に固定化される機構、塩化物等の揮発性成分として排ガスラインへ移行して飛灰となるという機構が考えられた。この挙動は同じアルカリ金属であるカリウムと同じ挙動を示していることに加えて、安定 Cs 添加試験で得られた挙動に関する知見と矛盾しないことも確認した。Cs の飛灰への移行率を左右するのは被焼却物の組成（次節で検討）の他、ごみの燃焼温度と炉内のガスの流れ方であると考えられた。更なる検討は実機のガスの流速分布などを必要とするため難しいが、大まかな傾向としては、炉内温度が同じであれば、酸化雰囲気になるほど Cs のアルミノシリケートあるいは非晶質相への固定化が進み、炉内が高温ほど、Cs は飛灰へ移行しやすいことが示唆された。

## (5) 課題

本研究の今後の課題を以下に示す。

- 都市ごみ以外の除染廃棄物等の汚染廃棄物、ストーカ以外の方式にも適用範囲を拡張する。
- 計算に必要な放射性元素の化合物の熱力学データを整備する。

## 参考文献

1. 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）改訂版（平成 26 年 4 月 14 日）
2. 倉持秀敏（2014）事故由来放射性物質汚染廃棄物の熱処理に関するこれまでの研究成果，環境放射能除染学会誌, vol. 2, no. 2, pp.71-84.
3. Sakanakura H., Ishimori H., Endo K., Yamada M., Osako M. (2012) Leaching characteristics of radioactive cesium from municipal solid waste incinerator ash, sewage sludge ash. *3rd International Conference on Industrial and Hazardous Waste Management, Abstracts*.
4. 小口正弘, 森朋子, 大迫政浩, 森口祐一, 山田正人（2012）一般廃棄物焼却処理への放射性物質の移行と焼却灰への濃縮に関する傾向の分析. 廃棄物資源循環学会第 23 回研究発表会, 同予稿集, pp.165-167.
5. 下水汚泥等の放射能濃度測定結果, [http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewage/crd\\_sewage\\_tk\\_000168.html](http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewage/crd_sewage_tk_000168.html)
6. Ishikawa N. K., Ito A., Umita T. (2013) Fate of radiocesium in sewage treatment process released by the nuclear accident at Fukushima. *Chemosphere*, 93, 689-694. 石川奈緒、伊藤歩、海田輝之埋立処分される下水汚泥焼却灰からの Cs および Sr の溶出特性、日本原子力学会和文論文誌, vol. 13, no. 3, p. 87-93 (2014).
7. Tsushima I., Ogoshi M., Harada I. (2013) Leachate tests with sewage sludge contaminated by

- radioactive cesium. *J. Environ. Sci. Health A*, 48, 1717–1722.
8. Parajuli D., Tanaka H., Hakuta Y., Minami K., Fukuda S., Umeoka K., Kamimura R., Hayashi Y., Ouchi M., Kawamoto T. (2013) Dealing with the Aftermath of Fukushima Daiichi Nuclear Accident: Decontamination of Radioactive Cesium Enriched Ash. *Environ. Sci. Technol.*, 47, 3800–3806.
  9. 原田健一, 福島行我, 倉持秀敏, 大島誠, 杉田進一, 八巻徹 (2014) 放射性物質に汚染された牧草の焼却実証事業について(事例報告). 全国都市清掃研究・事例発表会第 35 回大会, 同予稿集, pp.303-305.
  10. 倉持 秀敏, 野村 和孝, 由井 和子, 大迫 政浩 (2014) 汚染バイオマスの燃焼における放射性 Cs の挙動と組成が与える影響 第 25 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演要旨, 369-370.
  11. Ginsberg T., Liebig D., Modigell M., Sundermann B. (2012) Multizonal thermochemical modeling of heavy metal transfer in incineration plants. *Process Safety and Environmental Protection*, 90, 38-44.
  12. 廃棄物学会編 (1996) 廃棄物ハンドブック, オーム社
  13. 肴倉宏史, 小口正弘, 寺園淳 (2010) 焼却・熔融実処理プロセスにおける希少金属等 54 元素の分配と変動、第 21 回廃棄物資源循環学会研究発表会, pp.198-199.
  14. Oguchi M., Sakanakura H., Terazono A. (2013) Toxic metals in WEEE: Characterization and substance flow analysis in waste treatment processes *Sci. Total Environ.*, 463–464, 1124–1132.
  15. Bale C. W., Bélisle E., Chartrand P., Decterov S. A., Eriksson G., Hack K., Jung I. -H., Kang Y.-B., Melançon J., Pelton A. D., Robelin C., Petersen S. (2009) FactSage thermochemical software and databases - recent developments, *CALPHAD - Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry*, 33, 295-311.
  16. Koukkari P., Penttilä K., Hack K., Petersen S. (2000) ChemSheet -an efficient worksheet tool for thermodynamic process simulation, *EUROMAT 99, Biannual Meeting of the Federation of European Materials Societies (FEMS)*, Munich, Germany, Sept. 27-30, 1999, 3, pp. 323-330.
  17. Knacke O, Kubaschewski O., Hesselmann K. (1991) *Thermochemical Properties of Inorganic Substances 2nd Ed.* Springer, Berlin.; original data from Spencer, P.J. *The Thermodynamic Properties of Alkaline Metal Alloys* NPL, Teddington, DSC Rep. Vol. 10, (1971), and *The Thermodynamic Properties of Silicates*, *ibid*, No. 21, (1973).
  18. Ogorodova L. P., Melchakova L. V., Kiseleva I. A., Belitsky I. A. (2003) Thermochemical study of natural pollucite. *Thermochimica Acta*, 403, 251-256.
  19. Semenov A. M., Bychkov N. V., Krestina I. L., Khodakovskiy I. L., Westrum Jr. E. F., Johnson D. A. (1994) in: *Proceedings of the Fourth International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in Geosphere*, Charleston, SC, USA, 12–17 December 1993, R. Oldenbourg Verlag, München, pp. 63-69.
  20. Lindmer T. B., Besmann T. M., Johnson C. E. (1981) Thermodynamic review and calculations – alkali-metal oxide systems with nuclear fuels, fission products, and structural materials. *J. Nucl. Mater.*, 100, 178-226.

21. Lamoreaux R. H., Hildenbrand D. L. (1984) High temperature vaporization behavior of oxides. I. Alkali metal binary oxides. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 13 151-173.
22. Guéneau C., Flèche J.-L. (2015) Thermodynamic assessment of the cesium–oxygen system by coupling density functional theory and CALPHAD approaches, *Calphad*, 49, 67-78.
23. Leitner J., Chuchvalec P., Sedmidubský D., Strejc A., Abrman P. (2003) Estimation of heat capacities of solid mixed oxides. *Thermochim. Acta.*, 395, 27-46.
24. Kubaschewski O., Ünal H. (1977) An empirical estimation of the heat capacities of inorganic compounds. *High Temp. High Press.*, 9, 361-365.
25. Martin R., Lagache M. (1975) Cell edges and infrared spectra of synthetic leucites and pollucites in the system  $\text{KAlSi}_2\text{O}_6$ - $\text{RbAlSi}_2\text{O}_6$ - $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$  *Can. Mineral.*, 13, 275-281.
26. Hölland W., Beall G. H. (2012) *Glass-Ceramic Technology*, 2nd Ed., Wiley.
27. Dimitrijevic R., Dondur V., Petranovic N. (1991) The high temperature synthesis of  $\text{CsAlSiO}_4$ -ANA, a new polymorph in the system  $\text{Cs}_2\text{O}$   $\text{Al}_2\text{O}_3$   $\text{SiO}_2$ : 1. the end member of ANA type of zeolite framework. *J. Solid State Chem.*, 95, 335-345.
28. Gatta G. D., Merlini M., Lotti P., Lausi A., Rieder M. (2012) Phase stability and thermoelastic behavior of  $\text{CsAlSiO}_4$  (ABW): A potential nuclear waste disposal material *Microporous and Mesoporous Materials*, 163, 147–152.
29. Robie R. A., Hemingway B. S. (1995) Thermodynamic properties and related substances at 298.15 K and 1 bar ( $10^5$  pascals) pressure and at higher temperatures. *U.S Geol. Surv., Bull.*, 2131.
30. 占部武生、基昭夫 (1996) 清掃工場燃焼室ボイラー水管の腐食状況および腐食環境に関する研究 廃棄物学会論文誌 7 (4), 174-182.
31. International Ash Working Group (1994) *An International Perspective on Characterisation and Management of Residues from Municipal Waste Combustion; Summary Report*, Netherlands Energy Research Foundation: Petten, The Netherlands.
32. Kirby C. S., Rimstidt J. D. (1993) Mineralogy and surface properties of municipal solid waste ash. *Env. Sci. Technol.*, 27, 652-660.
33. Pfrang-Stotz G., Schneider J. (1995) Comparative studies of waste incineration bottom ashes from various grate and firing systems, conducted with respect to mineralogical and geochemical methods of examination. *Waste Manag. Res.*, 13, 273-292.
34. Chimenos J. M., Segarra M., Fernández M. A., Espiell F. (1999) Characterization of the bottom ash in municipal solid waste incinerator. *J. Hazard. Mater.*, 64, 211-222.
35. Eusden J. D., Eighmy T. T., Hockert K., Holland E., Marsella K. (1999) Petrogenesis of municipal solid waste combustion bottom ash. *Appl. Geochem.*, 14, 1073-1091.
36. Li M., Xiang J., Hu S., Sun L.-S., Su S., Li P.-S., Sun X.-X. (2004) Characterization of solid residues from municipal solid waste incinerator. *Fuel.*, 83, 1397-1405.
37. Chang F. -Y., Wey M. -Y. (2006) Comparison of the characteristics of bottom and fly ashes generated from various incineration process *J. Hazard. Mater.*, B138, 594–603.
38. Speiser C., Baumann T., Niessner R. (2001) Characterization of municipal solid waste incineration (MSWI) bottom ash by scanning electron microscopy and quantitative energy dispersive X-ray

- microanalysis (SEM–EDX), *Fresenius J. Anal. Chem.*, 370, 752–759.
39. Bayuseno A. P., Schmahl W. W. (2010) Understanding the chemical and mineralogical properties of the inorganic portion of MSWI bottom ash, *Waste Manag.*, 30 1509–1520.
  40. Yang S., Saffarzadeh A., Shimaoka T., Kawano T. (2014) Existence of Cl in municipal Existence of Cl in municipal solid waste incineration bottom ash and dechlorination effect of thermal treatment. *J. Hazard. Mater.*, 267, 214-220.
  41. Saffarzadeh A., Shimaoka T., Kakuta Y., Kawano T. (2014) Cesium distribution and phases in proxy experiments on the incineration of radioactively contaminated waste from the Fukushima area. *J. Environ. Radioact.*, 136 76-84.
  42. Rashid R. A., Shamsudin R., Hamid M. A. A., Jalar, A. (2014) Low temperature production of wollastonite from limestone and silica sand through solid-state reaction. *J. Asian Ceram. Soc.*, 2, 77-81.
  43. Xiao Y., Wilson N., Yang Y., Voncken J. H. L. (2006) Thermal behavior of boiler ash from municipal solid waste incinerator. *Acta Metallurgica Slovaca*, 12, 436 – 446.
  44. Otsuka N. (2008) A thermodynamic approach on vapor-condensation of corrosive salts from flue gas on boiler tubes in waste incinerators. *Corrosion Sci.*, 50, 1627-1636.
  45. Miller P. D., Krause H. H., 酒井潤一 (1972) 都市ごみ焼却炉のボイラ用鋼管の腐食に影響する因子 防蝕技術 21 (2), 82-93.
  46. 湯川憲一 (1997) ごみ焼却炉ボイラの高湿腐食 について 材料と環境 46 3-7.
  47. Henry W. M., Barbour R. L., Jakobsen R. J., Schumacher P. M. (1983) *Inorganic compound identification of fly ash emissions from municipal incinerators*. U. S. EPA-600/S3-82-095.
  48. Eighmy T. T., Eusden Jr, J. D., Krzanowski J. E., Domingo D. S., Stampfli D., Martin J. R., Erickson J. R. (1995) Comprehensive approach toward understanding element speciation and leaching behavior in municipal solid waste incineration electrostatic precipitation ash. *Env. Sci. Technol.*, 29, 629-646.
  49. Le Forestier L, Libourel G. (1998) Characterization of flue gas residues from municipal solid waste combustors. *Environ. Sci. Technol.*, 32, 2250-2256.
  50. Fermo P., Cariati F., Demartin F., Tettamanti M., Collina E., Lasagni M., Pitea D., Puglisi O., Russo U. (1999) The analytical characterization of municipal solid waste incinerator fly ash: methods and preliminary results. *Fresenius J. Anal. Chem.*, 365, 666-673.
  51. Fermo P., Cariati F., Pozzi A., Tettamanti M., Collina E., Pitea D. (2000) Analytical characterization of municipal solid waste incinerator fly ash Part II.. *Fresenius J. Anal. Chem.*, 366, 267-272.
  52. Wan X., Wang W., Ye T. M., Guo Y. W., Gao X. B. (2006) A study on the chemical mineralogical characterization of MSWI fly ash using a sequential extraction procedure. *J. Hazard. Mater.*, 134, 194-201.
  53. Jiang J. G., Xu X., Wang J., Yang S. J., Zhang Y. (2007) Investigation of basic properties of fly ash from urban waste incinerators in China. *J. Environ. Sci.*, 19, 458–463.
  54. Eighmy T. T., Eusden Jr, J. D., Krzanowski J. E., Domingo D.S., Stampfli D., Martin J.R., Erickson J. R. (1995) Comprehensive approach toward understanding element speciation and leaching

- behavior in municipal solid waste incineration electrostatic precipitation ash. *Env. Sci. Technol.* 29, 629-646.
55. Zhang H., He P. J., Shao L. M. (2008) Fate of heavy metals during municipal solid waste incineration in Shanghai. *J. Hazard. Mater.*, 156, 365-373.
  56. Zhu F., Takaoka M., Shiota K., Oshita K., Kitada Y. (2008) Chloride chemical form in various types of fly ash *Environ. Sci. Technol.*, 42 3932-3937.
  57. Iwahana Y., Ohbuchi A., Koike Y., Kitano M., Nakamura T. (2013) Radioactive nuclides in the incinerator ashes of municipal solid wastes before and after the accident at the Fukushima nuclear power plant. *Anal. Sci.*, 29, 61-66.
  58. Mallampati S. R., Mitoma Y., Okuda T., Sakita S., Simon C. (2014) Preferential removal and immobilization of stable and radioactive cesium in contaminated fly ash with nanometallic Ca/CaO methanol suspension. *J. Hazard. Mater.*, 279, 52-59.
  59. Scheer M. D., Fine, J. (1962) Entropies, heats of sublimation, and dissociation energies of the cesium halides. *J. Chem. Phys.*, 36, 1647-1653.

## 1.1.2 汚染バイオマスの熱処理挙動

### (1) 研究目的

事故由来放射性物質に汚染された廃棄物を適正に処理するためには、放射性セシウム (Cs) の挙動を知ることが重要である。特に、これから福島県内の対策地域内廃棄物の減容化を進めるにあたり、除染廃棄物や汚染された稲わらや牧草等の農業副産物等の処理量が増えると予想される。これまで、我々は、除染廃棄物の一つである汚染バイオマスの加熱燃焼試験や熱力学平衡計算による解析により、被焼却物の組成が燃焼時の放射性 Cs の挙動に影響を与えることを指摘してきた<sup>1-3)</sup>。そこで、挙動に関するさらなる知見の集積を目的として、新たに採取した汚染バイオマスおよび除染廃棄物のラボ燃焼試験とこれまでに得られた結果を併せて、焼却における放射性 Cs の挙動と被焼却物の元素組成の関係を整理することにした。

### (2) 研究方法

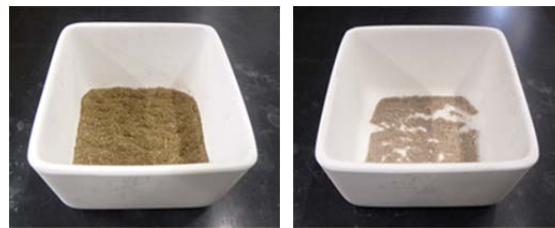
#### 1) 汚染バイオマスのラボ燃焼実験

H24~H26 年度にかけて 14 種の汚染バイオマスと 3 種の除染廃棄物を採取した。なお、図 1.1-17 のようにバイオマスの種分けは見た目判断した。これらを 80°C で一晩乾燥後、フードプロセッサ (小枝は粉砕機) で粉砕・均一化したものを試料として用いた。調整前後の試料の一例を図 1.1-17 に示す。試料量 5-10g を図 1.1-18 に示すアルミナ容器に入れ、マッフル炉 (FO100:ヤマト科学) にて熱処理を行った。処理温度は 500°C, 650°C および 850°C とし、それぞれ約 10°C/分で昇温後、目的温度に達したところで 1.5 時間保持した。また、キャリアガスとして空気を流量 2mL/分で導入した。空冷後、皿に残存した処理灰の重量から灰化率を算出し、U8 容器に移した灰をゲルマニウム半導体検出器 (ORTEC GEM30、SEIKO EG&G 社製) で測定した。さらに、得られた放射性 Cs 濃度から放射性 Cs の灰への移行率を算出した。



(a) H25 広葉樹落 (b) H25 針葉樹落葉 (c) H25 雑草 (d) H25 小

図 1.1-17 熱処理に供する試料の例（上段：採取時、下段：調整後）



(a) 処理前

(b) 処理後

図 1.1-18 使用した容器と処理前後の試料外観

## 2) 熱処理灰の X 線回折分析

熱処理後の灰をメノウ乳鉢ですり潰したものをガラス試料板に充填し、X 線回折分析装置 (Multi Flex:RIGAKU) で測定した。測定条件は、管球 Cu、管球電圧 40kV、管球電流 26mA、測定角度 3-90°、走査ステップ 0.02°、走査速度 2°/min、発散・散乱スリット 1°、受光スリット 0.3mm とした。また、スペクトルの定性分析には粉末 X 線総合解析ソフトウェア JADE7.0 を使用した。

## (3) 結果と考察

### 1) ラボ燃焼実験

#### (a) 試料の放射性セシウム (Cs) 濃度

試験に供した試料の放射性Cs濃度および灰分を表1.1-4に示す。個別の汚染バイオマス試料の放射性Cs濃度は約200~5000Bq/kg-dryと幅があり、試料の種類による傾向も認められないことから、植物毎の放射性Cs移行率よりも採取時期や場所の影響が大きいと予想される。



また、それらの灰分も、2.6～15.1%-dryと幅があるが、広葉樹落葉は比較的高く、小枝は低いといった分類毎の大まかな傾向が認められる。一方、これら汚染バイオマスの混合物が主体である除染廃棄物は、いずれも灰分が20%以上と高い数値を示した。汚染バイオマスの平均灰分から予想すると、灰分の半分程度は土砂類が由来と考えられる。

表 1.1-4 試験に供する試料の放射性セシウム (Cs) 濃度および灰分

採取年度	種類	放射性Cs濃度 (Bq/kg-dry)			灰分 (%-dry)
		Cs135	Cs137	T-Cs	
H24	広葉樹落葉	454	1210	1664	15.1
	針葉樹落葉	335	1001	1336	4.4
	雑草	338	970	1308	6.3
	小枝	178	459	637	2.6
H25	広葉樹落葉	80	194	274	14.0
	針葉樹落葉	466	1146	1612	5.6
	雑草	136	400	536	12.1
	小枝	387	999	1386	3.8
H26	広葉樹落葉	129	355	485	8.4
	雑草	140	387	528	9.7
	小枝	286	795	1081	1.7
	稲わら	1467	3954	5421	11.5
	笹	47	133	180	9.9
	牧草	216	650	865	8.0
	除染廃棄物A	1040	2833	3873	20
	除染廃棄物B	2334	6610	8944	24.4
除染廃棄物C	750	2392	3142	24.5	

#### (b) 灰への放射性Cs移行率

試験前後の放射性Cs濃度から灰への移行率を算出し、図1.1-19に示すように種類毎にグラフで比較した。全ての試料に共通するのは、500℃の熱処理において、ほとんどの放射性Csが残存灰に留まることであった。放射性Csは、この温度域では揮発性をほとんど持たない化学物形態であると予想される。また、多くの試料において、処理温度が上がるにつれ、灰への移行率は下がる、すなわち放射性Csは揮散しやすい傾向にあるが、その程度は、試料の種類によってかなり異なることがわかった。

以下、バイオマスの種類毎に比較すると、広葉樹落葉について、H24およびH26年度は処理温度が上がるにつれ、灰への移行率は下がる（揮散しやすい）傾向にあるが、その程度はH26年度の方が大きかった。一方、H25年度は全ての温度で灰に留まり、他と異なる傾向を示した。針葉樹落葉は2種類のみであるが、共に傾向は似ており、850℃における移行率は6.2-14.7%と低く、今回の試料において最も放射性Csが揮散し易いと考えられる。雑草について、H24年度は移行率の減少が緩やかなのに対し、H26年度は650℃と850℃で移行率の差が大きく、処理温度毎の傾向が大きく異なることが特徴的であった。小枝については、処理温度毎の傾向は多少異なるものの、基本的に灰への移行率が低かった。ここで、実際の処理温度に近い850℃における灰への放射性Cs移行率の平均と変動を種分けごとに各年度の移行率から算出し、表1.1-5にまとめた。灰への移行

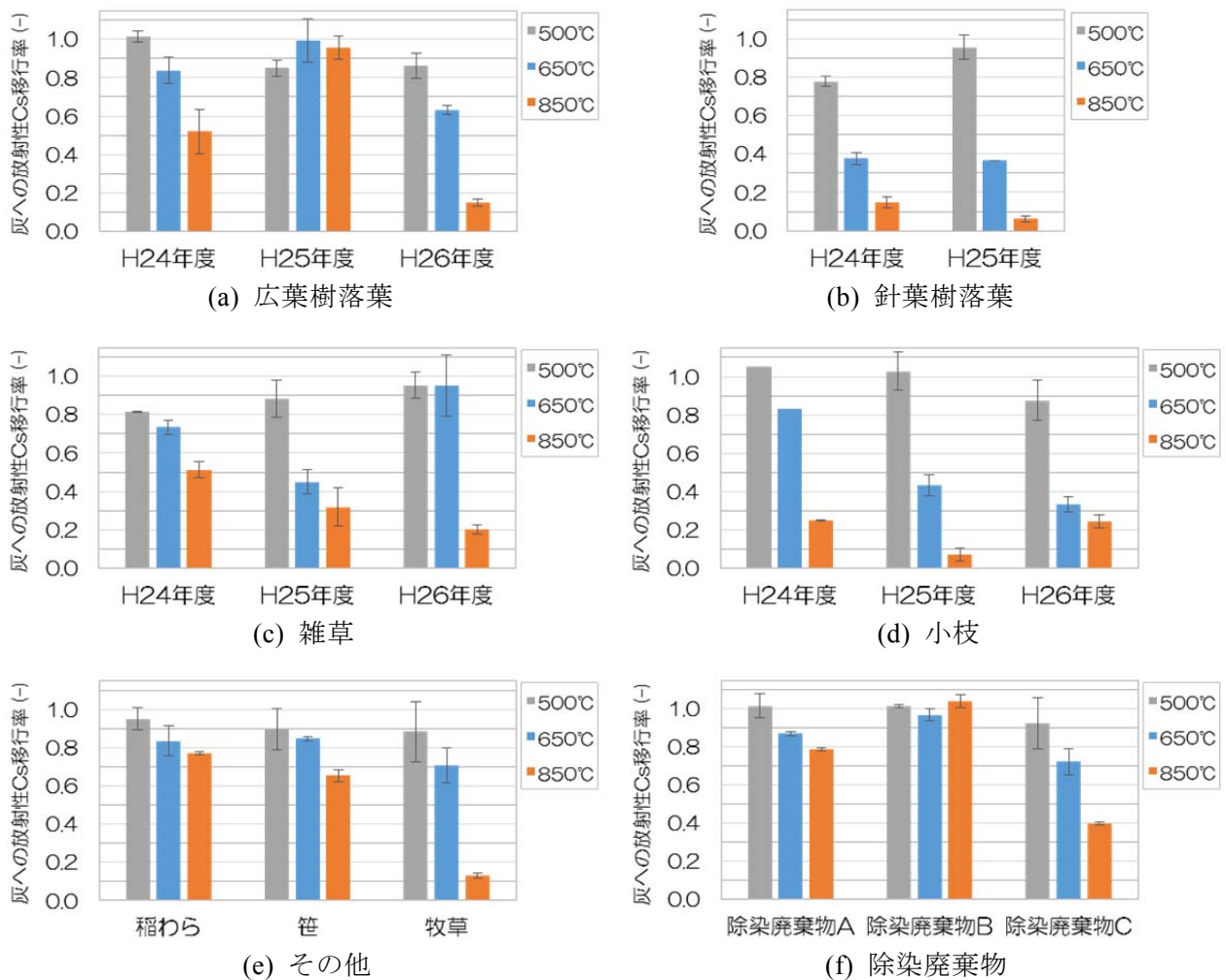


図 1.1-19 各種試料の熱処理における灰への放射性 Cs 移行率

率の大きさは、広葉樹落葉>雑草>小枝>針葉樹落葉の順であった。また、見た目の種分けでは、針葉樹落葉と小枝の移行率の変動が小さく、雑草と広葉樹落葉の移行率の変動が大きいことがわかった。そこで、その他（上記の区分としては雑草に分類されるが、明確に区別できたもの）という個々の種別を作り、明確な種ごとの移行率を調査した。稲わらと笹については、処理温度が高くなっても灰への移行率はあまり下がらず、比較的揮散しにくい試料であったが、牧草は850°Cにおける移行率が低く、H26年度雑草と似た傾向を示した。明確に種ごとに分けて調査した結果、やはり、種ごとに移行率が大きく変化していた。見た目で分けた雑草（実際には多様な雑草の混合物）の試験結果において移行率が大きくばらついた原因は個々の移行率の差が反映されたものと考えられる。また、広葉樹落葉の結果の大きなばらつきについても同様な原因が予想される。

以上のように見た目の種分けは同一でも灰への移行率の傾向が異なるものがあるため、ある程度の変動を踏まえて処理計画を検討する必要がある。また、変動をより精緻なものとするには、より多くのデータを取ることが必要である。さらに、3種類の実際の除染廃棄物を試料として試験を行い、灰への移行率を調査した。その結果、灰への移行率は全体的に高めであるが、やはり移行率にはある程度の差が生じていた。個別も含めてこれらの移行率の差を理解するために、次節

に元素組成の関係を整理する。

	灰への放射性Cs移行率(-)	
	平均	標準偏差
広葉樹落葉	0.542	0.403
針葉樹落葉	0.104	0.060
雑草	0.344	0.157
小枝	0.189	0.101

表 1.1-5 種分けごとの移行率の平均とばらつき (850°C処理)

### (c) 被焼却物の元素組成と灰への放射性Cs移行率の関係

個別の種ごとに放射性Csの移行率が異なっていたことから、被焼却物の元素組成と移行率との関係を整理した。表1.1-6に試験に供した試料の主要な元素組成の一覧を示す。さらに、これまでの研究より<sup>4-5)</sup>、挙動の影響元素としてカルシウム (Ca)、ケイ素 (Si)、塩素 (Cl) と考えていることから、それらの3成分の相対的な割合を正三角形のグラフにプロットし、元素組成比と灰への移行率を整理した。3元素の影響として、これまでの研究<sup>1-3)</sup>から、Ca/Si比が高く、Cl濃度が高い場合には、放射性Csの揮発性が高くなること、つまり、灰への移行率が低くなることが指摘されている。

表 1.1-6 各種試料の元素組成

		元素組成 (mol/kg-dry)								
		C	H	O	N	S	Cl	Al	Ca	Fe
H24	広葉樹落葉	32.2	55.3	29.4	0.71	0.031	0.039	0.133	0.649	0.038
	針葉樹落葉	36.7	63.4	28.0	1.20	0.031	0.034	0.070	0.247	0.020
	雑草	31.8	53.0	30.7	1.01	0.034	0.031	0.159	0.130	0.052
	小枝	38.9	66.0	27.9	0.41	0.012	0.020	0.014	0.137	0.003
H25	広葉樹落葉	36.7	52.9	28.1	0.44	0.016	0.023	0.015	0.640	0.006
	針葉樹落葉	41.8	60.0	25.7	0.53	0.026	0.188	0.011	0.614	0.005
	雑草	35.6	57.0	28.6	2.38	0.120	0.071	0.023	0.250	0.008
	小枝	40.2	58.1	28.2	0.21	0.010	0.014	0.003	0.589	0.001
H26	広葉樹落葉	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.041	0.069	0.096	0.434	0.021
	小枝	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.012	0.011	0.006	0.115	0.003
	稲わら	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.023	0.021	0.004	0.057	0.003
	笹	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.047	0.076	0.013	0.061	0.005
	牧草	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.067	0.175	0.102	0.082	0.027
	除染廃棄物A	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.028	0.027	0.491	0.248	0.127
	除染廃棄物B	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.041	0.016	0.647	0.309	0.188
	除染廃棄物C	n.m.	n.m.	n.m.	n.m.	0.044	0.109	0.626	0.238	0.208

		元素組成 (mol/kg-dry)								
		K	Mg	Na	P	Si	B	Zn	Cs	Sr
H24	広葉樹落葉	0.233	0.165	0.028	0.038	0.997	n.m.	9.79E-04	7.52E-06	n.m.
	針葉樹落葉	0.138	0.095	0.015	0.048	0.185	n.m.	7.34E-04	7.52E-06	n.m.
	雑草	0.128	0.091	0.014	0.062	1.25	n.m.	9.18E-04	7.52E-06	n.m.
	小枝	0.105	0.037	0.012	0.021	0.043	n.m.	4.59E-04	7.52E-06	n.m.
H25	広葉樹落葉	0.123	0.059	0.005	0.060	1.39	4.61E-03	1.73E-04	1.20E-06	9.36E-04
	針葉樹落葉	0.110	0.101	0.012	0.020	0.052	2.68E-03	4.86E-04	7.96E-07	1.52E-03
	雑草	1.09	0.073	0.010	0.172	0.557	1.32E-03	1.60E-03	1.24E-06	7.15E-04
	小枝	0.047	0.031	0.004	0.011	0.013	1.10E-03	2.98E-04	7.67E-07	5.86E-04
H26	広葉樹落葉	0.358	0.109	0.026	0.042	0.504	3.56E-03	4.59E-04	9.40E-07	1.12E-03
	小枝	0.065	0.018	0.003	0.009	0.041	6.20E-04	1.27E-04	2.03E-07	4.68E-04
	稲わら	0.321	0.045	0.004	0.024	1.45	2.31E-04	1.12E-03	1.13E-07	7.36E-05
	笹	0.238	0.040	0.004	0.032	1.34	5.69E-04	6.88E-04	3.12E-07	1.20E-04
	牧草	0.613	0.117	0.013	0.102	0.461	3.98E-04	7.34E-04	1.09E-06	3.99E-04
	除染廃棄物A	0.216	0.080	0.006	0.031	2.11	1.39E-03	1.21E-03	3.54E-06	5.71E-04
	除染廃棄物B	0.159	0.142	0.010	0.068	3.38	1.53E-03	1.49E-03	5.64E-06	6.85E-04
	除染廃棄物C	0.454	0.195	0.094	0.069	2.26	1.16E-03	9.63E-04	4.59E-06	6.11E-04

n.m.・・・未測定

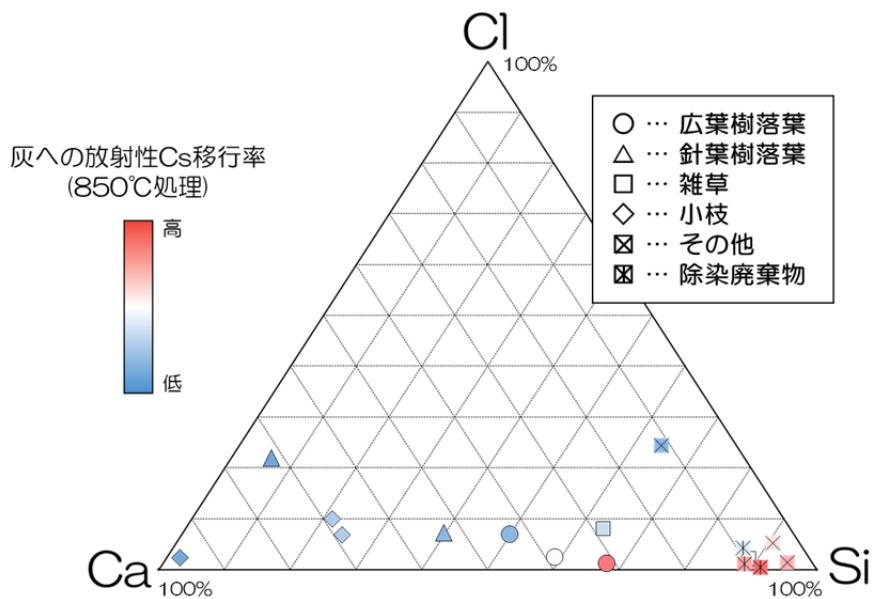


図 1.1-20 Ca-Si-Cl 三角図(灰への放射性 Cs 移行率と元素組成の関係)

組成比と850°Cの移行率の関係を図1.1-20に示す。プロットの色は850°C処理における灰への移行率を表し、赤色から青色になるにつれ放射性Csの移行率が低くなる、つまり、揮散しやすいことを示している。図から明らかなように、Siに対するCaの割合、つまりCa/Si比が大きいほど、さらに、Clの割合が大きいほど移行率が低くなる傾向が確認できた。また、一般的にCl濃度はCaやSiに比べて低いものの、放射性Csの挙動に及ぼす影響が大きいこともわかった。Clの組成比として0.1程度あればかなり揮発率が高い、つまり、灰への移行率が低いと予想される。小枝と針葉樹落葉については、Ca/Si比が高いことに加えて、Cl濃度がある程度高いことからどのサンプルにおいても灰への移行率が低くなったと考えられる。一方、除染廃棄物の灰への移行率が高い傾向は極めて低いCa/Siが原因であると予想される。

以上の結果から、被焼却物の元素組成をCa-Si-Clの三角図にプロットすることで、熱処理における灰への放射性Csのおおまかな移行性を簡単に把握することができると考えられる。

#### (d) 添加剤による移行率の制御

上述のとおり、被焼却物の元素組成が熱処理における放射性Csの挙動に重要であることから、意図的に元素組成を変えることで放射性Csの挙動を制御できる可能性を考え、添加剤の効果を検討した。被焼却物には、灰への放射性Cs移行率が小さい（揮散しやすい）ことが特徴的であるH25年度に採取した針葉樹落葉および小枝を、添加剤には非晶質シリカ（SiO<sub>2</sub>）および粘土鉱物の一種であるベントナイトを用いて、処理温度850°Cとしてラボ燃焼試験を行った。図1.1-21に添加剤の濃度と移行率の関係を示す。どちらの試料も添加剤の量を増やすことで灰への移行率が上がる（揮散しにくくなった）ものの、より小枝に対して効果が高いことが分かった。三角図にまとめた結果を図1.1-22に示すが、小枝と比較して針葉樹落葉はClの割合が高く、これが添加剤の効果を弱めたものと考えられる。また、添加剤の種類については、非晶質シリカよりベントナイトの効果が高かった。Siの割合は同じ添加濃度において非晶質シリカの方が大きいことから、元素組成以外の効果が考えられる。この理由は今のところはっきりしていないが、ベントナイトは放射性Csの吸着効果を持つことが知られており、高温においてもその効果が維持できるかどうか今後検証する必要がある。また、データとして示さないが、灰への移行率が高い試料にCaやCl系の添加剤を加えて処理をすることで、移行率を下げる効果も確認している。以上の結果から、添加剤等により被焼却物の元素組成を変えることで、熱処理における放射性Csの挙動を制御できる可能性が示唆された。

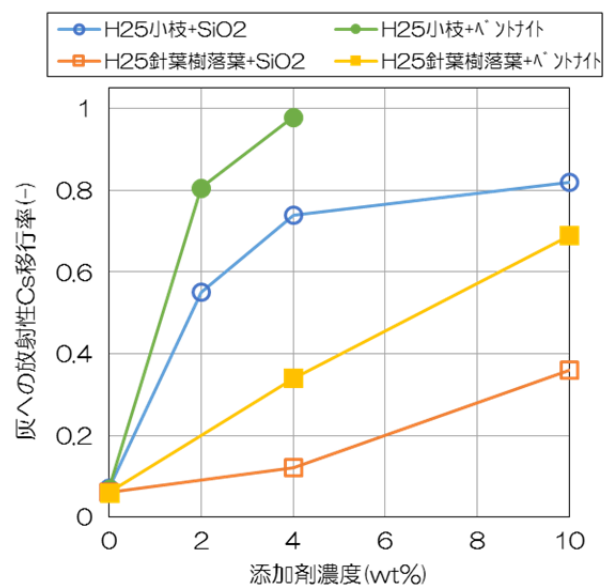


図 1.1-21 移行率と添加剤濃度の関係

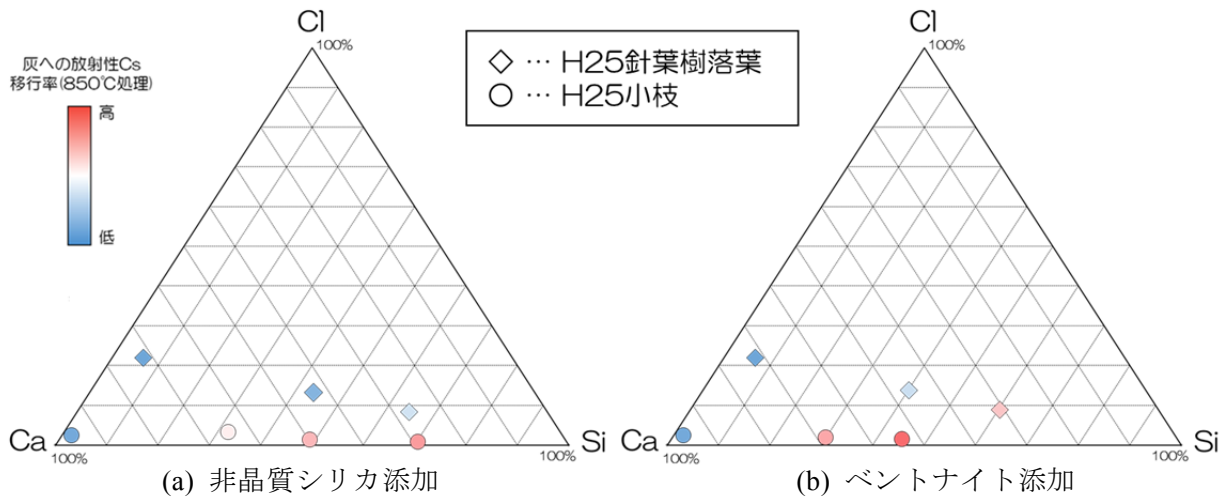


図 1.1-22 添加剤による元素組成の変化と移行率の関係

## 2) 熱処理灰のX線回折分析

### (a) 熱処理灰に含まれる化合物の形態と放射性Csの挙動について

被焼却物の元素組成が熱処理における放射性Csの挙動に重要であることは上述のとおりだが、ここでは処理灰の化合物形態に注目し、X線回折 (XRD) 分析を行った。なお、処理灰に含まれるCsはごく微量であるため、放射性セシウム化合物は検出されないが、試料毎に含まれる結晶相の特徴から放射性Csの挙動との関連について推察することを目的とした。得られたスペクトルからデータベース検索してヒットした化合物の一覧を表1.1-7に示す。ピーク強度が強いものと弱いもの2種類に分類したが、この判断は主観的な側面もあり、また、化合物毎に結晶性が異なることから、ピーク強度で定量的な比較ができないため、あくまでも目安として示すものである。

広葉樹落葉は $\text{CaCO}_3$ が主体であり、加熱温度が高くなると分解されて $\text{CaO}$ に変化することが確認された。また、H24年度とH26年は比較的似た組成であったが、灰への移行率の高かったH25年度については、amorphous (非晶質) のブロードなピークが確認されたことが異なる点であった。移行率が低かった針葉樹や小枝についても、ピーク強度の小さいものに若干の違いはあるものの、 $\text{CaCO}_3$ が主体であった。なお、移行率に最も違いが見られた雑草は、存在する化合物の種類も大きく異なっており、その他については、稲わらと笹がほとんど同じ組成、牧草はH26雑草と似た組成であることが特徴的であった。

次に、灰への放射性Cs移行率との関連について比較したところ、灰への移行率の高いH25広葉樹落葉や稲わら、笹において、amorphous (非晶質) のブロードなピークの存在が共通していた。もみ殻に含まれる非晶質シリカ ( $\text{SiO}_2$ ) が  $800^\circ\text{C}$  付近で Cristobalite ( $\text{SiO}_2$  の結晶多形の一つ) へと結晶化することが報告<sup>6)</sup>されていることから、 $850^\circ\text{C}$  の処理において確認された Cristobalite は非晶質シリカ由来であると考えられる。また、非晶質を有する灰の放射性Cs含有量が高いことは、都市ごみ焼却灰において、非晶質部に安定Csが取り込まれているという報告<sup>7)</sup>の妥当性を示唆している。一方、灰への移行率が低い試料について比較したところ、一部例外はあるものの、低温の処理において共通してKClの存在が確認された。カリウム (K) と放射性セシウム (Cs) は同じアルカリ金属であり、似た挙動を示すことが一般的に知られていることから、カリウムと同様にCsClとして存在している可能性が考えられる。なお、AlbiteやGehlenite、あるいは雲母と

表 1.1-7 熱処理後の灰に含まれる結晶性成分

種類	採取年度	処理温度 (°C)	同定された成分	
			ピーク強度大	ピーク強度小
広葉樹落葉	H24	500	CaCO <sub>3</sub>	KCl, SiO <sub>2</sub> , Albite, Gehlenite
		650	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	SiO <sub>2</sub> , Albite
		850	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	SiO <sub>2</sub> , Albite
	H25	500	CaCO <sub>3</sub> ,amorphous	-
		650	CaCO <sub>3</sub> ,amorphous	-
		850	amorphous	CaCO <sub>3</sub> , CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ], Cristobalite
	H26	500	CaCO <sub>3</sub>	KCl, SiO <sub>2</sub>
		650	-	KCl, SiO <sub>2</sub> , CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]
		850	-	SiO <sub>2</sub> , CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]
針葉樹落葉	H24	500	CaCO <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub> , Albite, Gehlenite
		650	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	SiO <sub>2</sub> , Albite, Gehlenite, Ca <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub>
		850	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	SiO <sub>2</sub> , Gehlenite, Ca <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub>
	H25	500	CaCO <sub>3</sub>	KCl
		650	CaCO <sub>3</sub>	KCl, CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ], Aragonite
		850	CaCO <sub>3</sub>	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ], Aragonite
雑草	H24	500	SiO <sub>2</sub> , CaCO <sub>3</sub>	Albite
		650	SiO <sub>2</sub>	CaCO <sub>3</sub> , Albite, Gehlenite
		850	Cristobalite, SiO <sub>2</sub>	CaCO <sub>3</sub> , Albite, Gehlenite
	H25	500	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	KCl
		650	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	-
		850	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	-
	H26	500	KCl, SiO <sub>2</sub>	CaCO <sub>3</sub> , K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
		650	KCl	CaCO <sub>3</sub> , SiO <sub>2</sub> , K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
		850	-	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
小枝	H25	500	CaCO <sub>3</sub>	-
		650	CaCO <sub>3</sub>	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ], Aragonite
		850	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	CaCO <sub>3</sub> , Aragonite
	H26	500	CaCO <sub>3</sub>	KCl
		650	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	CaCO <sub>3</sub>
		850	CaO[Ca(OH) <sub>2</sub> ]	-
その他	稲わら	500	amorphous	-
		650	amorphous	-
		850	amorphous, Cristobalite	Gehlenite
	笹	500	amorphous	-
		650	amorphous	-
		850	amorphous, Cristobalite	Gehlenite
	牧草	500	KCl	SiO <sub>2</sub> , K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , 雲母
		650	KCl	SiO <sub>2</sub> , K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , 雲母
		850	-	SiO <sub>2</sub> , K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , 雲母
除染廃棄物	A	500	SiO <sub>2</sub>	CaCO <sub>3</sub> , 雲母
		650	SiO <sub>2</sub>	Albite, 雲母
		850	SiO <sub>2</sub>	Albite, 雲母
	C	500	SiO <sub>2</sub>	雲母
		650	SiO <sub>2</sub>	Albite, 雲母
		850	SiO <sub>2</sub>	Albite, 雲母

Albite…NaAlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, Gehlenite…Ca<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>SiO<sub>7</sub>, Aragonite…CaCO<sub>3</sub>, Cristobalite…SiO<sub>2</sub>

いった鉱物が検出されたものもあるが、その由来については今のところはっきりとしていない。また、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ については、熱処理で生成したものではなく、 $\text{CaO}$  が保管時に吸湿して変化したものであることを確認している。

## (5) 結論

H24~H26年度にかけて採取した14種の汚染バイオマスと3種の除染廃棄物について、マッフル炉を用いたラボ燃焼試験を実施した。3種類の温度（500℃、650℃、850℃）で熱処理し、残存灰への放射性Cs移行率について調べた結果、500℃では全ての試料に共通して、ほとんどの放射性Csが残存灰に留まる（揮散しない）のに対し、大半の試料において処理温度が上がるにつれ、灰への移行率は下がる（揮散しやすい）傾向にあった。その程度は、試料の種類によって異なり、例えば、850℃処理における灰への移行率の平均は、広葉樹落葉>雑草>小枝>針葉樹落葉という順であった。また、移行率が高いほどサンプルごとの変動率も大きかった。熱処理における放射性Csの挙動に影響を与える因子の一つに、被焼却物の元素組成が挙げられることから、被焼却物の元素組成とラボ燃焼試験で得られた灰への放射性Cs移行率との関係について調べた結果、Ca/Si比およびClが高いほど灰への移行率が低くなる傾向が確認できた。また、そのような元素組成比にあるのは小枝と針葉樹落葉であり、概ね安定して灰への残存率が低い結果となっている。被焼却物に非晶質シリカやベントナイトを添加剤として加えることで、熱処理における灰への放射性Cs移行率が高まったことから、元素バランスを変化させることで、放射性Csの挙動を制御できる可能性が示唆された。

熱処理灰の結晶相について分析したところ、灰への移行率が高いものには $\text{SiO}_2$ （特に非晶質）が多く含まれていた。また、灰への移行率が低い、つまり、放射性Csの揮発率が高いものに共通してKClが確認されたことから、同じアルカリ金属であるCsも塩化物として存在し、揮発していることが予想された。

## 参考文献

- 1) 倉持秀敏、由井和子、大迫政浩 焼却過程の放射性セシウムの挙動を再現するための平衡計算の改良と評価、環境放射能除染学会第2回研究発表会講演要旨集, 64 (2013)
- 2) 倉持秀敏、由井和子、野村和孝、大迫政浩 汚染廃棄物の燃焼における放射性Csの挙動に与える組成と温度の影響、廃棄物資源循環学会第24回研究発表会講演要旨集, 458-459 (2013)
- 3) 倉持秀敏、事故由来放射性物質汚染廃棄物の熱処理に関するこれまでの研究成果、環境放射能除染学会誌, 2 (2), 71-84 (2014)
- 4) 倉持秀敏、野村和孝、大迫政浩 汚染バイオマスのラボ燃焼実験による放射性セシウムの挙動解析、環境放射能除染学会第3回研究発表会講演要旨集, 11 (2014)
- 5) 倉持秀敏、野村和孝、由井和子、大迫政浩 汚染バイオマスの燃焼における放射性Csの挙動と組成が与える影響、廃棄物資源循環学会第25回研究発表会講演要旨集, 369-370 (2014)
- 6) 山本由華、奥野正幸、小矢野幹夫、片山信一 もみ殻を構成するシリカの加熱変化、日本鉱物学会 2004 年度年会講演要旨集
- 7) Saffarzadeh A, Shimaoka T, Kakuta Y, Kawano T. Cesium distribution and phases in proxy experiments on the incineration of radioactively contaminated waste from the Fukushima area. J.



## 1.2 洗浄・水処理技術

### 1.2.1 飛灰洗浄技術の開発・評価

#### (1)はじめに

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あるが、減容化のための焼却に伴って発生する飛灰は放射能濃度が高く、また飛灰中の放射性セシウムは水への溶出性が極めて高いことから、溶出防止対策を施して処分することが定められている。しかしながら、溶出防止対策を施した処分は進んでおらず、飛灰はフレコンに詰めた状態でごみ焼却施設等において保管されているのが現状である。また、指定廃棄物が多量に発生し、保管が逼迫している都道府県において、国が最終処分場などの確保を目指す方針が示されたが、保管場所には限界があり、保管されている飛灰を処理して既設の処分場で埋立処分しなければ、ごみ処理の継続自体が困難な状況となっているほど緊急を要する自治体も多い。

このような背景を鑑み、国立環境研究所では、2013年度までに飛灰洗浄技術の開発を実施してきた。これは、焼却灰の資源化のためのWOW (Wash Out Waste) システムの開発研究1、2)を応用し、水への溶出性の高い飛灰中の放射性セシウムを予め洗浄処理を行うことにより、飛灰の放射能濃度を指定廃棄物の基準である8,000 Bq/kgよりも十分に低い濃度レベルまで低減し、かつ、埋立処分後に水に接触した場合の溶出性を低減することで、通常の管理型埋立に近い簡易な方法で処分することを可能とする対策技術であり、効率性および安全性の観点から、個々の単位操作の選定とシステム構成を検討し、技術資料3)をまとめた。

2014年度は、飛灰洗浄技術の適用後の設備の解体を想定した検討を進めた。具体的には、飛灰洗浄設備の解体時の汚染検査方法や作業被ばく可能性、発生廃棄物の質的・量的特性などに関する基礎的データを収集し、今後の指針改定に向けて留意すべき事項をまとめることを目的として、過年度に実施した飛灰洗浄ベンチ試験の装置をモデルとして、各種装置を可能な限り解体し、内部も含めた汚染検査を実施することとした。なお、実際の解体を伴う調査結果については別途報告することとし、今回は解体に先立って実施した調査について報告する。

#### (2)方法

飛灰洗浄設備の解体時の作業被ばく防止及び適切な処分についての知見を得るため、実際の解体に先立って、タンクや装置の表面汚染密度の調査を行った。表面汚染密度はGMサーベイメータTGS-146(日立アロカメディカル株式会社製)を用いて、対象物の表面から0.5~10cmの距離(極力対象物に近づけた位置)に検出器を沿わせて装置全体を移動させ、表面の計数率を測定した。その際、表面汚染密度が100cpmを超える場所があれば場所を特定して清掃し、再測定を実施した。なお表面汚染密度は測定値からバックグラウンドを引いた値とし、除染が必要な閾値は1,300cpm(4 Bq/cm<sup>2</sup>)とし、cpmからBq/cm<sup>2</sup>への換算もこの比で行った。

また併せて、NaIシンチレーションサーベイメータNHC710B1-AYYYY-S(富士電気株式会社製)を用いて、対象物の表面から1mの距離にて検出器を床から装置上方まで移動させて空間線量率を測定した。なお対象物による追加的な空間線量率は測定値からバックグラウンドを引いた値とした。

### (3) 結果

飛灰洗浄ベンチ試験に用いた各種装置について、表面汚染密度の調査を行った（図 1.2-1）。その結果、どの測定対象物においても表面汚染密度はおおむね  $0.1\text{Bq}/\text{cm}^2$  以下であり、除染が必要と判断されるような汚染は確認されなかった（表 1.2-1）。なお 11) 乾式粉砕機でのみ、一部で 100 cpm を超える箇所があったため、状況を詳細に確認したところ、飛灰の残留が見られた。清掃を行った後で再度測定した結果、数値の低下が見られ、他の装置と同程度の数値となった。



図 1.2-1 表面汚染密度の調査の様子

表 1.2-1 表面汚染密度の測定結果（括弧内の数値は清掃後の値）

対象物	計数率 (cpm)			表面汚染密度 ( $\text{Bq}/\text{cm}^2$ )
	BG	対象物	正味	
1) 粉塵ユニット	70	70~120	0~50	0~0.15
2) フィルタープレス	70	70~90	0~20	0~0.062
2-1) ろ布	70	80	10	0.031
3) 浄水セット	55	55~90	0~35	0~0.11
3-1) 膜	55	60	5	0.015
4) 吸着塔ユニット	70	70~100	0~30	0~0.092
5) 吸着塔ユニット遮蔽体	70	70~150	0~80	0~0.25
6) 原水タンクユニット	70	90~120	20~50	0.062~0.15
7) 濃縮水タンクユニット	80	80~110	0~30	0~0.092
8) 吸着塔保管箱	100	100~130	0~30	0~0.092
9) 集塵装置	60	60~90	0~30	0~0.092
9-1) フィルタ	60	80	20	0.062
10) レシーバタンク	70	70~90	0~20	0~0.062
11) 乾式粉砕機 <sup>※1</sup>	70	70~250 (70~100)	0~180 (0~30)	0~0.55 (0~0.092)
12) 湿式粉砕機	90	90~100	0~10	0~0.031

13) 吸着塔試作機	70	70~150	0~80	0~0.25
14) 配管・配線類	90	120	30	0.092
15) 倉庫/床面: ベニア養生	90	90~130	0~40	0~0.12
16) 倉庫/壁面	80	80~90	0~10	0~0.031

また、測定対象物から1mの位置での空間線量率についてサーベイした結果、バックグラウンドが0.09  $\mu\text{Sv/hr}$  であるのに対して、最大でも0.15  $\mu\text{Sv/hr}$  であった(図1.2-2、表1.2-2)。バックグラウンドを含めても産業廃棄物としての引き取り基準(業者の自主基準)を満足するものと考えられた。なお表1.2-2において、括弧内の数値は対象物による追加分(測定値からバックグラウンドの値を引いた値)であり、負の値となる場合は0とした。



図 1.2-2 空間線量率の調査の様子

表 1.2-2 空間線量率(対象物から1m)の測定結果

対象物	空間線量率 ( $\mu\text{Sv/hr}$ )			
	東	西	北	南
試験エリアのバックグラウンド (BG)	0.10	0.08	0.11	0.08
BG 平均値	0.09			
1) 粉塵ユニット	0.07 (0)	0.07 (0)	0.07 (0)	0.11 (0.02)
2) フィルタープレス	0.06 (0)	0.06 (0)	0.07 (0)	0.07 (0)
3) 浄水セット	0.05 (0)	0.07 (0)	0.07 (0)	0.09 (0)
4) 吸着塔ユニット	0.06 (0)	0.05 (0)	0.06 (0)	0.06 (0)
5) 吸着塔ユニット遮蔽体	0.07 (0)	0.06 (0)	0.10 (0.01)	—
6) 原水タンクユニット	0.13 (0.04)	0.10 (0.01)	0.08 (0)	0.13 (0.04)
7) 濃縮水タンクユニット	0.12 (0.03)	0.13 (0.04)	0.13 (0.04)	0.15 (0.06)

8) 吸着塔保管箱	0.12 (0.03)	0.10 (0.01)	—	0.10 (0.01)
9) 集塵装置	0.07 (0)	0.07 (0)	0.07 (0)	0.08 (0)
10) レシーバタンク	0.07 (0)	0.07 (0)	0.07 (0)	0.07 (0)
11) 乾式粉碎機	0.06 (0)	0.06 (0)	0.06 (0)	0.05 (0)
12) 湿式粉碎機	0.11 (0.02)	0.12 (0.03)	0.10 (0.01)	0.12 (0.03)
13) 吸着塔試作機	0.07 (0)	0.07 (0)	0.06 (0)	0.06 (0)
14) 配管・配線類	0.10 (0.01)	0.09 (0)	0.10 (0.01)	0.09 (0)
15) 倉庫/床面：ベニア養生	0.10 (0.01)	0.08 (0)	0.11 (0.02)	0.08 (0)

#### (4) 考察

装置・配管を外部から全体的にサーベイした今回の調査では、1,300 cpm (4 Bq/cm<sup>2</sup>) 以上の汚染は確認されなかった。従って、飛灰洗浄を実施した装置外部に顕著な汚染が残ることはなく、特段の除染作業は発生しなかった。従って、飛灰洗浄を実施した設備においては、放射性セシウムが浸透・吸着するような表面状態ではないと考えられる。なお一部で、若干の表面汚染密度の上昇(最大 250cpm)が見られた乾式粉碎器では、固着飛灰を除去することで十分に数値が下がったことから、このようなケースでは、通常の清掃で対応可能であることが示唆された。

今回の調査では顕著な汚染がなかったことから、どの程度の測定密度で調査を行えば顕著な汚染箇所を見落とさずに把握できるか、について検討することはできていない。しかし、原飛灰の溶解、濃縮、吸着など、一連のプロセスにおいて放射性セシウムが高濃度に存在しうる設備・箇所を重点的に調査し、汚染がないことが確認できれば、それ以外の部分については、測定を簡素化できる可能性がある。

#### (5) 課題

今回の調査では顕著な汚染がなかったことから、どの程度の測定密度で調査を行えば顕著な汚染箇所を見落とさずに把握できるか、について検討することはできていない。また、同じ理由から、適切な除染方法についても検討できていない。装置の奥部、配管内部等手の届かない箇所は今回測定していないため、後日実施される「飛灰洗浄設備の解体撤去手法に係る調査」では、可能な限り装置・配管を解体し汚染検査を実施することで、隠れた汚染がないことを確認する必要がある。また、主要な装置に限っては専門業者による汚染検査のクロスチェックを行うことで、確実性・信頼性を向上することができると考えられる。併せて、もしも汚染が確認された場合は、除染による表面汚染密度低減効果についても把握できるものと考えられた。

#### (6) まとめ

飛灰洗浄設備の解体時の作業者の被ばく防止及び適切な処分についての知見を得るため、汚染状況調査を実施した。各種装置の表面汚染密度および1 mの距離での空間線量率の測定を行った結果、飛灰洗浄を実施した装置外部に顕著な汚染は認められず、解体作業での被ばくや汚染の飛散等の恐れが極めて少ないことが示唆された。また、若干の表面汚染密度の上昇(最大 250 cpm)

が見られた乾式粉砕器でも、明らかな固着飛灰を除去することで十分に数値が下がったことから、通常の清掃作業を行っていただければ問題とはならないと考えられた。

今後、各種装置や配管の解体に伴う内部の汚染検査を行うことで、解体時の汚染検査方法や作業者被ばく可能性、発生廃棄物の質的・量的特性などに関する基礎的データを収集し、解体・撤去にあたってのガイドライン作成に資するものと考えられる。

## 参考文献

- 1) Sotaro.Higuchi, and M.Hanashima (2000) Wash-out Solid Waste Landfillsystem, Proceedings of the Asian-Pacific Landfill Symposium FUKUOKA 2000, pp276-282.
- 2) 樋口壯太郎、古田秀雄、牛越健一、高畑恒志、松本真 (2004) 廃棄物洗浄型埋立処理 (WOW) システムの導入、第 25 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、294-296.
- 3) (独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター (2014) 飛灰洗浄技術に関する技術資料 (施設性能・設計に係る指針)、pp.25.

### 1.2.2 浸出水処理技術の開発・評価

#### (1)はじめに

通常、埋立処分場には、雨水が廃棄物層を通過してしみ出てきた水（浸出水）を処理する施設が併設されているが、原発事故後、一部の処分場では浸出水中に放射性セシウムが検出された。特措法では、廃棄物層への雨水の浸透を減らしたり、放射性セシウムの浸出水への移行を防いだりする埋立方法が定められているが、現場では、万が一に備えて対策を準備したいというニーズが存在する。実際、最終処分場において埋め立てられた飛灰等からの放射性セシウムの溶出については、条件によって様々ではあるものの、埋立高さ 3m、厚さ 50cm の土壌層を設置した場合、ピーク濃度が検出されるのは、土壌層直下でも数十年後、既存の廃棄物層を通過した後の集水管到達点においてはさらに数十年後であることが試算されており 1)、現時点で放射性セシウムが検出されていないことは将来を保証しない。

そこで、万が一、最終処分場において水溶性の放射性セシウムが溶出した場合を想定し、浸出水中の放射性セシウムを低濃度域で連続的にモニタリングする装置を開発し、アラートシステムを構築することを目的として検討を行った。

#### (2)方法

本装置は、NaI (Tl) シンチレーション式放射能測定装置のマリネリ容器に吸着剤を充填し、測定対象とする浸出水を吸着剤充填マリネリ容器に通水させる構造となっている。通水された浸出水中の放射性セシウムは吸着剤に蓄積され、これを定期的に測定することで、その差分と通水量から低濃度放射性セシウム測定を現地において実質的に連続でモニタリングするものである。基本原理については既に関係・特許化が済んでいるものであり 2)、今回実際に、極低濃度 (0.01～0.1 Bq/L) のレベルで浸出水中の放射性セシウムの濃度上昇の兆しを見つけるためのモニタリングシステムとして設計・製作を行った。装置の模式図を図 1.2-3 に示す。

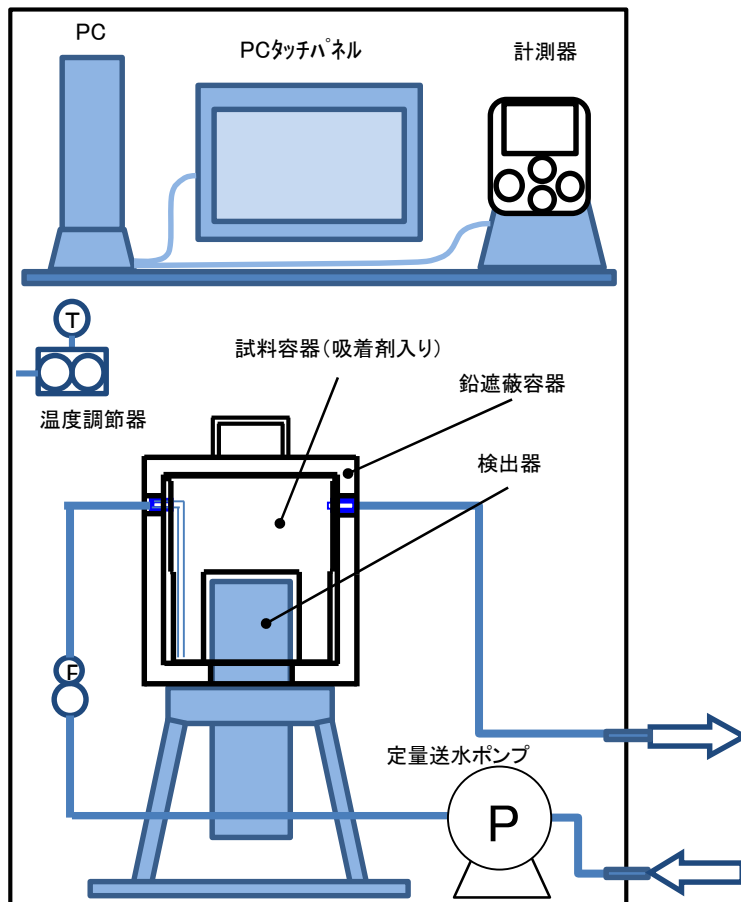


図 1.2-3 低濃度放射性セシウム含有水のモニタリング装置の模式図

### (3) 結果

本装置は、吸着剤充填マリネリ容器に通水した検水の容量と検出放射エネルギーから検体の放射性セシウム由来の放射能濃度 (Bq/L) を自動計算することとしている。放射エネルギーの測定においては、低濃度域における吸着剤の吸着速度および分配係数が重要なファクターとなる一方、廃棄処分基準を考慮して適宜交換することにより、装置の利用が継続できる。今回、埋立地浸出水を対象としてモニタリングを行うことから、吸着性能の安定性が高い吸着剤としてゼオライトを選定した。

また、放射能濃度 (Bq/L) は通水液量から割り戻して計算するため、検水の容量を正確に計測する必要がある。そこで、ゼオライトを規定量充填した上で、通水テストを実施した。吸着剤の吸着速度を考慮し、1時間あたり 1~10L という極めて遅い流速で通水するため、複数の流量計と定量送水ポンプから安定性の高い機種を選定し、流量制御のテストを繰り返した結果、流量計の指示値と実測値の誤差の平均値が 3 L/時間の設定で 3.4%、5 L/時間の設定で 1.7% となり、バラツキも少ないことから、放射能濃度の算出時にも誤差 10% 以内となり、実用に耐えうるものと判断した。

対象とする検水の特性 (pH、塩濃度等) および目的とする検出下限値によっては、放射性セシウムの分配係数の極めて高い紺青を用いることも可能である。この場合、吸着剤の流出を回避するため、不織布に担持したものをを用いる等が考えられる。但し、紺青はアルカリ性で分解性を示すことから、中和プロセスよりも後段から検水を採水する等の配慮が必要である。



図 1.2-4 製作したモニタリング装置の外観

#### (4) 考察

2014年度は、浸出水処理施設において放射性セシウムが検出されるという万が一の事態に迅速に対応するため、通常の分析では不検出となるレベルで放射性セシウムを連続的に検出し、濃度上昇の兆しを見つけるためのモニタリング装置の製作を行った。選定したポンプ等は実用に耐えうるものと判断し、実現場への設置を進めているところである。吸着剤としては性能安定性の高いゼオライトを選定したが、使用後は放射能濃度によってその処分方法が異なる(表 1.2-3)。また、セシウム 134、137 の放射能濃度の値が 1 万 Bq/kg を超える場合、その事故由来廃棄物等の処分業務を行う事業者は電離則に従って放射線防護対策を実施することとされている。従って、使用した吸着剤の交換・処分を含めた運用スキームを構築する必要がある。

今後、現場実証試験を通じて、検水の特性や環境条件等に応じたモニタリング性能を確認するとともに、放射性セシウムの濃度上昇の予測シミュレーションなども併せて検討し、対策技術の確立に繋げていく。

表 1.2-3 廃吸着剤の放射能濃度別の処分方法

廃棄物種類	特定廃棄物(対策地域内廃棄物+指定廃棄物)						特定一般廃棄物	
	放射能濃度(Bq/kg)	基準適合特定廃棄物			8,000 Bq/kg以下		8,000 Bq/kg以下	
	10万超 Bq/kg	8,000超~10万 Bq/kg以下			8,000 Bq/kg以下		8,000 Bq/kg以下	
省令第33号(規則)	第26条第1項	第26条第2項第3号	第26条第2項第2号	第26条第2項第2号ホ(溶出量が少ないもの)	第26条第3項	第26条第4項(溶出が少ないもの)	第29条	第29条第3号ニ
構造等	措置大臣が定める要件を備えた汚染土質の取扱いの取扱いが定められ、かつ、公共の水域及び地下水と遮断されていること	(遮断型相当)	(管理型相当)	(管理型相当)	(管理型相当)	(安定型相当)	(管理型相当)	(管理型相当)
溶出濃度(Bq/L)	-	-	-	Cs137が150Bq/L以下(告示第3号)	-	Cs134+137がND、但し、安定5品目 <sup>*</sup> に限る。(告示109号)	-	Cs134+137がND(告示第6号)
埋立物の前処理	特定廃棄物の種類に応じて前処理(破砕、焼却、固化等)			特定廃棄物の種類に応じて前処理(破砕、焼却、固化等)		-		
埋立物の要件等			廃棄物槽の下に、概ね厚さ50cm以上の土壌層を敷設。加えて、不透水性土壌層を敷設。	廃棄物槽の下に、概ね厚さ50cm以上の土壌層を敷設。			廃棄物槽の下に、概ね厚さ50cm以上の土壌層を敷設。	
下部土壌層	-	-	-	-	-	-	-	-
埋立物表面及び側面	-	-	不透水性土壌層を設置	-	-	-	-	-
層状埋立	-	-	-	一層の厚さが概ね3m以下。一層毎に表面に不透水性土壌層を設置。	一層の厚さが概ね3m以下。一層毎に表面を概ね厚さ50cmの土壌で覆う。	-	一層の厚さが概ね3m以下。一層毎に表面を概ね厚さ50cmの土壌で覆う。	-
ばいじんの埋立	-	-	-	-	雨水浸入防止措置	-	雨水浸入防止措置	-
埋立物の収納	-	-	損傷しにくい容器に収納	-	-	-	-	-
モニタリングの要件等								
地下水測定	地下水等検査項目(別表第3)、ダイオキシン類を埋立開始前及びび年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)、電気伝導率又は塩化物イオンを埋立開始前及びび月1回以上測定				地下水等検査項目(別表第3)を埋立開始前及びび年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)を埋立開始前及びび月1回以上測定		地下水等検査項目(別表第3)、ダイオキシン類を埋立開始前及びび年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)、電気伝導率又は塩化物イオンを埋立開始前及びび月1回以上測定	
浸出液/放流水/浸透水の測定	-	-	【浸出水】 排水基準項目(別表第4)、ダイオキシン類を年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム)、pH、BOD、COD、SS、T-Nを月1回以上測定	【浸出水】 排水基準項目(別表第3)、ダイオキシン類を年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)、BOD又はCODを月一回以上測定	【放流水】 排水基準項目(別表第4)、ダイオキシン類を年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム)、pH、BOD、COD、SS、T-Nを月1回以上測定	-	-	-
空間線量率測定	敷地境界で測定							

\*安定5品目: 廃プラスチック類、ゴムくず、金属くず、ガラスくず・コンクリートくず及び陶磁器くず(廃石膏ボードを除く)、コンクリートの破片その他これに類する不燃物

(環境省廃棄物関係ガイドライン 6) を参考に作成)

(5) 課題

これまでの調査で、RO 膜（逆浸透膜）を用いた高度処理技術を用いることで放射性セシウムを十分に除去できることがわかっているが、現時点で放射性セシウムが検出されていない施設においては、あくまでも万が一に備える対策であるため、RO 膜のような高価な処理プロセスを放射性セシウム対策のためだけに予め導入しておくことは難しい。一方で、いざという時には迅速に対応を開始できる必要があることから、当研究所で開発した「処分場内 Cs 挙動簡易評価システム」を活用し、放射性セシウムが浸出水中で検出される可能性の有無やその時期などを把握するとともに、既存の水処理施設を活用したゼオライトによる吸着処理など、万が一の場合に迅速に対応可能で、かつ安価な対策（万が一に備える準備）についても検討を進める。

(6) まとめ

最終処分場において水溶性の放射性セシウムが溶出した場合を想定し、浸出水中の放射性セシウムを低濃度域で連続的にモニタリングする装置を開発し、アラートシステムを構築することを目的として、検討を行った。吸着性能の安定性が高い吸着剤としてゼオライトを選定し、通水テストを実施した結果、流量計の指示値と実測値の誤差の平均値が 3 L/時間の設定で 3.4%、5 L/時間の設定で 1.7%となり、バラツキも少ないことから、放射能濃度の算出時にも誤差 10%以内となり、実用に耐えうるものと判断した。



今後、現場実証試験を行い、検水の特性に応じた吸着剤の選定、環境条件等に応じたモニタリング性能の確認を進める。

## 参考文献

- 1) 山田正人、遠藤和人、石森洋行、大迫政浩（2013）最終処分過程における挙動と制御、日廃振センター情報、12（4）、18-21.
- 2) 特開 2014-085163「排水中の放射性セシウムの濃度を実質上連続的に測定する方法および装置」

## 1.3 不燃系減容化技術

### 1.3.1 汚染コンクリートの放射性 Cs 浸透深さ解析と除染

#### (1) 目的とこれまでの知見

飯館村内国道 399 号線沿線における 2013 年度の調査・研究により、チェルノブイリでの事例[1]と同じく、コンクリートの放射性 Cs による汚染は表層部分 mm に留まり、水溶性がないことが確認された。したがって、ウォータージェットなどにより表層部分のみを研削することで除染が可能であることを示した[2]。

汚染深さは空間線量と一定の関係にあり、飯館村での測定例は  $6\mu\text{Sv/hr}$  までであったが、大熊町など  $20\mu\text{Sv/hr}$  を超えるようなより高線量区域での除染を考えると、汚染深さの確認が重要である。そこで、関係者の協力の下、コンクリートをサンプリングし、浸透深さを調査した。

#### (2) サンプリング場所

サンプルは、双葉郡浪江町（2 か所 3 試料、北-1～3）及び大熊町（5 か所 13 試料）において行った（図 1.3-1）。サンプリングは湿式のコアドリルを用い、径 50mm 弱長さ 5cm 程度の円柱コアを採取した。採取後は、モルタルにて修復した。大熊町におけるサンプリングの場所の追加情報を以下に示す。

No.1,2：工場内側溝蓋、土間コンクリート（図 1.3-1～4）

No.3～8：津波で倒壊した臨海建築物（図 1.3-5～8）

No.9,10：高線量区域の道路側溝蓋（図 1.3-9 左）

No.11,12,14：コンクリートブロックと大谷石（図 1.3～9 右，10 左）

No.13：道路用コンクリート製品（図 1.3-10 右）

# 放射線量等分布マップ拡大サイト

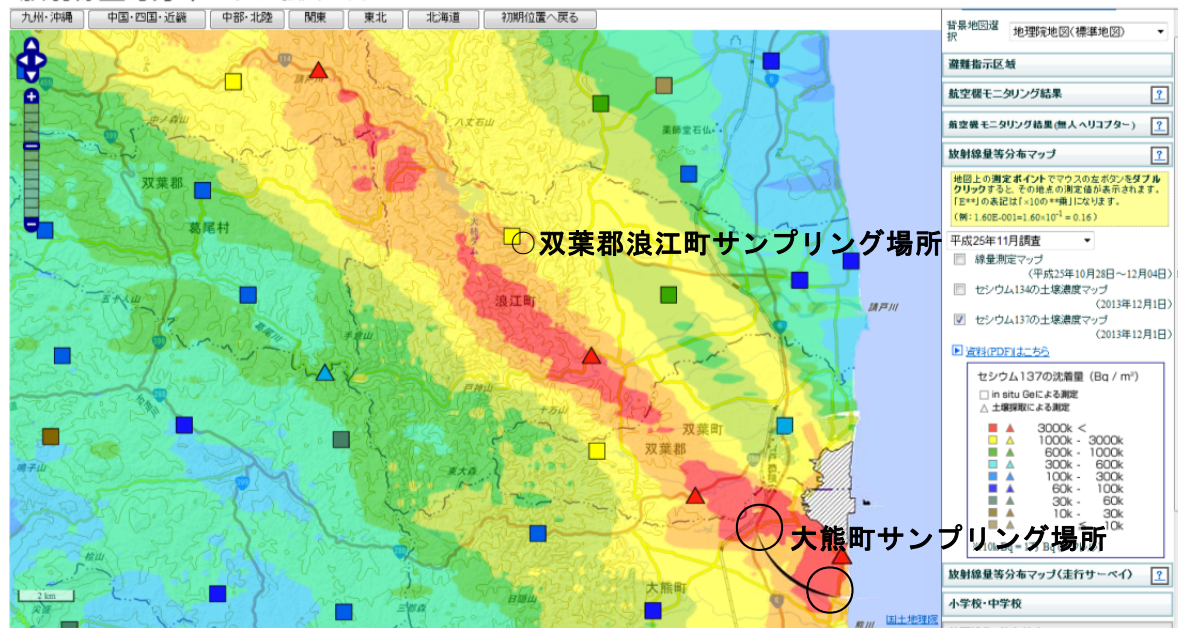


図 1.3-1 大熊町内のサンプリング場所

(出典：放射線量等分布マップ拡大サイト/電子国土

<http://ramap.jmc.or.jp/map/map.html> 2015年5月10日閲覧)



図 1.3-2 浪江町 駐車場端の側溝蓋



図 1.3-3 浪江町(空間線量率 2.8  $\mu$ Sv/hr) 土間コン



図 1.3-4 浪江町 駐車場縁石コンクリート



図 1.3-5 No. 1 工場内側溝蓋(左) No. 2 土間コン(右) (空間線量率 5.9  $\mu$ Sv/hr)



図 1.3-6 倒壊した臨海建築物 No. 3 コンクリート柱北側面(左) No. 4 側溝蓋(右) (空間線量率 5.8  $\mu$ Sv/hr)



図 1.3-7 倒壊した臨海建築物 No. 5 倒壊柱破断面(左) No. 6 倒壊柱表面(右) (空間線量率 5.8  $\mu$ Sv/hr)



図 1.3-8 倒壊した臨海建築物 No.7 倒壊柱破断面(左) No.8 倒壊柱表面(右)  
(空間線量率  $5.8 \mu\text{Sv/hr}$ )



図 1.3-9 No.9, 10 高線量地区側溝蓋(左) (空間線量率  $22.3 \mu\text{Sv/hr}$ )  
No.11 コンクリートブロック(右) No.14 は No.11 の側面 (空間線量率  $12.5 \mu\text{Sv/hr}$ )



図 1.3-10 No.12 大谷石(左) (空間線量率  $12.5 \mu\text{Sv/hr}$ )  
No.13 コンクリート製品ブロック(右) (空間線量率  $6.35 \mu\text{Sv/hr}$ )

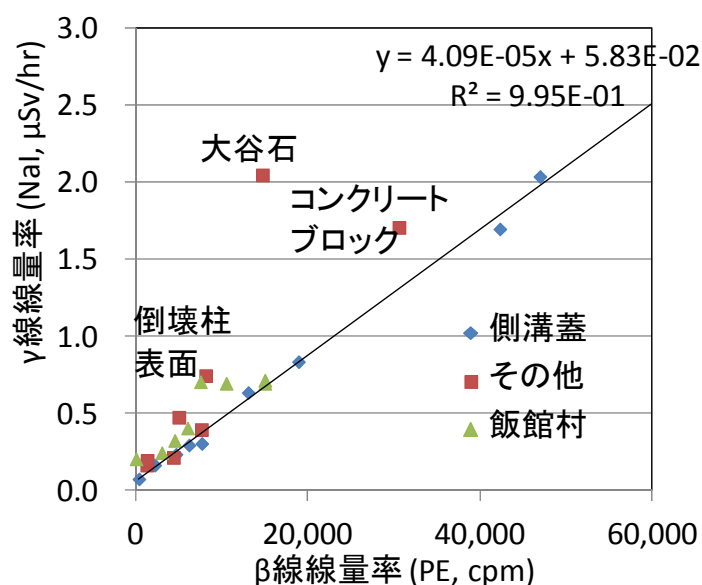


図 1.3-11 β線量率とγ線量率の関係

### (3) β線とγ線の計測値の関係

サンプルをつくばの国立環境研究所構内にてプラスチックシンチレータ PE による β線測定と NaI シンチレータによる γ線測定を行った。両者の相関を図 1.3-11 に示す。

道路側溝については、飯館村と大熊町ではおおよそ同じ関係にあった。今回測定の一部については、大谷石やポーラスなコンクリートブロック（壁用）は β線量率に比べ γ線量率が高くなった。

現在の放射性物質による汚染は Cs-137 によるものが主体と考えられるが、放射性壊変により β線と γ線が放出される。β線のコンクリート中の飛程は 0.2mm 程度であり、γ線はより長距離を透過する。もし、放射性 Cs による汚染が表面に留まるのであれば、β線と γ線の計測値には直線的相関関係が期待できるが、汚染がより深部に及ぶ場合は、表層部分のみからの β線の検出地に比べより深部からの信号を検出する γ線において計数値が高くなる。この関係を把握しておけば、現場調査時にもコンクリートの汚染深さが表層に留まるのか、内部に及ぶのかを判断する目安になりえる。

図 1.3-11 によれば、側溝蓋や舗装コンクリートでは β線と γ線の計数値に一定の直線関係があり、放射性 Cs による汚染は表面に限定されていると推定できる。ここで、β線と γ線の計測は、バックグラウンドが十分低い地域で測定したものであり、高線量率地域での測定では汚染が表面のみであっても環境からの γ線の影響を受け、必ずしもこのような関係は得られない可能性がある。

一方、大谷石やポーラスなコンクリートブロックなど一部のサンプルにおいては同じ β線量率に対して、γ線量率が高くなっている。これは、放射性 Cs が物資のより内部に浸透したと考えれば説明ができる。図 1.3-11 の関係のみからは放射性 Cs の浸透深さは推定できないので、以下に β線ラジオグラフにより、浸透深さの解析を試みた。

#### (4) $\beta$ 線ラジオグラフ

$\beta$ 線ラジオグラフは $\beta$ 線に感度を有するイメージングプレート上に試料を置き、一定時間露光させてから、データを別途読みだすことで、サンプルからの $\beta$ 線の強度分布を測定することができる。影絵と同じ原理であるが、放射線の強度を定量化できる点が特徴である。

図 1.3-12~14 に測定状況と合わせて測定結果を示す。図 1.3-15~18 に一部の試料の詳細な放射性 Cs の分布状況を示す。ラジオグラフの測定では、試料表面を鉛板などにより可能な限り遮蔽したが、漏えいした $\beta$ 線により表面からの拡散がすべての試料で認められた。一方、内部への浸透について観察すると、多くの試料では、放射性 Cs の存在は表層に限定され、内部への浸透が認められる試料も存在した。

内部への放射性 Cs の浸透が明瞭に認められたのは、No. 3, 6, 8, 11, 12 である。これらの試料は図 1.3-11 においても $\beta$ 線量率に対して $\gamma$ 線量率が高くなったものである。この結果から、ヒラメ養殖場の倒壊柱側面、大谷石、コンクリートブロックについては、ある程度、放射性 Cs が内部に浸透していたものと考えられる。

濃度分図は分布を大まかに把握するには便利であるが、表面からの滲み出しもあり、表面位置を特定することが難しく、浸透深さを定量評価することは容易ではない。そこで、イメージングプレートの特性から測定レンジが広く、高濃度から低濃度までの分布を数値として読みだすことができるので、代表的な位置において、濃度プロファイルにして表示する。イメージングプレートの情報読み出しは 0.05mm のピクセルにより行うが、濃度プロファイルは、ピクセルデータを表面と水平方向 1mm×深さ方向 0.2mm の範囲で平均化したものを深さ方向にプロットした。濃度プロファイルを図 1.3-19 に示す。表面は、プロファイルのピーク位置と仮定した。データ読み込み範囲が必ずしも十分ではなかったが、ピーク位置から 15mm 程度の深さ（資料により計測範囲が異なる）までの全情報を合計しこれを 100%に換算し、各位置での計数値積算曲線を求め、図 1.3-20 に示す。

この結果から、積算が 95%になる位置を浸透深さの目安とすると（低線量の試料ではバックグラウンドの影響を受けやすいので誤差が大きくなる）、側溝蓋などでは空間線量率が 22.3  $\mu$  Sv/hr と高いところでも放射性 Cs の浸透深さは高々 2mm であることが分かる。一方、ヒラメ養殖場の例など建築物の柱では 5mm 程度まで浸透があり得ることが分かった。コンクリートの壁などに使用されるポーラスなコンクリートブロックでは汚染レベルは低くともより深くまで浸透している。またとくに大谷石では 10mm と深くまで浸透していた。つまり、放射性 Cs の浸透深さは汚染レベルに依存するのではなく、放射性 Cs が降下した際の対象物の特性により浸透深さは決定しているものと考えられる。

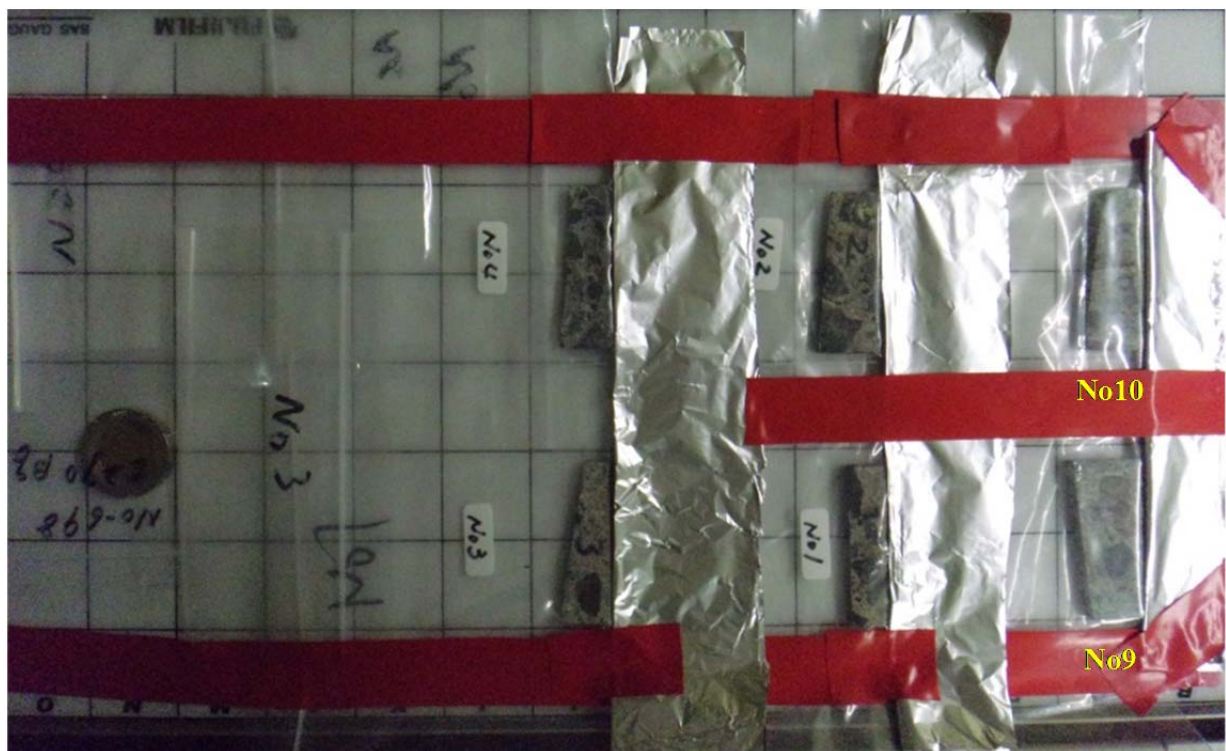
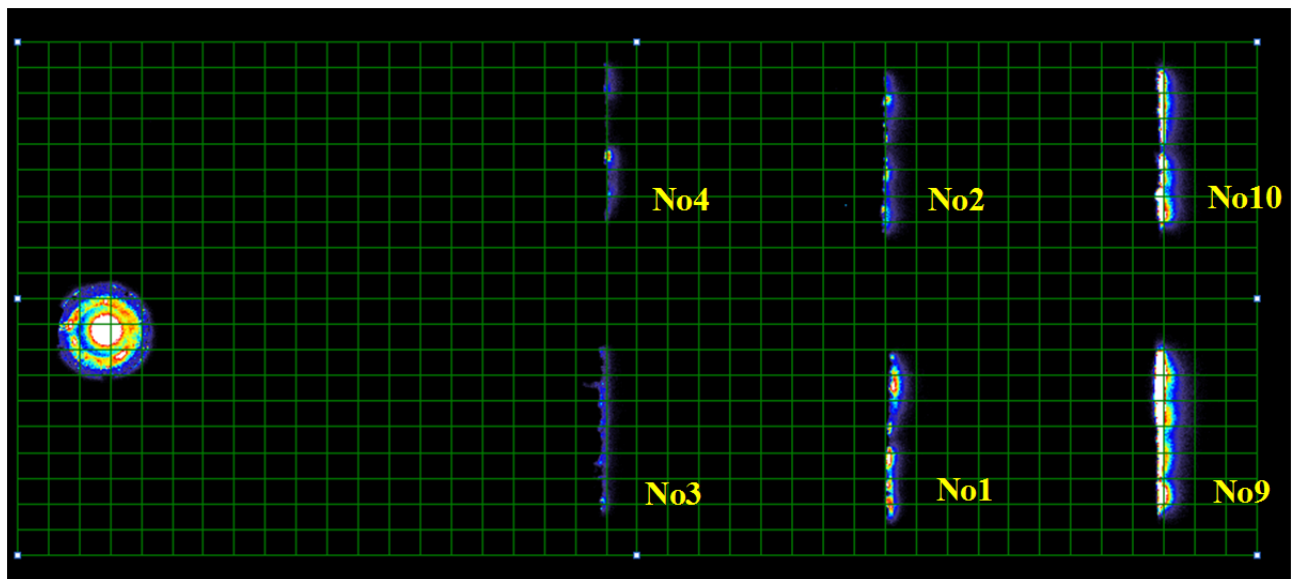


図 1.3-12 β線ラジオグラフ (No. 1, 2, 3, 4, 9, 10)

右手が表面。アルミフォイルを設置し、β線の拡散防止を試みたが不十分である。No.3 以外は、コンクリート内部への放射性 Cs の浸透はほとんど認められない。No.3 は、わずかではあるが、内部への浸透がある。格子は 5mm である。

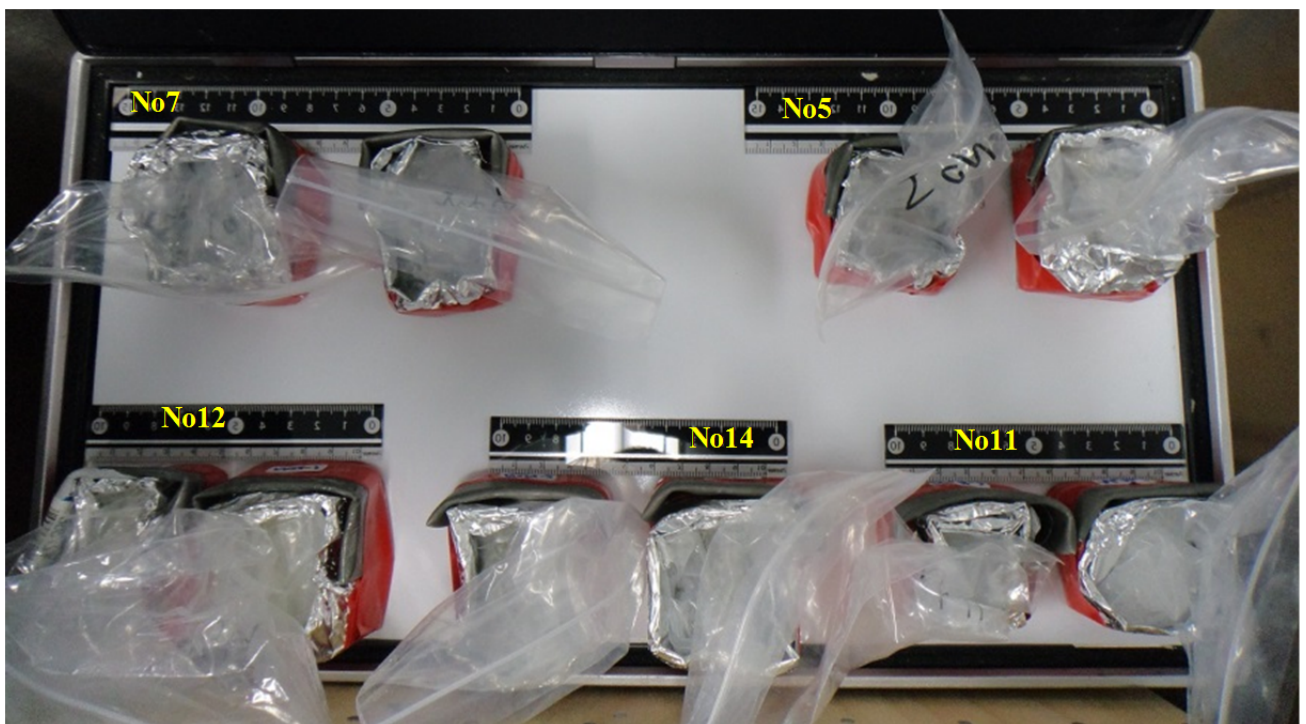
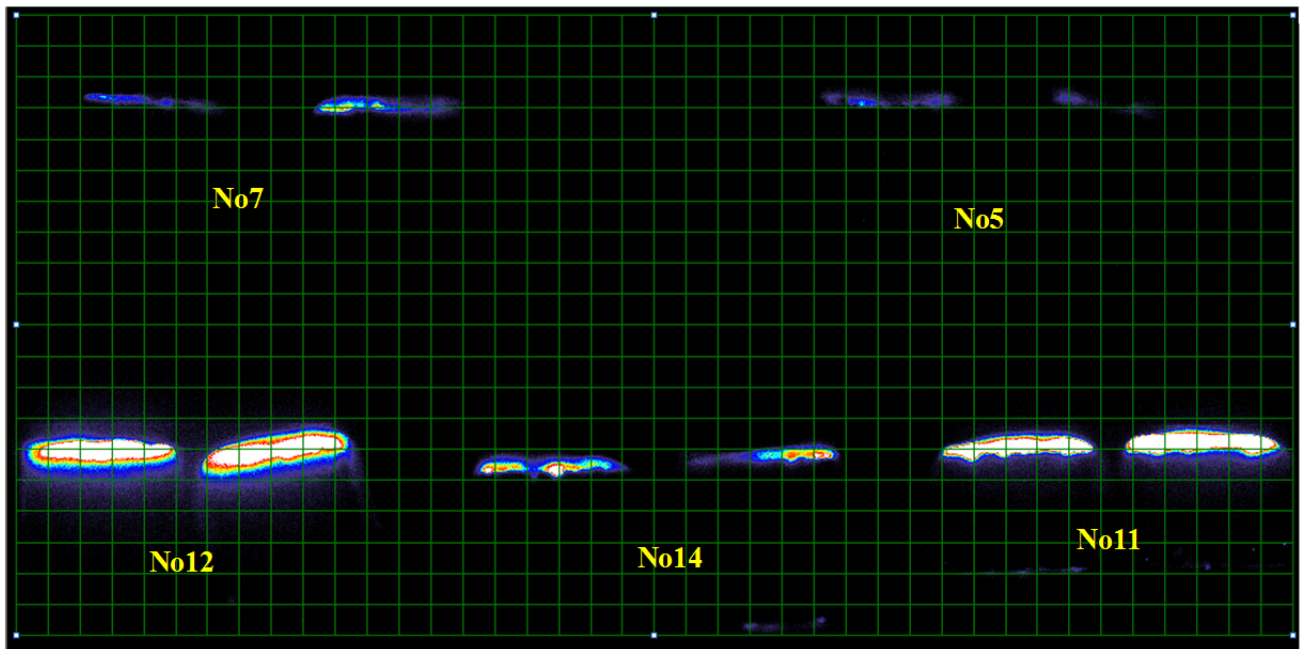


図 1.3-13  $\beta$ 線ラジオグラフ (No. 5, 7 11, 12, 14)

いずれも上方が表面。試験体を鉛板で覆って $\beta$ 線の拡散を防止した。しかし、上方に拡散しているのは遮蔽が不十分なためである。下方はコンクリート内面である。

No.11, 12, 14 では、コンクリート内部に拡散が認められるが、No.5, 7 には認められない。



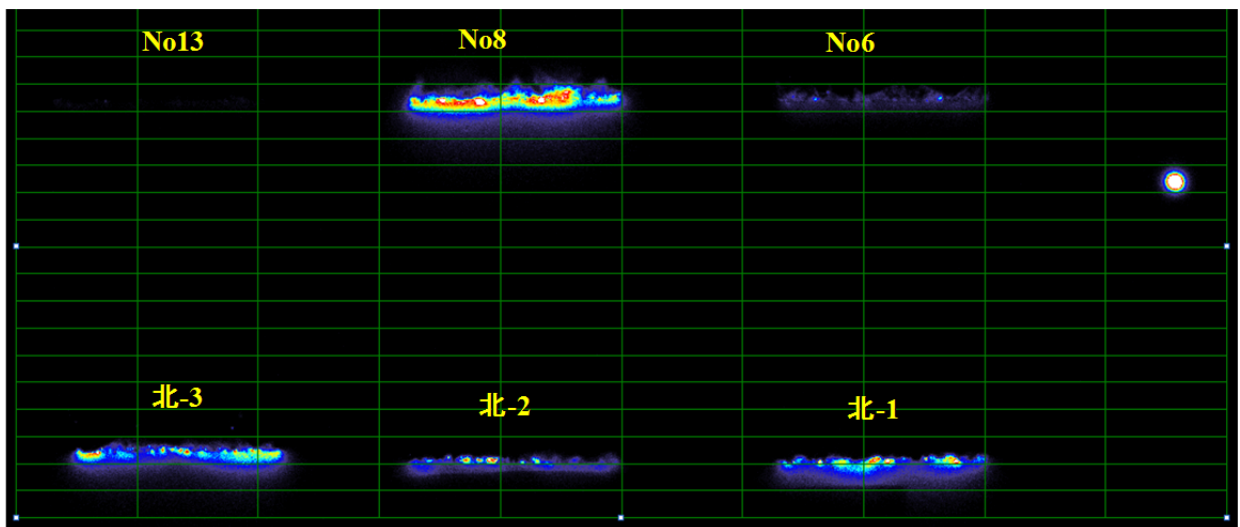


図 1.3-14  $\beta$ 線ラジオグラフ (北-1, 2, 3, No. 6, 8, 13)

いずれも下方が表面。プラスチック板で $\beta$ 線の拡散の遮蔽を試みたが、不十分である。

コンクリート内部への放射性Csの拡散は、北-1, 2, 3では認められないが、No. 6, 8では明らかに認められる。No. 13は線量率が低いので、この画像のコントラストでは明確ではないが、内部への浸透はない。

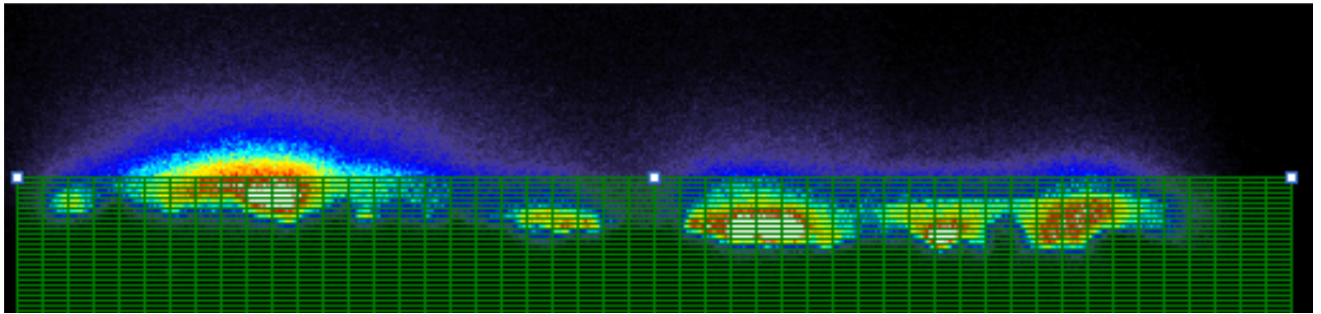


図 1.3-15 No.1 (側溝蓋) の拡大図 (下方が内面で、放射性 Cs は浸透していない。側溝蓋では、汚染レベルが高い No. 9, 10 を含め、いずれも内部への浸透は認められなかった。格子は横 1mm、縦 0.2mm で以下同様。コントラストは相対地であり絶対値を示さない。明るい部分が高濃度)

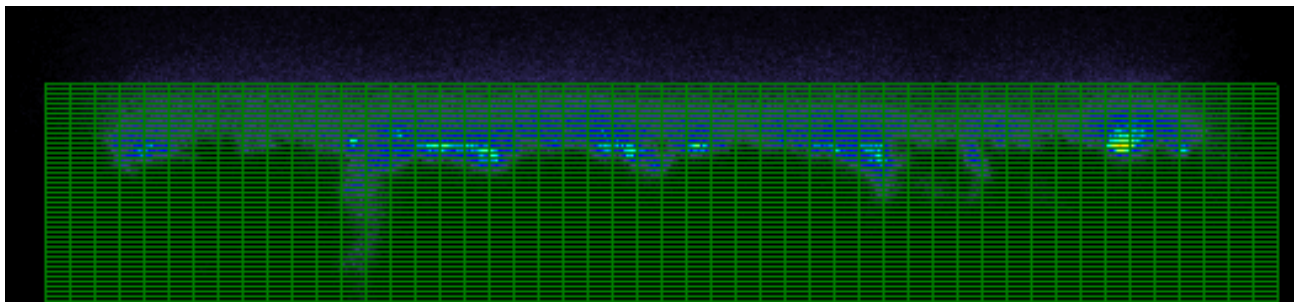


図 1.3-16 No.3 (コンクリート柱の側面) の拡大図 (下方が内面。汚染レベルは低い放射性 Cs が浸透している状況が認められる。特にひび割れに沿って侵入したと思われるコン性が特徴的)

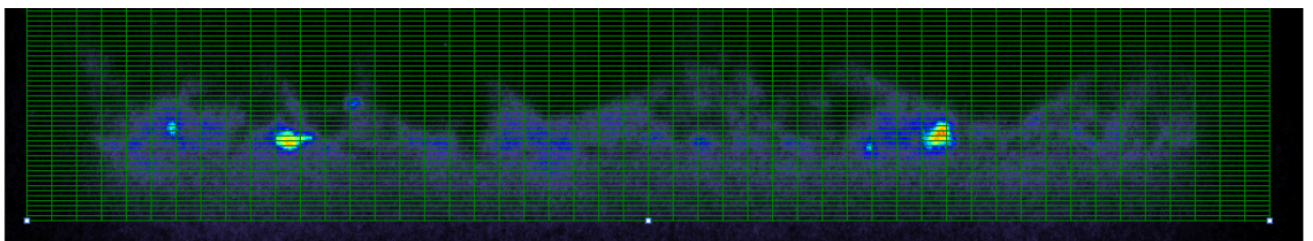


図 1.3-17 No.6 (倒壊した柱の表面) の拡大図 (上方が内面。放射性 Cs の拡散が認められる。骨材を回避して移動しているように観察される。)

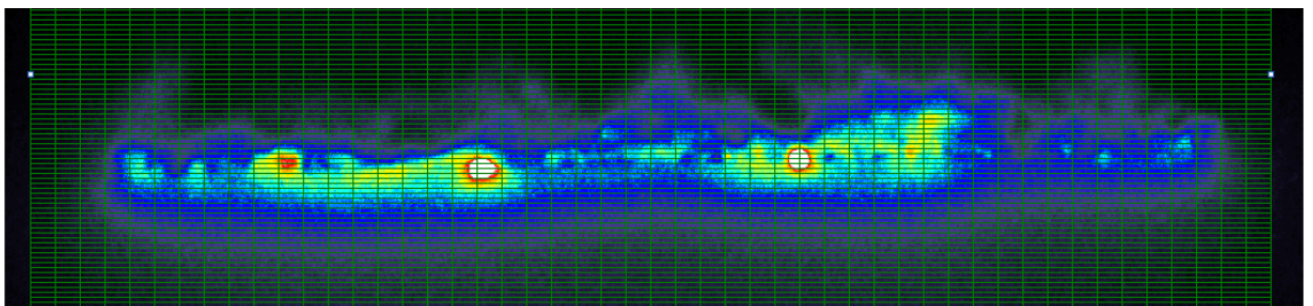


図 1.3-18 No.8 (倒壊した柱の表面) の拡大図 (上方が内面。放射性 Cs の明確な拡散が認められる。ここでも骨材を回避して浸透していると推定される)

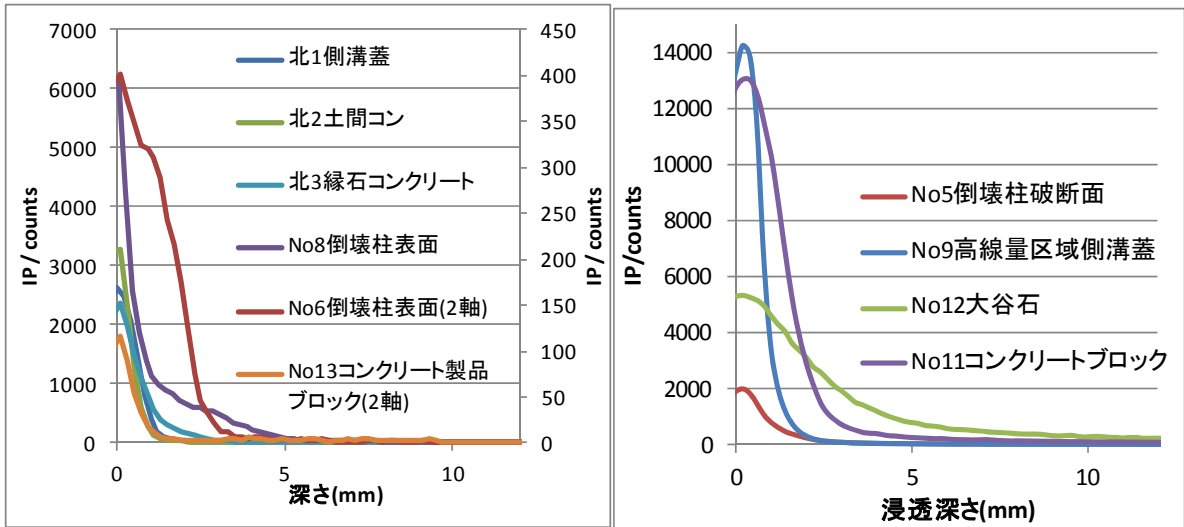


図 1.3-19 β線ラジオグラフによるコンクリートへの放射性Cs浸透プロファイル

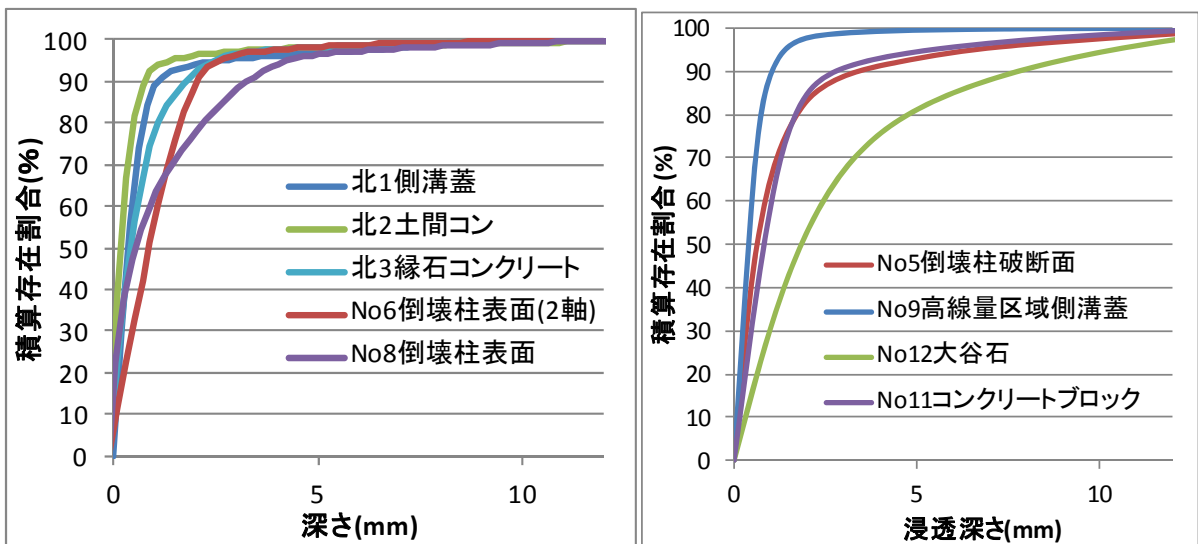


図 1.3-20 放射性Csの深さ方向の存在割合(15mmまでを100として表記)

表 1.3-1 溶出試験の手順

工程	手 順
1	コンクリート粉砕物(原体)の放射能測定。
2	コンクリート粉砕物(原体)50g に対して、10 倍量の 1mol/L 塩化カリウム(KCl)溶液 500mL で 1 日間振とう(環告 13 号準拠)。遠心分離(3000rpm、10 分間)後、孔径 1 μ m のメンブランフィルターで吸引ろ過し、放射能測定。
3	工程2のろ液およびろ過後のコンクリート粉砕物を元の容器に戻し、6 日間振とう。遠心分離、吸引ろ過し、放射能測定。
4	工程 3 のろ過後のコンクリート粉砕物に、新たに調製した 10 倍量の 1mol/L KCl 溶液 500mL を添加し、1 日間振とう。遠心分離、吸引ろ過し、放射能測定。
5	工程 4 の操作を繰り返し行い、放射能測定。
6	工程 5 の操作を繰り返し行い、放射能測定

### (5) 溶出挙動

コンクリートの汚染は表層に留まる場合が多いことが分かった。そこで除染はウォータージェット等何らかの研削により行うと効率的である。この際、研削くずからの Cs の溶出特性を理解しておく必要がある。そこで、側溝の蓋の板状試料（厚さ約 2cm）を 2mm 以下に粉碎し、10 倍量の純水に 24 時間浸漬し、液相をろ過して Ge 検出器で測定したところ検出下限以下であった。

セメント水和物に対するアルカリの吸着は可逆的と考えられ、水では溶出が認められなかったことから、放射性 Cs は粘土などに強固に固定されていることが考えられる。水では安定に吸着されているが、K やアンモニウムなどのイオンにより、Cs はイオン交換されて溶出する可能性がある。そこで、表 1.3-1 に示す手順で、1M の KCl 溶液により溶出特性を再評価した。コンクリート粉末の放射能濃度は 6930Bq/kg であった。この放射能が表面のみに存在すると仮定すると表面濃度は 30 Bq/cm<sup>2</sup> となる。

測定結果についてコンクリートと 1M-KCl 溶液間の放射性 Cs の分配を図 1.3-21 に、各工程での放射性 Cs の溶出率を図 1.3-22 に示す。1M-KCl 溶液により、コンクリート粉末からは約 1.3 の放射性 Cs が溶出した。この現象は、24 時間で平衡になるわけではなく、浸透時間を 1 日から 7 日に長くすることで、溶出率は 34% から 42% に高くなった。また、溶液を交換して再溶出試験をすると徐々にではあるが、さらに溶出が起き、放射能 Cs の吸着サイトには即時にイオン交換できるものと、一定の時間を要するものがあることが推定される。表面の溶脱から内部拡散支配に移行しているとの解釈もできる。

本測定は、側溝蓋のように表面に汚染が留まる物を対象としたため、今後、内部まで汚染が進展しているものについて、水による溶出がないのか確認することが必要である。

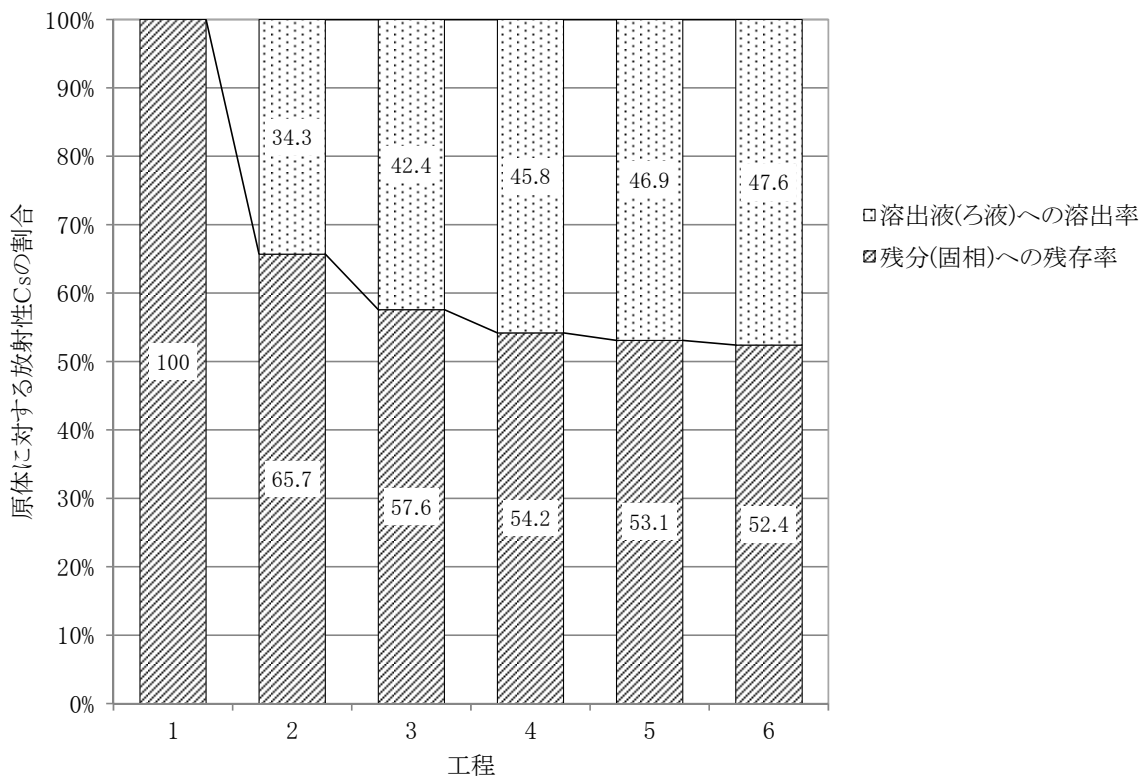


図 1.3-21 放射性 Cs のコンクリートと 1M-KCl 溶液間の分配率

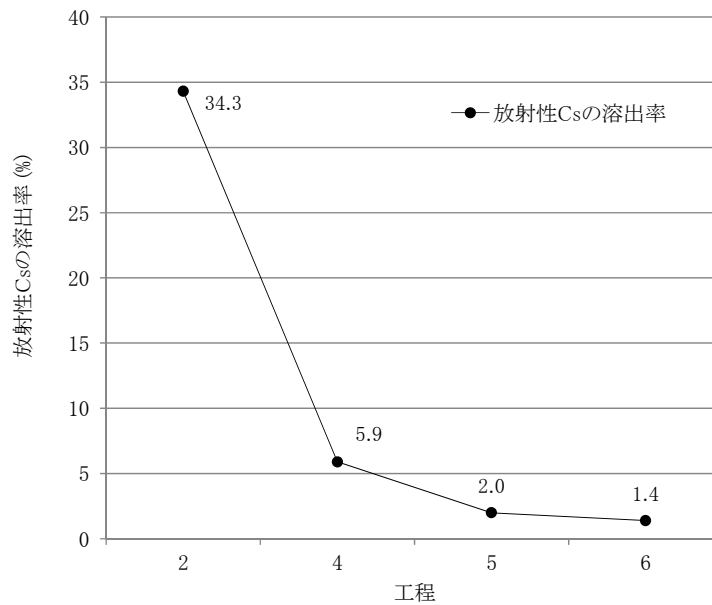


図 1.3-22 前工程の残分(固相)に対する放射性 Cs の溶出率

表 1.3-2 現場計数値と放射能濃度の関係

現場計数値 (GM 管, cpm)	実験室計数値 (PE, cpm)	表面濃度 (Bq/cm <sup>2</sup> )	コンクリート厚さ (cm)	放射能濃度 (Bq/kg)
57,500	46,862	137	10	5957
34,208	23,636	69	10	3000
68,415	47,271	138	20	3000
1,140	788	2.3	10	100
2,281	1,576	4.6	20	100

現場計数値と室内計数値の関係は、調査結果の回帰式から、現場=1.45×室内とした。

### (6) コンクリートの除染への提言

昨年までの飯館村での検討により、放射性 Cs による汚染が表層に留まるのであれば、表層を研削することで、コンクリートを再生資材として利活用できると考えられた。しかし、コンクリート部材は一定の厚さを有し、汚染レベルが限定的であれば、全体をそのまま粉砕すると汚染レベルは限定的になると考えられる。自由に流通できるクリアランスレベルである 100Bq/kg、および下床路盤材として使用できる 3000Bq/kg となるコンクリートの表面汚染の程度を、コンクリートの厚さが 10cm もしくは 20cm の場合について考える。

帰還困難区域でも高線量である区域からの試料 No.9 のコアは φ コアは φ であり、使用した PE の測定条件と計数効率を補正すると 137Bq/cm<sup>2</sup> となった。全量が表面に存在すると仮定して、コンクリート密度は通常 2.3kg/m<sup>3</sup> 程度であるので、深さを考慮してコンクリート全体の平均の放射性 Cs 濃度を計算した。本来は、粉砕試料を Ge 検出器で測定しなければ正確な数値は得られないが、ここでは暫定的に結果を表 1.3-2 に表示する。

結果を見ると、3000Bq/kg を目標とすると、側溝蓋の厚さが約 10cm であるので、3.4 万 cpm 程

度以下(現実には推定誤差の議論が必要)であれば、除染することなく再利用可能となる。100Bq/kg を目標とすると、1.1 千 cpm 以下となる。この数値は研削後の検査(研削した後に撤去、粉碎してクリアランス物として使える水準の判断の閾値)にも使用可能である。この場合は表面汚染と仮定しているため、コンクリート厚さは全体の放射能濃度に反比例し、厚さが 20cm となれば許容できる表面放射能濃度も 2 倍になる。

大谷石での除染効果を次に考察する。大谷石の表面汚染濃度は 43Bq/cm<sup>2</sup>であったが、深さ方向の分布が無視できないため、全体濃度に関してβ線ラジオグラフから直接の推定は難しい。全体を粉碎して分布の絶対値を補正する必要がある。もし、43Bq/cm<sup>2</sup>が表層 0.2mm からの信号と考えれば、12mm までに 650Bq が存在することとなり、20cm 厚さで密度を 1.7kg/m<sup>3</sup>とすると、20cm 厚さの板では 1.9 万 Bq/kg となる。今回のラジオグラフの測定からは 12mm までの範囲の定量化であったため、より深い位置での分析が再度必要である。単純に比例計算すると、3000Bq/kg 以下を満たすには、現場計測で 4.9 千 cpm 以下である必要がある。

前記は除染をしないでそのまま再利用することを考えたが、除染することを考えると除染深さの目安が必要となる。以下に簡易的ではあるが、β線ラジオグラフの分布図から直接、放射性 Cs の浸透深さを読み取り、空間線量率との関係を求める。検討には飯館村での結果も加える。その結果を図 1.3-23 に示す。この方法では、ラジオグラフの測定結果の表示方法(表示する閾値の設定)により浸透深さが異なる値となり読み取られ、相応の誤差を含む点に留意し、あくまでもおよその目安を理解するための利用に限定すべきである。

最も空間線量率が高かった地域(22μSv/hr) No.9, 10 のサンプルでは、それぞれ 3.2mm、2.4mm となった。今回サンプリングした他の地域は空間線量率、5.9μSv/hr(化学工場)と 5.8μSv/hr(ヒラメ養殖場)であったが、サンプリング場所や方位により表面線量率は異なり、飯館村での道路側溝蓋という暴露条件が類似したものばかりではなかったことが関与している可能性がある。この結果から、高線量区域においても汚染深さは 4mm 以下であり、この範囲の研削を行えば除染ができることを示している。

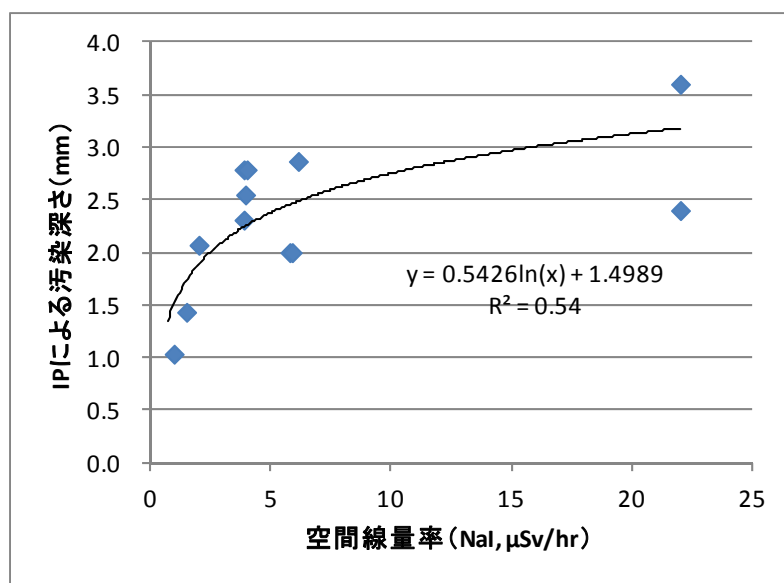


図 1.3-23 空間線量率と IP による汚染深さ

IP の測定結果では汚染が表面に留まらず、内部に拡散したものがあつた。図 1.3-24 に現場で計測した GM 管による表面線量率と IP 分析から読み取った汚染深さの関係を示す。繰り返すが、ここで読み取った汚染深さは暫定的なもので、試料表面からの拡散の影響を強く受けており、測定プロファイルの半値幅を読み取るなど、さらなるデータ処理が必要である。内部拡散がないものは、表面線量率と汚染深さには一定の関係があるが、内部拡散しているものは、同じ線量率においても汚染深さは 5 倍程度にもなることが分かる。しかも、表面線量率と汚染深さには相関がなく、放射性 Cs の浸透はコンクリートの特性や暴露条件に依存しているものと推定される。

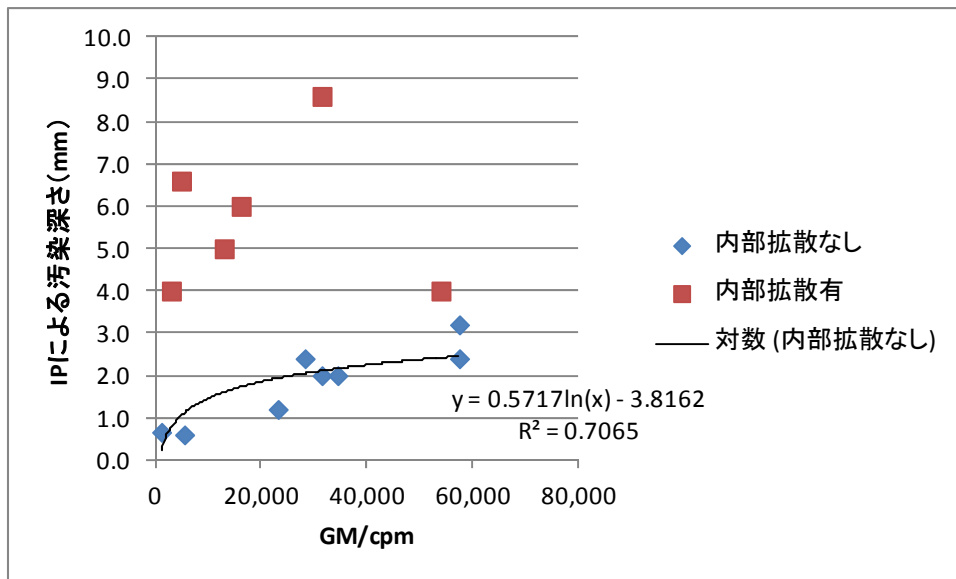


図 1.3-24 大熊町調査での表面線量率と IP による汚染深さ

以上の検討結果をもとに、コンクリート系汚染廃棄物の処分フローを提案する（図 1.3-25）。

- 1) まず、地震と津波により元来の形状を保持しているかどうかを考える。
- 2) 元来の形状を保持している場合、ガレキ化している場合それぞれに、表面汚染かどうかをβ線とγ線の相関関係から判断する。
- 3) 元来の形状を保持している場合で、表面汚染の場合は、部材厚さを考慮して、クリアランスレベルもしくは下床路盤などの基準を目安に、除染なしにそのまま廃棄するか、表面を研削などにより除染するかを判断する。
- 4) より深くまで汚染している場合については、現時点では、除染なしに再利用できる明確な判定基準を提示できていない。しかし、汚染深さは数 mm と考えられるので、除染を行えば、廃棄物を減容化はできる。
- 5) ガレキ化している場合は、がれきの形状と大きさも考慮して、除染なしに再利用するか、表面除染するか、すでに不定形に破壊されていて破碎選別を行うか、あるいは量的にもそのまま廃棄するのが合理的であるか判断することになる。

この過程において、必要な情報も併せて示し、現状で不足している内部まで汚染している場合の汚染深さの判定方法は今後の検討課題である。

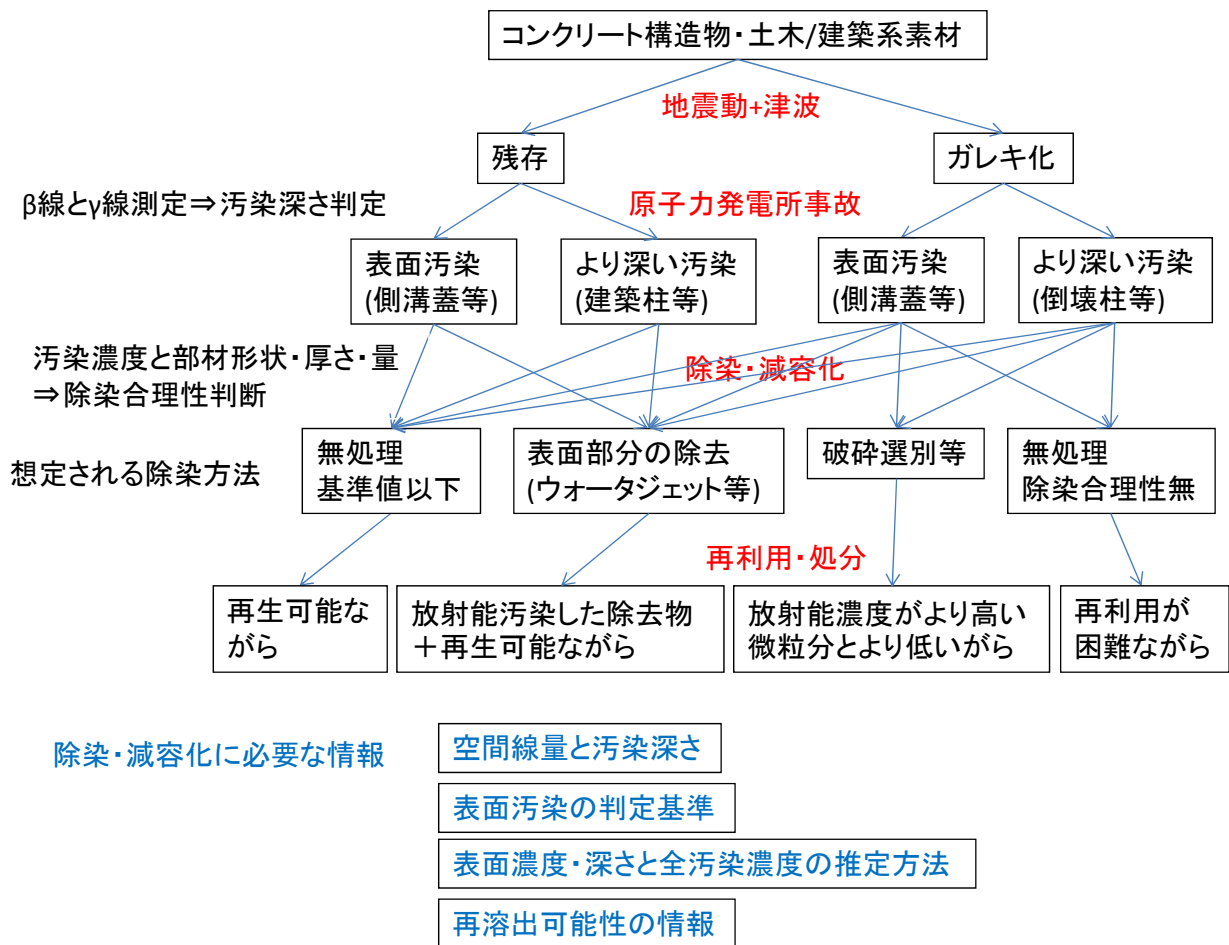


図 1.3-25 コンクリート系汚染廃棄物の処分フロー案

### (7)まとめ

量が多い不燃系廃棄物の除染・再利用の観点から放射能汚染したコンクリートを取り上げ、現実のコンクリート構造物から試料を採取し汚染深さと溶出特性を調査した。

- ・ 道路側溝蓋など一定の条件にあるコンクリートの見かけ上の汚染深さは空間線量率と相関があり、空間線量率が  $22\mu\text{Sv/hr}$  の高線量区域でも、汚染深さは  $4\text{mm}$  以下であった。
- ・ 倒壊した臨海建築物のコンクリート柱やコンクリートブロックには内部拡散があった。
- ・ 大谷石への内部拡散は他よりも大きい。
- ・ コンクリートの汚染は表面部分に留まることが多いが、汚染深さが表層に留まるのか内部に浸透しているのかを、β線とγ線の計数率の関係から推定することができる。
- ・ 除染しないまま、再利用をする場合の目安となる表面汚染濃度（暫定値）を提示した。
- ・ 側溝蓋のように表面部分に汚染が留まる物については、濃厚 K 溶液により数 10%の放射性 Cs が溶脱するが、水では溶脱は検出できなかった。



### 1.3.2 コンクリートの汚染の作用機構

#### (1) 目的と試験室コンクリートでの知見

東京電力福島第一原子力発電所（以下、「福島第一原発」と呼ぶ）の周辺には、事故で揮散した放射性セシウムを含んだ降雨によって汚染されたコンクリート構造物があり、その放射能汚染箇所はコンクリート表面に留まり、雨水などが侵入した場合の汚染の拡散の可能性は小さいと考えられるが、その理由は明らかになっていない。コンクリートの塩害の膨大な研究例からは、アルカリの浸透はClよりも多少遅れるものの数か月から1年ではコンクリートの品質にもよるがcmオーダーで起きることが分かっており、かつ、2013年度実施した実験でも極低濃度の放射性同位元素Cs-137は数cmの浸透を示し、現実の放射能汚染したコンクリートの汚染状況とは相当に状況が異なった。

ここではこれらの課題について、現実を模擬したコンクリート試験体を実験室で作製し（ここではモルタルで代用）、再度Cs-137を浸透させ、実験的、理論的に明らかにすることにより、放射能汚染コンクリート建造物の除染や安全処理法に関する基本知識を獲得することを目的とした。

#### (2) 現場コンクリートを模擬した試験体の作製

セメントは普通ポルトランドセメント（OPC）を使用して、骨材種類2水準によるモルタル試料を作製した。昨年は粘土鉱物を含む石灰石を用いたが、2014年度は現実を模擬して、粘土鉱物を含む真砂土を用いたが、真砂土は一般的な骨材に比較する粒子が細かく粘土状であるため、真砂土のみを骨材として練り混ぜることは難しい。したがって、石灰石骨材に対して内割り置換したモルタルを作製した。真砂土の置換割合を含む配合を決めるために予備試験を実施し、表1.3-3の配合とした。

練混ぜ：空練り15秒→水投入→低速1分→掻き落とし→低速2分

養生条件：20℃28日間 湿空

試験体寸法：10cm×5cm×2cm

表 1.3-3 モルタルの配合

セメント	骨材	真砂土の置換割合(%)	S/C	W/C	減水剤
OPC	石灰石砕砂	0	3.0	0.5	0
	石灰石砕砂、真砂土	30			3.0

屋外にある構造物等のコンクリートの表層は、雨水による溶脱、空気中の炭酸ガスによる炭酸化の作用を受けていることが想定される。したがって、現場のコンクリートの状況を再現するために、供試体の表層を溶脱させた試料と炭酸化させた試料を作製し、Cs-137の浸透試験に供することとした。

#### 1) 溶脱処理

試料の5×2cm面を溶脱させる浸透面とし、残り5面を樹脂シーリングした。供試体を多量のイオン交換水に液固比12の条件で浸漬し、週に2回浸漬水を交換した。浸漬期間は4週間とした。

溶脱処理した試料断面にフェノールフタレイン溶液を塗布して溶脱範囲を確認したが、溶脱範囲は明確には確認できなかった。しかし、表層付近は溶脱していると考えられる。

## 2) 炭酸化処理

試料の 5×2cm 面を溶脱させる浸透面とし、残り 5 面を樹脂シーリングした。20℃、RH60%の条件で 1 週間乾燥させた後で、供試体を促進炭酸化養生槽に入れ、4 週間炭酸化させた。

炭酸化処理した試料断面にフェノールフタレイン溶液を塗布し炭酸化範囲を確認した。石灰石砕砂モルタルの中性化深さは約 8.2mm、真砂土混合モルタルの中性化深さは約 6.3mm だった。

## (3) Cs-137 浸漬試験

0.025M の塩酸を含む比放射能 5000Bq/cc の Cs-137 原液を脱イオン水で 10 倍に希釈したものに塩酸の 10 倍等量の OH 型陰イオン交換樹脂を加えて脱塩酸し、放射性 Cs 吸着用溶液とした。この溶液を内径 6cm のポリプロピレン製円筒容器に 20cc 加え、側面を防水処理した高さ 58mm、底面 52mm×21.5mm のモルタル角柱を底面 (Cs 吸着面) が完全に水没するように入れ、Cs 吸着を行った。吸着終了後、試料を水洗したのち、NaI シンチレーターあるいは GM サーベイメーターを吸着面に接して配置し、Cs-137 からの放射線量を測定した。その結果を表 1.3-4 に示す。

NaI シンチレーターではガンマー線のみを測定するが、 $\gamma$  線はモルタルによる減衰が少ないので、その線量は全吸着 Cs 量を反映したものとなり、その大小は Cs の吸着されやすさを反映したものとなる。GM サーベイメーターは  $\beta$  線に対する検出感度が高いが、 $\beta$  線は減衰率が非常に高いので、その線量は表面層に吸着した Cs の量を反映したものとなる。したがって GM サーベイメーターで得た線量を NaI シンチレーターで得た線量で除した値は、全吸着 Cs に対しての表面層に吸着された Cs の割合を反映したものとなる。

GM サーベイメーターによる係数值に着目すると、炭酸化により表面濃度は倍増し、溶脱により半減する。 $\beta$  線と  $\gamma$  線の浸透深さを考えると、炭酸化により Cs-137 はより表層に留まるようになり、溶脱処理により内部への浸透が増えたと考えられる。

粘土により、表面濃度は 1-2 割の増加が認められた。ただし、 $\gamma$  線と  $\beta$  線の浸透深さを考えると、粘土の影響はない。

以上の結果は、炭酸化によりセメント水和物であるケイ酸カルシウム水和物 (C-S-H) から、Ca が炭酸カルシウムとなり、シリカゲルが生成し、このシリカゲルにごく微量の Cs-137 が吸着した可能性を考えることができる。溶脱の場合は、組織が疎になり、溶液が急速に浸透し、Cs-137 が吸着される速度がより遅かった可能性がある。粘土は Cs-137 の吸着量を多少増やしたが、これは粘土の効果であるか、粘土を添加したことによる組織の粗大化 (低強度化) によるものかは定かではない。

表 1.3-4 Cs-137 吸着試験結果

試料	23 時間後の放射線強度/cpm		
	NaI ( $\gamma$ )	GM ( $\beta + \gamma$ )	GM/NaI
健全石灰石モルタル	11169	14000	1.25
炭酸化石灰石モルタル	19008	30500	1.60
溶脱石灰石モルタル	16392	7600	0.46
健全真砂土モルタル	12756	16000	1.25
炭酸化真砂土モルタル	22882	34500	1.51
溶脱真砂土モルタル	16959	10000	0.59

#### (4) 極微量 Cs の挙動の理論解析

福島第一原発によって大気中に飛散した放射性 Cs は、降雨に混じって野外のコンクリート内に侵入した結果、放射能汚染コンクリート構造物が多数発生した。幸いなことに放射性セシウムのはほとんどはコンクリート表面層にとどまっているため、表面層の研削・はく離による除染が可能である。しかしながら実験室で新たに作製したコンクリートを放射性 Cs の水溶液に浸漬した場合、Cs はコンクリート内部に深く浸透する。両者の違いはコンクリート細孔液の組成の違いにあると考えられる。実験室内で作成した新規コンクリートでは、Cs の吸着を阻害する K や Na などのアルカリイオンが細孔溶液内に多量に含まれているため、Cs が内部まで侵入する。これに対して野外のコンクリートは常に風雨にさらされている結果、表面層の溶脱が進み、細孔溶液のアルカリイオン濃度は非常に低くなるため、ここにイオン交換されやすい極微量の Cs が侵入すると速やかに吸着される結果、放射能汚染は表面層にとどまることとなる、という説明が可能である。

この現象を化学平衡論に基づいて解析してみる。コンクリート内のイオン交換基は初めすべてアルカリイオン A を吸着しているとし、その濃度を  $[X-A]_0$ 、平衡時の濃度を  $[X-A]$ 、細孔内での A イオンの初期濃度を  $[A]_0$ 、平衡時の濃度を  $[A]$  とする。Cs についても同様の表現をする。位置  $x$  での細孔溶液内の Cs イオンの初期濃度を  $[Cs]_0$  とすると、イオン交換反応の平衡定数  $K$  は

$$K = \frac{[A][X - Cs]}{[X - A][Cs]} = \frac{\{[A]_0 + [X - Cs]\}[X - Cs]}{\{[X - A]_0 - [X - Cs]\}\{[Cs]_0 - [X - Cs]\}} \quad (1)$$

であたえられる。コンクリートに吸着する放射性 Cs はイオン交換基の量に比べてわずかだから  $[X-A]_0 \gg [X-Cs]$ ,  $[Cs]$  が成り立つ。その結果(1)式は

$$K \approx \frac{\{[A]_0 + [X - Cs]\}[X - Cs]}{[X - A]_0 \{[Cs]_0 - [X - Cs]\}} \quad (2)$$

となる。コンクリートに侵入する Cs イオンは極めて微量だから、その細孔溶液内濃度は A イオンの濃度よりもはるかに低い。この場合、 $[A]_0 \gg [Cs]_0 > [X-Cs]$  が成り立つから、(2)式はさらに簡略化され

$$K \approx \frac{[A]_0[X - Cs]}{[X - A]_0\{[Cs]_0 - [X - Cs]\}} \quad (3)$$

となる。(3)式より、吸着される Cs の量は

$$[X - Cs] = \frac{[Cs]_0}{1 + [A]_0 / \{K[X - A]_0\}} \quad (4)$$

となる。(4)式は、実験室内で作成したコンクリートのように細孔溶液内のアルカリイオン濃度が高ければ、すなわち  $[A]_0 / \{K[X - A]_0\}$  がゼロよりもだいぶ大きければ、細孔に侵入した Cs の一部しか吸着されない、すなわち Cs はコンクリート内部まで侵入するが、野外で放射能汚染を受けたコンクリートのように、 $[A]_0$  が小さく  $[A]_0 / \{K[X - A]_0\} \ll 1$  が成立するなら、 $[X - Cs] = [Cs]_0$ 、すなわち侵入した Cs はすべて表面で吸着されてしまうことを示している。

## (5) まとめ

現場のコンクリートを想定し、実験室で作製したモルタルをもちい、放射性同位元素の Cs-137 の浸透実験を行い、以下の結果を得た。

- Cs 吸着に対する骨材の影響はほとんどない。
- 作製後に変質していない健全なモルタルは、イオン交換容量が低く細孔溶液のアルカリイオン濃度も高いので、吸着アルカリ量が最も低い。
- 溶脱が進むとモルタルが疎になり、溶液が奥に侵入しやすくなるため、表面層に吸着する Cs の割合は減少する。溶脱によって Cs 吸着量が増加するのは、溶液が奥に侵入しやすくなるため、および／あるいは細孔溶液のアルカリイオン濃度が低下するためと考えられる。
- モルタルを炭酸化すると表面層のイオン交換容量が増大する結果、Cs 吸着量は増大する。また表面層も密な状態を保つので、モルタル内部に侵入する Cs の割合はもっとも低くなる。

### 1.3.3 不燃系減容化技術のまとめ

不燃系廃棄物のうち、大きな体積を有するコンクリートについて、汚染状況を調査し、除染のための情報を提示した。また、現実のコンクリートの汚染状況を実験室で再現することも試みた。

- コンクリートの放射性 Cs による汚染は側溝蓋のように表面 1-2 mm に留まる場合と、建築物の柱のように 5mm を超える場合があった。大谷石では 15mm 程度以上の内部拡散が認められた。
- 両者の判別は、 $\gamma$ 線と  $\beta$ 線 の関係を求めておくことで可能となる。
- 除染することなく、再利用できる表面濃度の暫定目安を提示した。
- 側溝蓋のように表面に汚染が留まる場合は研削を行ったとしても水による溶出は検出されなかった。一方で、濃厚 KCl 溶液では数割が時間とともに徐々に溶出し続けた。
- 実験室のモルタルでは現場の状況は完全には再現できていないが、炭酸化により表面濃度は高まり、溶脱によっては内部への浸透が早まることが分かった。
- 理論的考察では、共存アルカリイオンが溶脱した条件で、ごく微量の放射性 Cs が供給されれば強い吸着が発生することが予想できた。

## 参考文献

- [1] Farfán, E.B., et al.: Assessment of (90)sr and (137)cs penetration into reinforced concrete (extent of "deepening") under natural atmospheric conditions, Health physics, Vol. 101, No. 3, pp.311-320, 2011
- [2] 山田一夫、高井伸一郎、大迫政浩（2013）ウォータージェットによるコンクリートへの Cs 浸透深さ測定、コンクリート工学年次論文集、Vol.35、pp.

## 1.4 コンクリート技術適用

### 1.4.1 はじめに

東日本大震災に伴う福島第一原発の事故により、放射性 Cs が環境中に放出され、可燃物の焼却により焼却飛灰中に可溶性塩として高濃度に濃縮している。この放射能汚染した焼却飛灰（汚染飛灰）などの廃棄物（汚染廃棄物）を安全に最終処分する施設として、鉄筋コンクリート製の遮断型相当の処分場が検討されている。放射能濃度のレベルにもよるが長ければ 100 年オーダーの期間にわたり監視が必要となり、この間のコンクリートの耐久性が要求されることから、安全性確保の観点からコンクリートの耐久性を高める方策について検討する必要がある。国立研究開発法人国立環境研究所（NIES）では、「汚染廃棄物等最終処分場へのセメント・コンクリート技術適用に関する研究会（NIES コンクリート研究会）」を組織し、「汚染焼却飛灰廃棄物等の最終処分場のコンクリート技術適用に関する技術資料」を作成し、HP 公開した。

<https://www.nies.go.jp/whatsnew/2014/20141203/20141203.html>

この技術資料を完成させるべく、不足の基礎データを取得し、活用できる形にまとめたものが本節である。

### 1.4.2 放射性 Cs に汚染した焼却飛灰を鉄筋コンクリート製遮断型最終処分場において処分する際に考えるべき事項

なぜ放射性 Cs に汚染した焼却飛灰（汚染焼却飛灰）をとりあげ、この飛灰を鉄筋コンクリート製遮断型最終処分場において処分する際に考えるべき事項は、前記技術資料に取りまとめた。ここでは要点のみを示す。

設計においてコンクリートに対する要求性能を設定するためには、対象とする構造物の目的と機能を明らかにする必要がある。福島県外の指定廃棄物である汚染焼却飛灰等は国が準備する処分場において処分されることが明示されており、汚染焼却飛灰等の最終処分場には、遮断、遮蔽、安全性の確認の三つの機能が求められ、全体的な考え方がすでに環境省から示されている。

鉄筋コンクリート製の遮断型相当の処分場において放射性 Cs に汚染された焼却飛灰の処分を考える。焼却飛灰を考えるのは、他の廃棄物に比べ、焼却飛灰のみにおいて放射性 Cs が可溶性塩として含有されており、より厳格に管理する必要があるためである。施設から放射性 Cs を含む有害成分を漏洩させないことが求められる。施設は、上部の土壌とベントナイト混合土、コンクリート表面の防水・防食層、水密性コンクリートと多重の遮水構造を有するが、焼却飛灰には焼却過程で生じる  $\text{CaCl}_2$ （あるいは  $\text{CaClOH}$ ）が含有され、潮解性を示す可能性がある。あるいは予測が難しい偶発作用により焼却飛灰に水がもたらされると種々の現象がコンクリートに影響を与える。その考慮すべき点を表 1.4-1 にまとめる。

これらの現象を考慮し、種々の対策を取るとしても、鉄筋コンクリートが100年単位にわたり耐久性を持って性能を発揮し続けるかどうかを設計段階で保証するのは難しい、もしくは建設費用がかさむ過大な設計となる可能性がある。そこで、適切な維持管理を行い、不具合が発生した場合にはその影響度をその時点での最新技術を用いて評価し、その後の対応を考えることが合理的である。最悪の場合は、処分対象物をいったん取り出し、施設を再構築することもあり得る。表1.4-2に監視期間ごとに要求される事項と維持管理の要点をまとめた。

**表 1.4-1 鉄筋コンクリート施設における飛灰の最終処分について考慮すべき点  
(ゴシックは偶発作用時)**

(山田一夫、大迫政浩、コンクリート工学年次論文報告集、Vol.36, No.1, p479, 2014)

成分	生じえる現象と考慮する点	対策案
可溶性の放射性 Cs	水が作用し漏洩すると、環境の特定箇所に濃縮しホットスポットを形成する可能性がある。	水の浸入防止、確実な遮断、不溶化
0.1-10ppm 程度の安定 Cs	原発事故から放出された放射性 Cs の絶対量はごく微量であるが、廃棄物中には放射性 Cs よりも桁違いに多量の安定 Cs があり、Cs 除去は両者を同時に行う必要がある。	十分な吸着能がある材料*、不溶化
数% 程度の KCl	ゼオライトやベントナイト、土壌には Cs 吸着特性があるが、水和イオン半径が近い K により吸着能力が極端に低下する。	共存イオン効果を考えた設計*
5-30% 程度の CaCl <sub>2</sub>	表面被覆材の欠陥からの CaCl <sub>2</sub> の吸湿によるコンクリートの乾燥収縮。	膨張材・収縮低減剤で軽減
	CaCl <sub>2</sub> の吸湿・潮解により、液状水が作用しない場合も、高濃度塩水が発生する可能性がある。	計算によると 100 年はおきない
	偶発作用により高濃度塩水がコンクリート層に達すると塩害(鉄筋腐食)が発生する可能性がある。	Cl 拡散係数の低減、エポキシ塗装鉄筋*
	偶発作用により濃厚な CaCl <sub>2</sub> 飽和溶液がコンクリート層に達すると膨張性水和物が成生し膨張破壊する可能性がある。	ポゾラン物質の使用*
高濃度塩化アルカリ	偶発作用により濃厚な塩化アルカリがコンクリートに接触すると、アルカリ骨材反応(ASR)を促進する可能性がある。	適切な抑制効果の検証*

\*いずれも水の浸入防止が出来れば防ぎえる事象であるが、想定外の偶発作用による構造物への浸水が発生した場合の現象と、早期復旧のために必要となる対策案として提示した。

表 1.4-2 遮断型相当の最終処分場への要求事項とマネジメント

(山田一夫、大迫政浩、コンクリート工学年次論文報告集、Vol.36, No.1, p480, 2014)

		施設に要求される事項			維持管理	
		構造(躯体)への要求事項	放射線に対する性能*			
			性能	許容線量		
平常時	埋立期間	健全である	漏えいなし	1mSv/y	施工時ひび割れの補修、浸水防止	
	第1監視期間	有害なひび割れを許さない	閉じ込め	10μSv/y	常時モニタリング、定期点検	
	第2監視期間		閉じ込め	10μSv/y	周辺環境定期測定	
偶発作用 (豪雨、暴風等)	埋立期間	速やかに変状等を補修できること	漏えいなし	1mSv/y	浸水点検、排水	
	第1監視期間	閉じ込め	閉じ込め	10μSv/y	臨時点検、排水	
	第2監視期間		閉じ込め	10μSv/y	周辺環境定期測定	
偶発作用(地震)	レベル1	埋立期間	健全である	漏えいなし	1mSv/y	臨時点検
		第1監視期間	有害なひび割れを許さない**	漏えいなし	10μSv/y	常時モニタリング、定期点検
		第2監視期間		漏えいなし	10μSv/y	周辺環境定期測定
	レベル2	埋立期間	速やかにひび割れ等を補修できること	閉じ込め	5mSv/回	臨時点検とひび割れの補修
		第1監視期間	閉じ込め	閉じ込め	5mSv/回	
		第2監視期間		閉じ込め	閉じ込め	10μSv/y
偶発作用 (高濃度塩水の作用)		急速な劣化の回避	閉じ込め	5mSv/回	マネジメント 1) コンクリートへの漏水検知と止水 2) 劣化検査と予測、補修 3) 処分対象物の取り出し	

\*) 「閉じ込め」とは、外周仕切設備の内側に封じ込める性能を示す。許容線量については、別途、安全性評価による。

\*\*）レベル1の地震時には、鉄筋が降伏することなどなくひび割れが地震後に閉じることが必要である。

### 1.4.3 高濃度塩水に対する抑制対策

#### (1) 考慮すべき点

焼却飛灰を保管する最終処分場において、焼却飛灰を包含したフレキシブルコンテナから高濃度塩水が漏出した場合を想定して、コンクリート内部の鉄筋腐食の進行を評価する。コンクリート中の鋼材の腐食に関して、海水程度の塩分に対する知見は多いが、高濃度塩水に対する知見は極めて少ない。試験では、塩水の組成に水準を設け、またフライアッシュを用いたコンクリートによる耐食性向上を確認する。

#### (2) 高濃度塩水中での鋼材腐食速度

##### 1) 塩化物溶液中での鋼材腐食速度

##### (a) 目的

本試験では、鋼材そのものに対する高濃度塩水の影響を確認するために、塩水の組成、および濃度を変えた浸漬液を用い、鋼材を直接腐食させ、腐食量を評価した。

##### (b) 試験方法

用いた浸漬液を表 1.4-3 に示す。浸漬液は、焼却飛灰抽出液を模擬した NaCl, KCl, CaCl<sub>2</sub> 6.0mol/L、および、この液に対して、Cl として海水程度の濃度である 0.5mol/L となるように調整した液を基本として、陽イオンとして Na/K のみ含有、または Ca のみ含有する浸漬液を用いることとした。鋼材の腐食はコンクリート中を想定したため浸漬液には Ca(OH)<sub>2</sub> を添加したが、pH の影響を確認するため、Ca(OH)<sub>2</sub> を添加しない水準についても試験を行った。なお、NaCl, KCl のケース⑤⑥に

において Cl 濃度を 4.0mol/L としたのは、これらの塩の溶解度が低く 6.0mol/L では溶解しないためである。

また、表 1.4-3 には、浸漬液の調整時の pH を測定し、合わせて示す。

表 1.4-3 用いた浸漬液の塩水溶液組成および pH(鋼棒腐食試験)

ケース	塩水種類	Cl 濃度 (mol/L)	w/v%				調合時 pH
			NaCl	KCl	CaCl <sub>2</sub>	Ca(OH) <sub>2</sub>	
①	NaCl, KCl, CaCl <sub>2</sub>	0.5	1.13	0.76	1.13	0.5	12.2
②		6.0	13.61	9.08	13.61	0.5	11.0
③		6.0	13.61	9.08	13.61	—	7.2
④	NaCl, KCl	0.5	1.92	1.28	—	0.5	12.6
⑤		4.0	15.35	10.24	—	0.5	12.3
⑥		4.0	15.35	10.24	—	—	7.6
⑦	CaCl <sub>2</sub>	0.5	—	—	2.77	0.5	12.1
⑧		6.0	—	—	33.29	0.5	10.6
⑨		6.0	—	—	33.29	—	7.6

腐食試験における鋼材として、長さが 100mm の D10 異形棒鋼をグラインダで黒皮を除去して用いた。浸漬終了後の鋼材は、以後で説明する吸水紙を除去した後、クエン酸二アンモニウム 10% 溶液に 24 時間浸漬させて錆を溶解させ、流水により洗浄した後に十分乾燥させてから質量を測定し、浸漬前に予め測定した鋼材質量とから、腐食減量を算定した。

鋼材の腐食にはカソード反応に必要な酸素および水の供給が必要なことから、鋼材は吸水紙で巻き、浸漬液に鋼材端部を一部浸漬させ、毛細管現象で鋼材全体に浸漬液および空気（酸素）が供給されるようにした（図 1.4-1）。

ここで、吸水紙が浸漬液を吸水することで酸素が遮断されることが考えられたため、浸漬紙の巻き高さについて、以下の通り、予備検討を行った。

吸水紙として市販のティッシュペーパーを用い、鋼材底端から 25mm、50mm、75mm および 100mm（全長）の高さまで巻いた（2 枚重ねで約 6 巻き）。さらに、吸水紙に浸漬液を供給させるため、浸漬深さは 25mm となるようにして、40℃で濃度が 16% の NaCl 水溶液に 12 日間に亘り浸漬させた。



図 1.4-1 鋼材腐食試験における浸漬紙巻き高さ検討のための予備検討の状況  
(左：吸水紙巻き高さ 100mm とした鋼材(浸漬前)、右：鋼材の塩水への浸漬状況)





図 1.4-2 鋼材腐食試験の予備検討における腐食状況

(左：浸漬終了後、右：吸水紙を外した状態)

浸漬終了後の状態を図 1.4-2 に示す。腐食領域は、吸水紙を巻いた全域に亘って生じ（左）、また、を腐食は浸漬高さである下端部から 25mm の領域が最も腐食していた（右）。すなわち、吸水紙には浸漬液が十分吸水し、吸水しても酸素は十分に供給され、また、浸漬している端部にも酸素が供給されて腐食を生じることが分かった。

この結果から、以後の試験における吸水紙を巻く高さは鋼材全体を包む 100mm、浸漬深さは 25mm とした。また、腐食状況より、浸漬時の温度は 40℃、浸漬期間は 28 日間とした。

### (c) 結果と考察

各浸漬液に 40℃ 28 日間浸漬させた鋼材の浸漬後の鋼材の状況の例を図 1.4-3～4 に、外観目視の状況および平均腐食減量率のまとめを表 1.4-4 に、また、Cl 濃度毎および浸漬液種類毎に平均化した腐食減量率をそれぞれ図 1.4-5 および図 1.4-6 に示す。

浸漬液種類で整理した図 1.4-6 から、Ca と比較して、Na/K の方が腐食は促進するようであった。本試験では鋼材 1 本ずつにばらつきがあるため、平均値の差の検討（t 検定）を行った。まず、Na/K と Ca をそれぞれ用いたシリーズ④⑤⑥および⑦⑧⑨のそれぞれ計 9 つのデータを用い、F 検定を実施した。その結果、P (F<=f) は 0.057 であり、5%有意水準を満たさないが、ほぼ分散に差はないとし、次いで、t 検定（一対の標本による平均の検定）を行った。その結果、P (F<=f) は 0.0058 であり、5%有意水準を十分に満たすものであった。なお、t-検定（分散が等しくないと仮定した 2 標本による検定）でも P (F<=f) は 0.023 であり 5%有意水準を満たすものであった。

以上より、焼却飛灰から漏出する高濃度塩水が鋼材に作用すると、海水程度の Cl 濃度の浸漬液と比較した場合に、高濃度であるからといって腐食速度を特に促進するものではないと考えられる。また、Na/K のみを用いた場合と比較して、Ca を含有する方が腐食は遅いと考えられる。



図 1.4-3 ケース①NaCl, KCl, CaCl<sub>2</sub> (Cl)0.5M の腐食状況



図 1.4-4 ケース②NaCl, KCl, CaCl<sub>2</sub> (Cl)6.0M の腐食状況

表 1.4-4 浸漬終了後の鋼材の外観目視および平均腐食減量率(鋼棒腐食試験)

	塩水種類	Cl 濃度 (mol/L)	腐食減量率 (wt%)	浸漬後の溶液色	鉄筋腐食箇所
①	NaCl, KCl,	0.5	1.25	赤	全体
②	CaCl <sub>2</sub>	6.0	1.04	赤黒	〃
③	Ca(OH) <sub>2</sub> 除	6.0	1.65	オレンジ	浸漬部から中程まで
④	NaCl, KCl	0.5	1.43	赤茶	全体
⑤	Ca(OH) <sub>2</sub> 除	4.0	1.55	黒	全体, 液面付近に結晶化
⑥	Ca(OH) <sub>2</sub> 除	4.0	1.33	〃	〃
⑦	CaCl <sub>2</sub>	0.5	1.12	赤茶	全体
⑧	Ca(OH) <sub>2</sub> 除	6.0	1.04	透明薄茶	〃
⑨	Ca(OH) <sub>2</sub> 除	6.0	0.83	透明薄オレンジ	〃

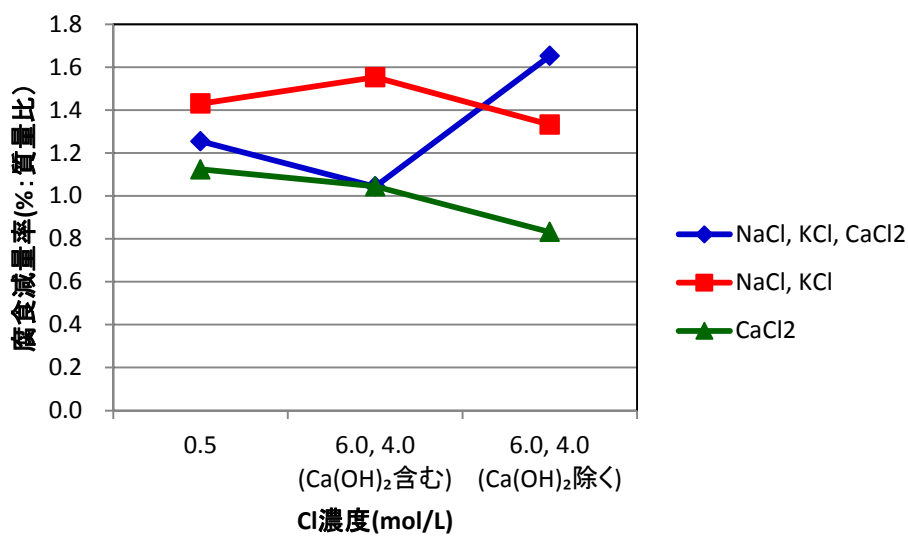


図 1.4-5 塩化物イオン濃度が腐食減量率に及ぼす影響

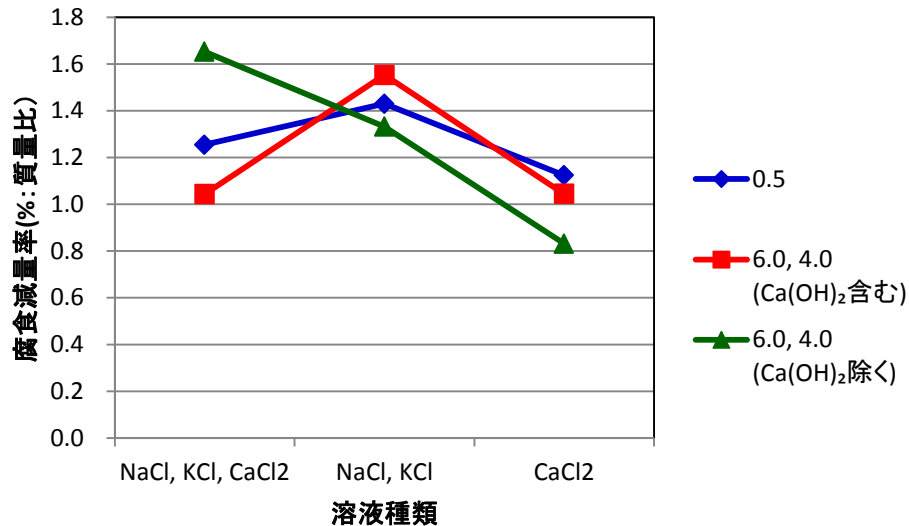


図 1.4-6 溶液種類が腐食減量率に及ぼす影響

## 2) コンクリートへの浸透による腐食に及ぼすセメント種類の影響

### (a) 目的

本項では、鉄筋を埋設したコンクリートを用い、塩水浸漬による乾湿繰り返しによって腐食を促進させ、その腐食状況を自然電位および分極抵抗を測定することで評価した。

### (b) 試験方法

早期に塩分を浸透させるため、コンクリートの水粉体比 (W/B) は 80%とした。用いたコンクリートは普通ポルトランドセメント (NPC) を用いた普通コンクリートおよびフライアッシュを体積で 30%置換した FA コンクリートの 2 種類である。

試験で用いたセメントおよびフライアッシュは前項で用いた材料と同じロットである。用いた鋼材は D10 異型棒鋼である。また、用いた細骨材および粗骨材は、ともに石川県手取川産である。使用コンクリートは高 W/B であるため、予め配合選定試験を行った。結果を表 1.4-5 に示す。

前項と同様にグラインダで黒皮の前処理を施した鉄筋を用い、かぶり 20mm に埋設した、100×100×100mm の鉄筋コンクリート供試体を成型した。加えて普通コンクリートの配合においては、エポキシ塗装鉄筋の耐腐性を評価するため、これを用いた試験体も作製した。

コンクリート打設後、翌日脱枠し、打設から材齢 28 日間まで 40℃水中養生を行った。養生終了後、速やかに暴露面以外の側面と上面をエポキシ樹脂で被覆した。

浸漬液は、前項で用いた浸漬液と同じ組成比、濃度である。

打設から材齢 28 日間まで 40℃水中養生後に、浸漬液への浸漬、および乾燥の繰り返しによる促進養生により腐食を促進させた。温度は 40℃一定として、1 サイクルは、3 日間の浸漬と 4 日間の乾燥 (相対湿度 30%) とした。

促進腐食 4、8 および 12 サイクル後に、外観の観察、および自然電位と分極抵抗の測定を行った。さらに 12 サイクル目の測定後に各ケースの内 2 体ずつの供試体を割裂し、鉄筋の観察、および端部を除く中央部 8cm の腐食面積率、鉄筋全体の腐食減量、および AgNO<sub>3</sub> 溶液噴霧による塩分浸透深さの測定を行った。

自然電位は、内部抵抗が 1000MΩ の装置を用いて、自然電位を測定した。照合電極には銀塩化銀

電極 (Ag/AgCl) を用いた。対極板には、湿らせたティッシュを巻いたステンレス板を用い、供試体との導通を高めた。また、分極抵抗は、周波数を 10kHz~1mHz の範囲で設定した周波数応答解析装置 (FRA) を用いた交流インピーダンス法により測定した。詳細は既往の文献<sup>1</sup>に記載している。なお、測定面は、供試体底面 (打説面の逆側) をとした。

表 1.4-5 高 W/B コンクリート配合選定試験結果 (塩分溶液浸漬による腐食試験)

配合 No.	練量 (ℓ)	W/B (%)	s/a (%)	単体量 (kg/m <sup>3</sup> )					AE 助剤 AE-6* <sup>3</sup>	SL (cm)	空気量 (%)	28 日圧縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )
				W	C	FA	S	G				
				(1.00)	(3.16)	(2.28)	(2.58)	(2.52)				
c	"	"	45	190	238	-	804* <sup>1</sup>	956* <sup>2</sup>	-	6.5	6.6	15.5
6	"	"	"	"	"	"	"	"	"	10.0	3.4	-

\*1:細骨材の密度は 2.59 を使用

\*2:粗骨材の密度は 2.52 を使用

\*3:フローリック AE6 1A=C×0.002wt% 原液ベース (練り混ぜでは、100 倍希釈液を使用)

表 1.4-6 コンクリートの配合と基礎性状 (塩分溶液浸漬による腐食試験)

	W/B (%)	s/a (%)	単体量(kg/m <sup>3</sup> )					混和剤	スランプ <sup>°</sup> (cm)	空気量 (%)	28 日の圧縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )
			W	C	FA	S	G	AE 助剤			
普通コンクリート	80	45	190	238	-	804	956	-	7.0	4.3	18.7
FA コンクリート			185	162	50	809	966	7A	10.0	3.4	14.2

## (c) 結果

### ① 使用コンクリートの基礎性情

使用したコンクリートの配合および、基礎性状としてのスランプ、空気量および標準養生材齢 28 日での圧縮強度試験結果を表 1.4-6 に示す。

用いたコンクリートは、塩分の浸透を速めるために高 W/B としたためブリーディングを生じる可能性がある。ブリーディングは鋼材下面が脆弱となり、腐食を促進する可能性があることから、ブリーディング試験を実施した。

結果を図 1.4-7 に示す。コンクリートのブリーディング量に対する適正值は、国内の規格、基準類にはない。試験の結果、特に普通コンクリートでは初期にブリーディングが多く生じたが、累積ブリーディング量 0.3g/cm<sup>2</sup> は大きな値ではなく、一般的なコンクリートとほぼ同等と考えられる。なお、本検討と同じ骨材、セメントを用いた W/C=55% の普通セメントを用いた普通コンクリートのブリーディング量は 0.2g/cm<sup>2</sup> 程度であり、これと比較しても極端にブリーディングが多い配合ではないことが分かる。また、普通コンクリート、FA コンクリートでブリーディング量に大きな差異は無く、両者の腐食評価の比較において、ブリーディングの差による影響は小さいと考えられる。

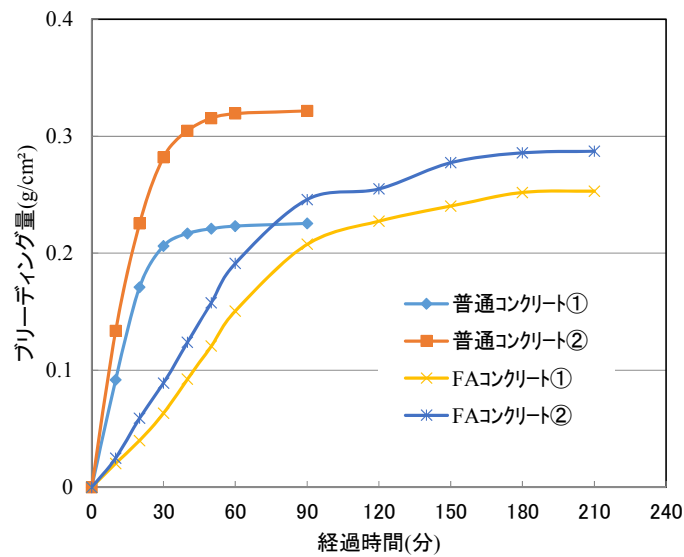


図 1.4-7 用いたコンクリートのブリーディング量(塩分溶液浸漬による腐食試験)

図 1.4-8 に材齢毎の自然電位の比較図を示す。自然電位は、①材齢が進むと低下する傾向にあったが顕著では無く、②普通コンクリートは FA コンクリートと比較して腐食傾向（卑な電位）を示し、③塩分濃度が高いほど腐食傾向（卑な電位）となり、④浸漬液として  $\text{CaCl}_2$  よりも他の溶液を用いた方が腐食傾向（卑な電位）となった。なお、エポキシ塗装鉄筋は、その絶縁性のため、自然電位の測定値には信頼性がない。

図 1.4-9 に材齢毎の分極抵抗の比較図を示す。分極抵抗は、材齢が進むと普通コンクリートは変化しないが FA コンクリートは大きくなる傾向にあった。自然電位と同様に、普通コンクリートは FA コンクリートと比較して腐食傾向（分極抵抗が大きい）を示し、塩分濃度が高いほど腐食傾向（分極抵抗が大きい）を示し、また、浸漬液として  $\text{CaCl}_2$  よりも他の溶液を用いた方が腐食傾向（分極抵抗が大きい）を示した。

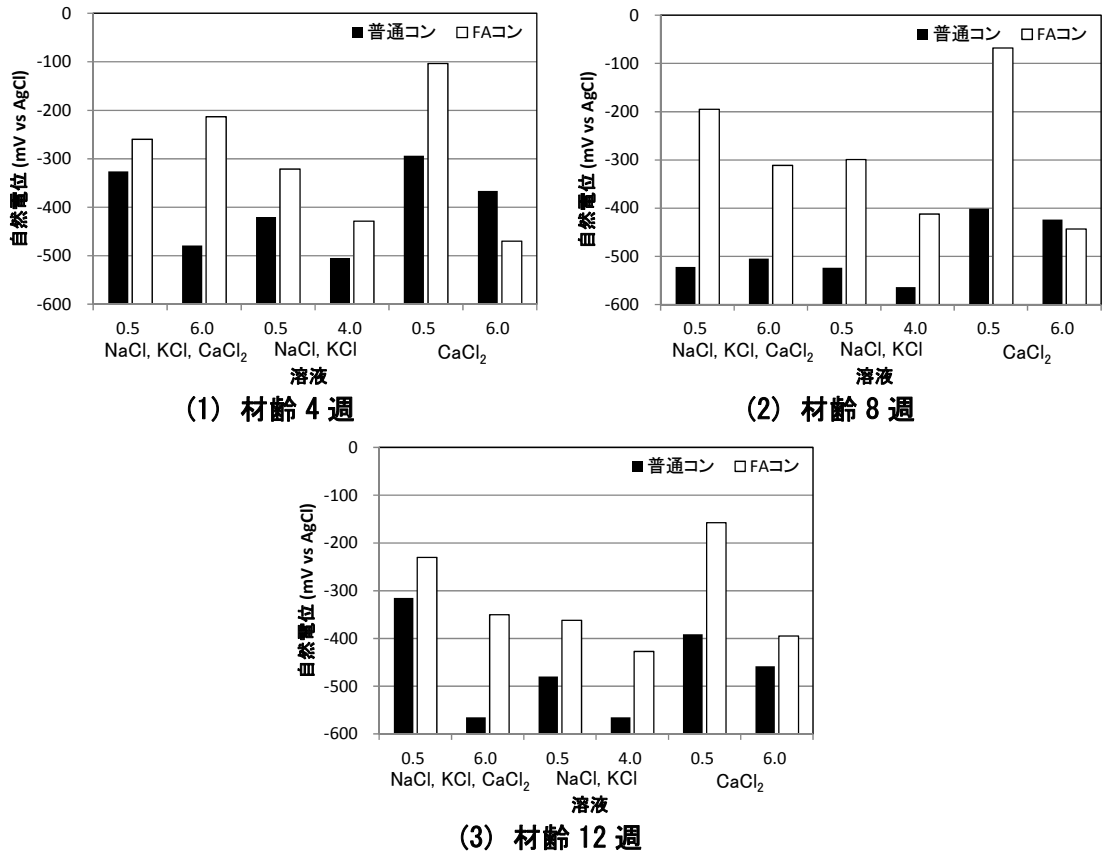


図 1.4-8 塩分溶液浸漬による腐食試験における各材齢の自然電位

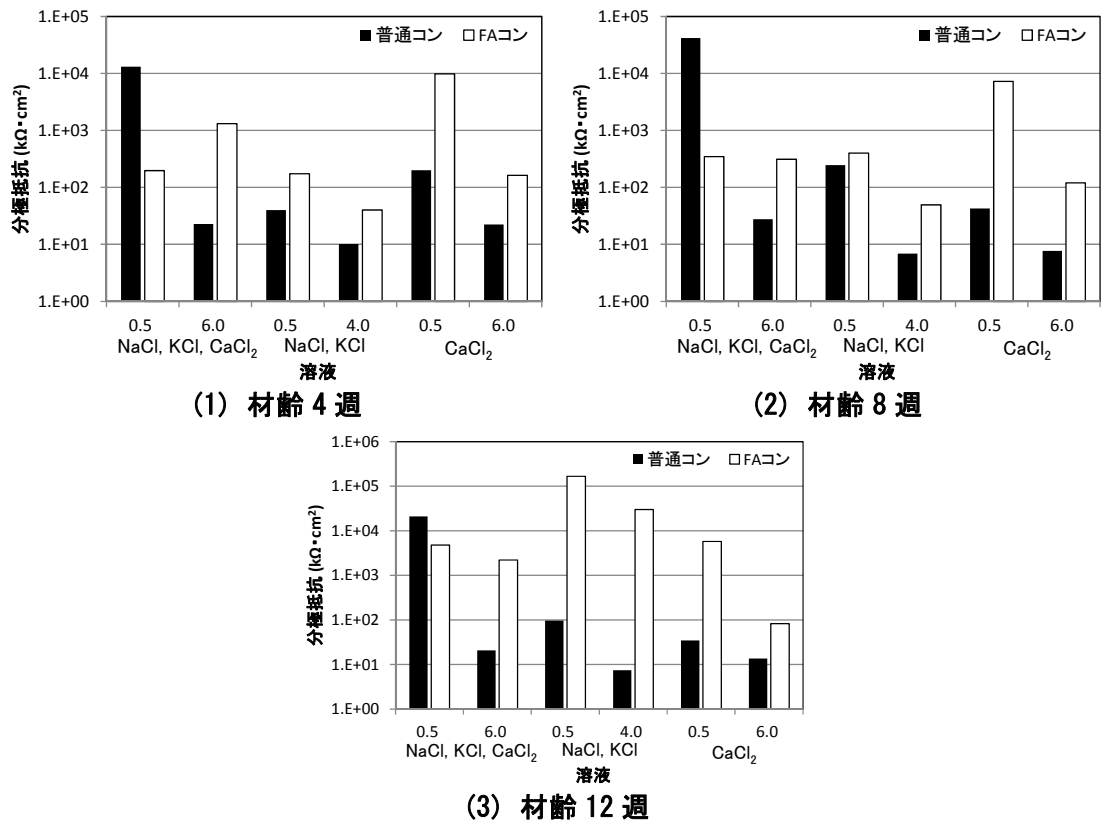


図 1.4-9 塩分溶液浸漬による腐食試験における各材齢の分極抵抗

## ② 鉄筋の腐食状況

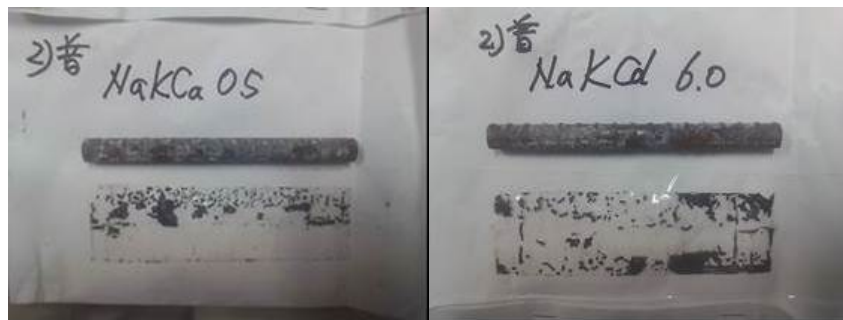
図 1.4-10 に材齢 12 週経過後の取り出した鉄筋の状況の例を、図 1.4-11 に取り出した鉄筋の腐食面積率とに腐食減量率を示した。腐食面積率および腐食減量は、各試験体 3 つのうち、2 つを用いた平均値である。鉄筋腐食面積率および腐食減量は、自然電位および分極抵抗における腐食評価での傾向とほぼ一致していたが、浸漬液として  $\text{CaCl}_2$  を用いた水準の腐食面積率および腐食減量率は大きく、自然電位、分極抵抗の結果と異なっていた。

また、エポキシ塗装鉄筋の外観には全く腐食は認められず、腐食を抑制することが確認された。

## ③ 塩分浸透深さ

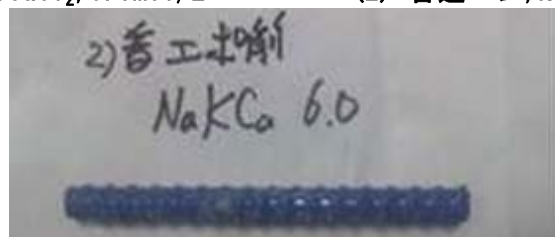
図 1.4-12 に  $\text{Cl}$  浸透深さのまとめ図を示す。なお、各試験体の  $n$  数は 3 であるが、その内 1 つは 8 週経過時に割裂を行ったため  $n=2$  のデータを取り纏めた。

普通コンクリートの塩分浸透深さは鉄筋かぶり 20mm を大きく超えていたのに対し、FA コンクリートでは、ほぼ 20mm 程度であった。また、 $\text{Cl}$  浸透深さは溶液濃度が濃い溶液ほど深く浸透していた。鉄筋腐食の指標とした自然電位、分極抵抗、腐食減量率および腐食面積率と、塩分浸透深さとの関係で整理し、図 1.4-13 に示す。各指標とも、塩分浸透深さが深いほど腐食傾向を示していた。本実験では、 $\text{W/B}$  は普通コンクリートおよび FA コンクリートともに 80% であり、FA 置換による腐食抑制効果は、主に FA によって塩分浸透が抑制されたことによると考えられる。

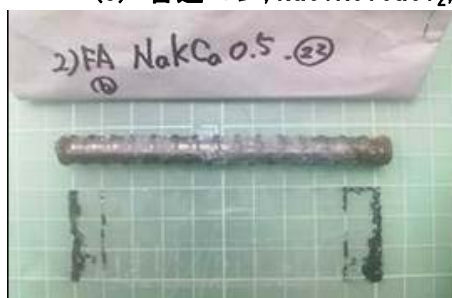


(1) 普通コン,  $\text{NaClKClCaCl}_2$ , 0.5mol/L

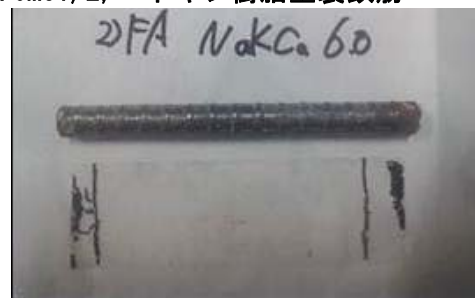
(2) 普通コン,  $\text{NaClKClCaCl}_2$ , 6.0mol/L



(3) 普通コン,  $\text{NaClKClCaCl}_2$ , 6.0mol/L, エポキシ樹脂塗装鉄筋



(4) FA コン,  $\text{NaClKClCaCl}_2$ , 0.5mol/L



(5) FA コン,  $\text{NaClKClCaCl}_2$ , 6.0mol/L

図 1.4-10 塩分溶液浸漬による腐食試験における鉄筋腐食状況

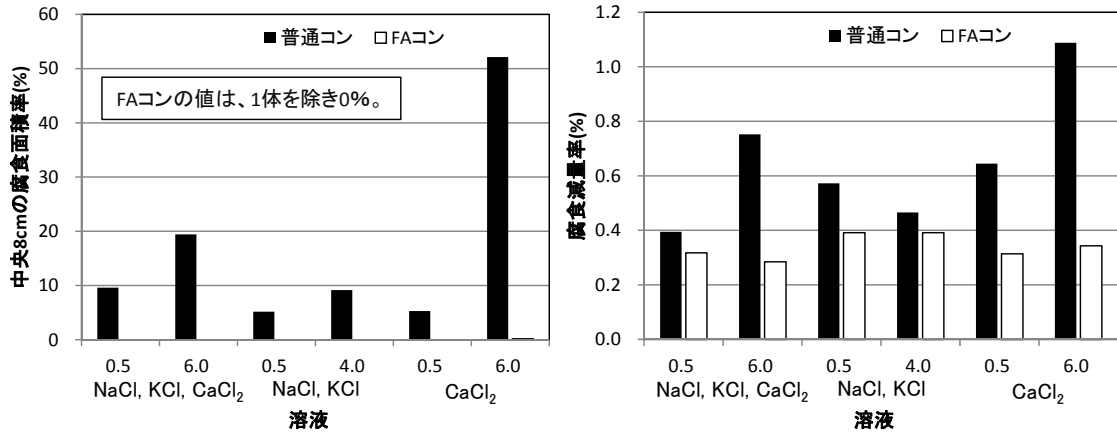


図 1.4-11 塩分溶液浸漬による腐食試験における鉄筋の腐食面積率と腐食減量率

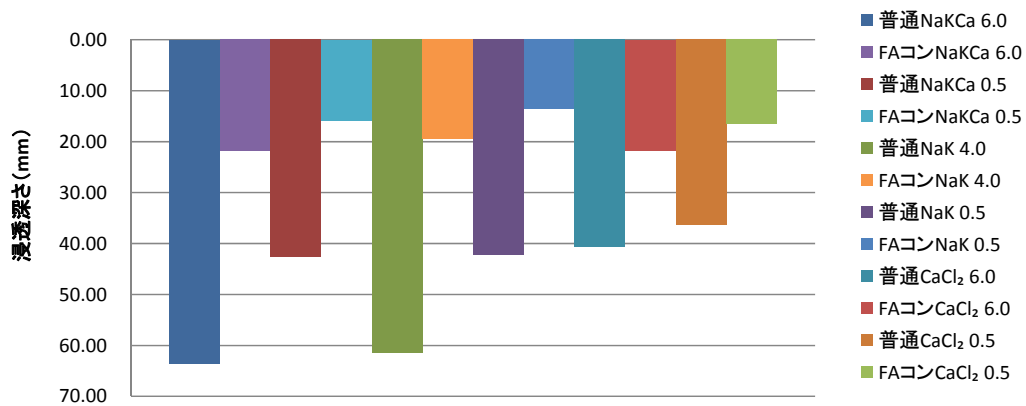


図 1.4-12 コンクリートへのCl浸透状況の比較

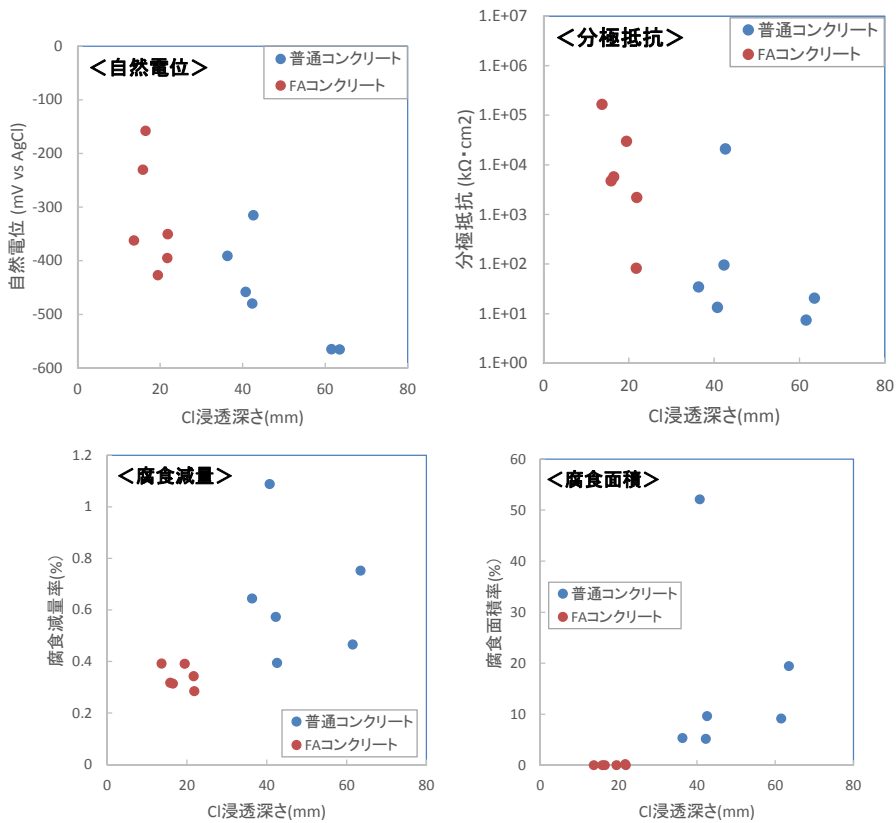


図 1.4-13 Cl浸透深さと腐食評価指標との関係



#### (d) 考察

鉄筋腐食面積率および腐食減量は、自然電位および分極抵抗における腐食評価での傾向とほぼ一致し、普通コンクリートは FA コンクリートと比較して腐食傾向となり、塩分濃度が高いほど腐食傾向を示した。また、塩分浸透深さは FA コンクリートで抑制されており、これら腐食評価指標とした各測定値と塩分新党深さとは相関しており、FA コンクリートが鉄筋かぶり 20mm 程度であったのに対し普通コンクリートでは浸透深さ 20mm を大きく超えていた。本検討では、普通コンクリートと FA コンクリートとは同じ W/B=80%としているが、FA 置換によって、組織の緻密化と、FA 中の Al によってフリーデル氏塩の生成で Cl 固定化が増し、Cl の拡散係数が低下したことによって腐食が抑制されたものと考えられる。

一方、浸漬液として CaCl<sub>2</sub> を用いた場合、腐食傾向は自然電位、分極抵抗と、腐食減量率とは異なっていた。すなわち、浸漬液として CaCl<sub>2</sub> を用いた水準では、他の浸漬液を用いた水準と比較して、自然電位、分極抵抗の腐食面積率に対して実際の腐食減量率は大きくなった。なお、CaCl<sub>2</sub> では、測定された自然電位および分極抵抗の値と比べ、実際の腐食は進むことを示している。この原因については不明である。

### 3) ひび割れを有するコンクリート中の鋼材腐食

#### (a) 目的

本項では、ひび割れを生じたコンクリートの鉄筋に対する高濃度塩水による腐食性状を確認することを目的とし、鉄筋を埋設したコンクリートを用い、塩水浸漬による乾湿繰り返しによって腐食を促進させ、その腐食状況を自然電位および分極抵抗を測定することで評価した。

#### (b) 試験方法

用いたコンクリートの配合を表 1.4-7 に示す。コンクリートは、W/B=55%の普通ポルトランドセメントを用いたコンクリート（普通コンクリート）と、フライアッシュを 30%セメント置換し、さらに膨張剤（Ex）を 19kg/m<sup>3</sup>セメント置換し、W/B=40%とした対策コンクリートである。コンクリートは、かぶり 20mm 位置にグラインダー処理した D10 鉄筋を埋設した 100×100×400mm に成型した。打設後、40℃にて 28 日間の水中養生を行い、養生終了後、曲げ載荷を行い、打設底面に残留幅が 0.2mm のひび割れを導入した。その後、暴露面（ひび割れ導入面）以外の 5 面をエポキシ樹脂で被覆した。

表 1.4-7 コンクリートの配合と基礎性状（ひび割れを導入したコンクリート）

	W/B (%)	s/a (%)	単位量(kg/m <sup>3</sup> )						混和剤(wt%)			スランブ (cm)	空気量 (%)	28 日圧縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )
			W	C	FA	Ex	S	G	15S	SP8SV	消泡剤(404)			
普通コンクリート	55	49	163	296	—	—	883	926	1.90	—	—	14.5	5.7	39.2
対策コンクリート	40	44	151	246	114	19	761	975	—	0.60	1.5T	15.5	4.9	53.2

前項同様に、促進腐食は、浸漬液への浸漬、および乾燥の繰り返しによる促進養生により腐食を促進させた。浸漬液の塩水溶液組成と Cl 濃度は表 1.4-4 の②と④（ただし、KCl と等モルの NaCl で置換）を示す。温度は 40℃の一定にして、1 サイクルは、3 日間の浸漬と 4 日間の乾燥とした。また、腐食の評価は自然電位および分極抵抗で評価し、本項では腐食はひび割れ部に集中すると考えられたため、腐食面積率および腐食減量率の測定は行わなかった。

**(c) 結果と考察**

ブリーディングによって生じる鉄筋下の脆弱部は鉄筋の腐食を促進させる可能性がある。そこで、用いた普通コンクリートおよび対策コンクリートのブリーディング量を測定し、その結果を図 1.4-14 に示す。普通コンクリートのブリーディング量は多くなく、累計で  $0.2\text{g}/\text{cm}^2$  程度であった。対して対策コンクリートのブリーディング量はかなり少なく、普通コンクリートの約半分の  $0.1\text{g}/\text{cm}^2$  程度であった。従って、対策コンクリートは、ブリーディングの観点からもコンクリート中の鉄筋を保護する効果は高いと考えられる。

材齢 12 週までの自然電位および分極抵抗を測定した結果を、図 1.4-15 に示す。

暴露 4 週目では、「NaCl,KCl,CaCl<sub>2</sub>」に比較して「NaCl」で、自然電位は貴に、分極抵抗は大きいため、腐食は抑制されている。この傾向は、暴露 8 週目においては分極抵抗で確認されるが、自然電位で確認されない。したがって、暴露 4 週目では「NaCl,KCl,CaCl<sub>2</sub>」のみで腐食は生じており、暴露期間 8 週では両溶液において腐食は生じたと考えられる。ただし、腐食発生時期が遅いため、暴露 8 週目において「NaCl,KCl,CaCl<sub>2</sub>」に比較して「NaCl」では、不動態皮膜の破壊程度は小さく、腐食速度は遅い。暴露 8 および 12 週目の分極抵抗は、両溶液において、普通コンクリートと対策コンクリートを比較すると、後者で大きい。したがって、普通コンクリートよりも対策コンクリートにおいて、ひび割れが生じた場合も、腐食抑制効果を期待できると考えられる。対策コンクリートはひび割れを生じていない場合、遮塩性は極めて高いと考えられるので、ひび割れが無く外部から塩水を供給した場合と比較して、ひび割れを生じたコンクリートではその効果は大きくないようである。

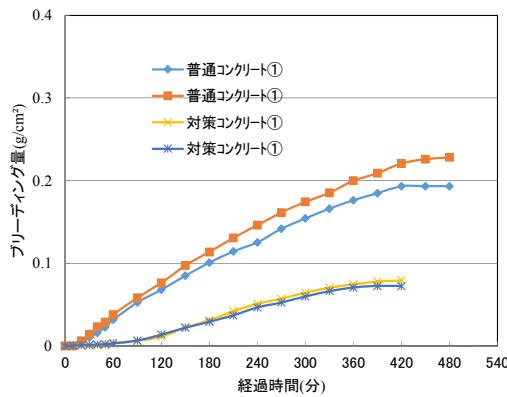


図 1.4-14 普通コンクリートおよび対策コンクリートのブリーディング量

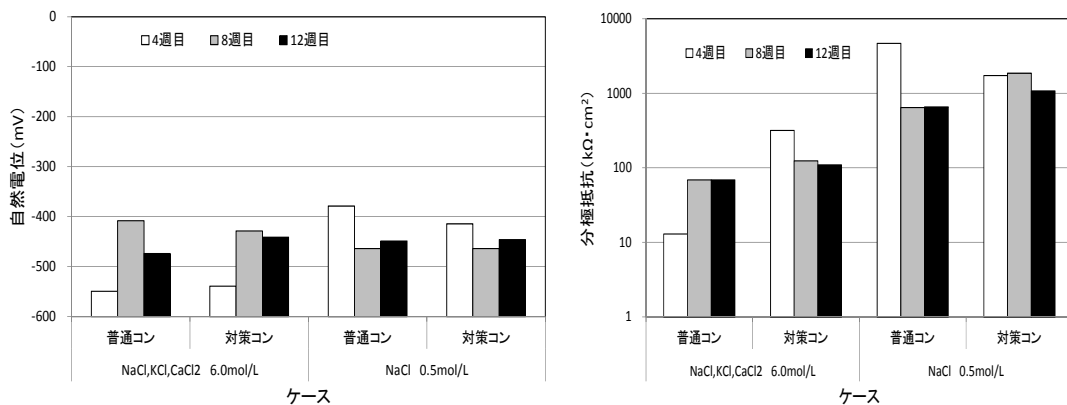


図 1.4-15 自然電位と分極抵抗 (ひび割れ導入コンクリート)

#### 4) 塩分を練り込んだ場合の鋼材腐食挙動

##### (a) 目的

本試験では、コンクリート中の Cl 量が同一の場合の腐食速度について検討を行う。Cl 量が同一であっても、FA 混合によって Cl の固定化能力と、緻密化によって酸素供給が妨げられ腐食速度が抑制される効果が期待でき、その確認を行うことを目的とした。

##### (b) 試験方法

塩分を規定量練混ぜた、普通コンクリート、および対策コンクリートを用いた。コンクリート配合を表 1.4-8 に、Cl 練り込み量での各塩の組成を表 1.4-9 に示す。練混ぜたコンクリートは、かぶり 20mm 位置に鉄筋を配した 100 x 100 x 100mm の型枠に成型し、材齢 24 時間で脱枠、材齢 1 週間までは 20°Cにて湿布養生し、その後は 40°Cにて湿空養生による促進養生した。

腐食の評価は前項と同様に自然電位および分極抵抗の測定で行った。なお、自然電位は脱枠後から 7 日まで毎日測定した。

表 1.4-8 コンクリートの配合と基礎性状(塩分練り込みコンクリート)

	Cl 量	W/B (%)	s/a (%)	単位量(kg/m <sup>3</sup> )						混和剤(wt%)			スランブ <sup>a</sup> (cm)	空気量 (%)	28 日圧縮強度(N/mm <sup>2</sup> )
				W	C	FA	Ex	S	G	15S	SP8SV	消泡剤			
普通コンクリート	0.6%	55	49	163	296	-	-	883	926	1.90	-	1.5T	7.5	(急結のため未測定)	38.7
	7.2%												8.0		29.7
対策コンクリート	0.6%	40	44	151	246	114	19	761	975	-	0.60	-	16.7		52.2
	7.2%												14.2		51.7
FA コンクリート II	0.6%	60	49	163	207	64	-	883	926	1.90		1.5T	6.8		30.2
	7.2%												6.8		25.9

表 1.4-9 各コンクリートの使用塩組成

ケース	練込み塩分量	単位量(kg/m <sup>3</sup> )		
		NaCl	KCl	CaCl <sub>2</sub>
普通コンクリート	C×0.6%	0.73	0.93	1.39
	C×7.2%	8.79	11.20	16.68
対策コンクリート	C×0.6%	0.61	0.77	1.15
	C×7.2%	7.30	9.29	13.85
FA コンクリート II	C×0.6%	0.51	0.65	0.97
	C×7.2%	6.15	7.84	11.68

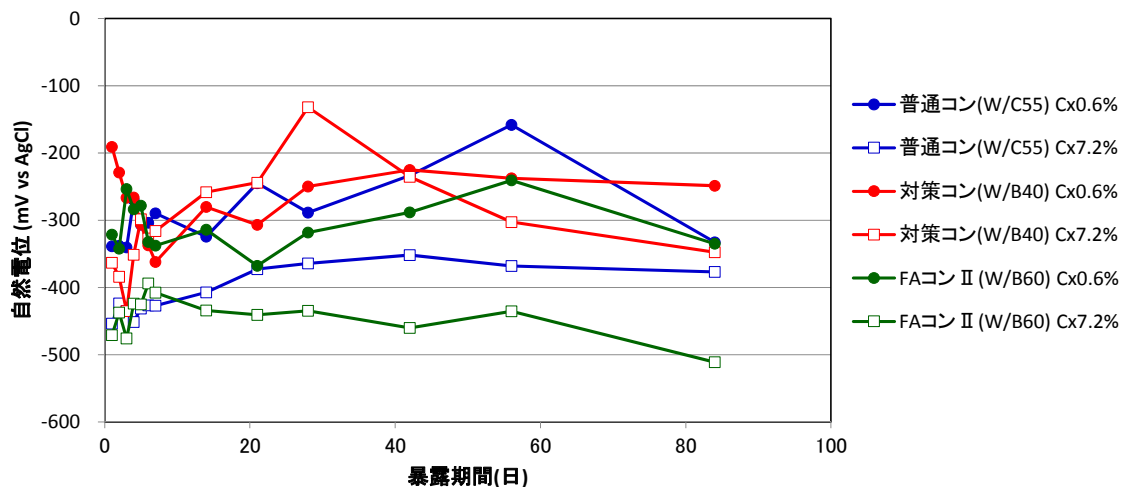


図 1.4-16 自然電位測定結果(ひび割れ導入コンクリート)

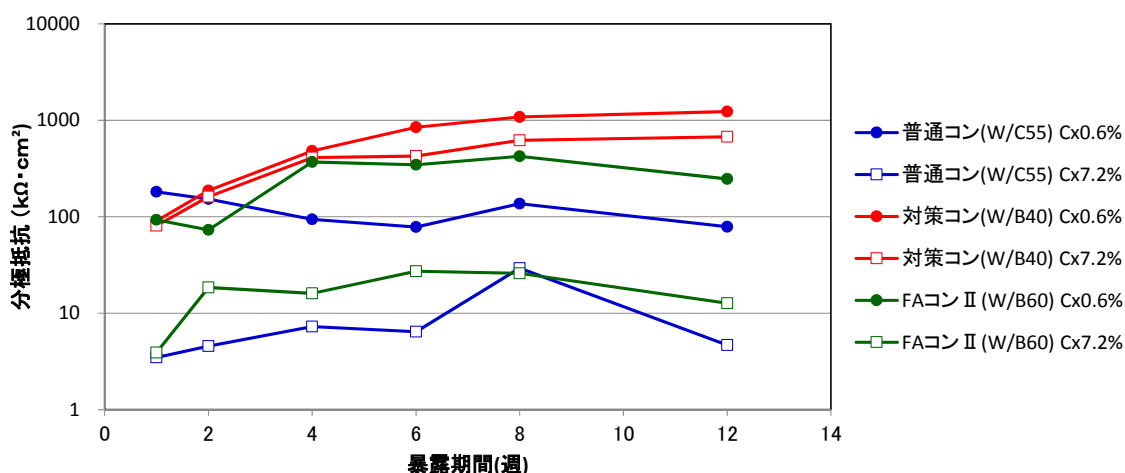


図 1.4-17 分極抵抗測定結果(ひび割れ導入コンクリート)

## 6) 結果と考察

図 1.4-16 および図 1.4-17 に、それぞれ自然電位測定値と分極抵抗測定値を示す。各試験体の n 数は 3 であり、結果は 3 体の平均として示す。

自然電位は、促進開始初期は安定しないが、促進養生 40 日ごろから安定した。自然電位は対策コンクリートの CI0.6%以外は腐食電位になったが、対策コンクリート>普通コンクリート>FA コンクリートの順で自然電位は貴な電位を示し、また、CI 濃度が高いと卑な電位となった。

一方、分極抵抗は、普通コンクリートはほぼ一定な値であったのに対し、対策コンクリート、FA コンクリートともに、コンクリート打設から抵抗は上昇する傾向にあった。これは、材齢が進むにつれて FA が反応し、腐食が抑制されたものと考えられる。

FA 混合の効果を見てみると、自然電位は普通コンクリートと比較して FA コンクリートは卑な電位にあり、腐食傾向にあるが、一方で、分極抵抗は FA コンクリートの方が大きい。すなわち、FA 混和によって、混和しない場合と比較し、自然電位は卑になるが、腐食速度は遅くなると言える。確認は必要であるが、これは、FA の反応に伴う AI による CI 固定化能の向上よりも、緻密化効果がより卓越した可能性がある。

また、対策コンクリートの分極抵抗は CI7.2%でも小さく、対策コンクリートの低 W/B が自然電位に与える影響よりも分極抵抗に与える影響が大きく、高濃度塩分であっても腐食速度の抑制効果は大きいと考えられる。

### (3) 高濃度塩水によるコンクリートの化学的劣化

#### 1) 焼却飛灰組成が化学的劣化に及ぼす影響

##### (a) 目的

CaCl<sub>2</sub> を含有する飛灰浸出液にコンクリートが接すると、コンクリートは 3CaO·CaCl<sub>2</sub>·15H<sub>2</sub>O (以下、3-1-15) による膨張性鉱物の生成のために膨張破壊する懸念がある<sup>[2][3]</sup>。この現象は、溶液の温度とイオン組成に依存すると予想されるが、その詳細は不明である。そこで、焼却飛灰抽出液組成に着目し、CI 濃度と、主に焼却飛灰に含有される陽イオンである Na, K, Ca の濃度を変えた溶液組成の浸漬液を用い、コンクリート片を異なった温度で浸漬し、その状態変化の観察

と、析出物あるいは変質部を粉末 X 線回折によって生成鉱物を確認する。なお、コンクリート片はアルカリ骨材反応 (ASR) を有する骨材を用い、アルカリ金属イオンによる ASR も考慮する。

### (b) 実験方法

表 1.4-10 に浸漬溶液試験に用いた浸漬液の組成および浸漬温度を試験結果とともに示す。Na/K/Ca 系は、焼却飛灰から低水粉体比で抽出される各イオン濃度を模擬しており (抽出模擬液濃度)、この濃度と、各イオン濃度を半分とした濃度とした。また、Ca 系は Ca および Cl のみを含むものであり、Na/K 系は抽出模擬液濃度に対して Ca を除いた浸漬液とした。各浸漬液は、試薬 NaCl、KCl および  $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  を用いて調整した。

試験体として用いたコンクリート片は、ASR 反応性骨材として安山岩 A2 (表 1.4-23) を用いたコンクリートであり、その配合は表 1.4-22 の水準 26”と同じでアルカリ総量は  $3.0\text{kg/m}^3$  としたものである。コンクリートは練混ぜ後  $\Phi 10 \times 20\text{cm}$  に成型し、 $20^\circ\text{C}$  で封かん養生約 1 ヶ月後にダイヤモンドカッターで 3cm 厚に切断し、調整した各浸漬液 500cc に浸漬し、各温度で養生した。

### (c) 試験結果

図 1.4-18～図 1.4-20 に浸漬から 6 ヶ月後、図 1.4-21～図 1.4-23 に浸漬から 12 ヶ月後試験体の状態を示す。

材齢 6 ヶ月では、試験体に外観上ひび割れが認められた試験体は 3 体のみであった。一方、浸漬溶液には成長した針状結晶、白濁が認められた溶液があった。

材齢 12 ヶ月後では、観上ひび割れが認められた試験体は 5 体となった。

各試験体の材齢 12 ヶ月でのひび割れ発生状況を表 1.4-10 に示す。試験体の相互比較から纏めると、以下ようになる。

①モルタル部の浮きおよび周囲のひび割れによる劣化が生じた試験体では、必ず Ca を含有する浸漬液で、その濃度は、 $\text{CaCl}_2$  として 15w/v%以上含む浸漬液のみであり、 $\text{CaCl}_2$  が 0w/v% および 7.5w/v%の水準には劣化が認められなかった。

②試験体自体に劣化が認められたものは、モルタル部の浮きがあり骨材が沈んでいるように観察され、また、円周周囲にひび割れを生じていた。その程度は、

0-0-15  $20^\circ\text{C} < 15-10-15$   $5^\circ\text{C} < 0-0-30$   $5^\circ\text{C} < 0-0-30$   $20^\circ\text{C}$  の順であった。

③浸漬液中には  $40^\circ\text{C}$  条件を除き、ほぼすべて白濁を生じ、針状結晶が認められた水準があった。溶液中に析出した物質を同定するため、材齢 2 ヶ月において浸漬液中に生成した白濁物、および針状結晶の粉末 X 線回折 (XRD) による分析を行った。白濁物は、主に halite (NaCl) および sylvite (KCl) であり、浸漬期間中の低温 ( $3 \sim 8^\circ\text{C}$ ) によって浸漬液の成分が結晶化したものと考えられる。一方、針状結晶は、3-1-15 であり、同時に portlandite も認められた。

表 1.4-10 材齢 12 ヶ月における浸漬試験体ひび割れ発生状況まとめ

	Na/K/Ca 系		Ca 系			Na/K 系	
	NaCl:KCl- $\text{CaCl}_2$ (%)	7.5-5-7.5	0-0-30	0-0-15	0-0-7.5	15-10-0	7.5-5-0
Cl 濃度(mol/l)	(6.61)	(3.30)	(5.40)	(2.70)	(1.35)	(3.91)	(1.95)
3~ $8^\circ\text{C}$ ( $5^\circ\text{C}$ )	○	×	○	×	×	×	×
$20^\circ\text{C}$	○*	○*	◎	×	×	×	×
$40^\circ\text{C}$	—	—	—	×	—	—	—

\*:材齢 6 ヶ月ではひび割れが認められなかった試験体

—:試験水準なし、×:ひび割れが認められない、○ひび割れが認められる、◎:ひび割れが顕著

<Na/K/Ca系(飛灰抽出模擬液)>



15-10-15 5°C

(周囲にひび割れが認められる)



7.5-5-7.5 5°C

(針状の結晶が試験体の主に気泡から成長)



15-10-15 20°C

(表層は白濁化しているが変化は認められない)



7.5-5-7.5 20°C

(底部に白濁物が析出。変化は認められない)

図 1.4-18 材齢 6 ヶ月における各種 飛灰抽出模擬液に浸漬した試験体 (Na/K/Ca系)

<Ca系>



0-0-30 5°C

(モルタル部が浮上がり、  
周囲にひび割れ)



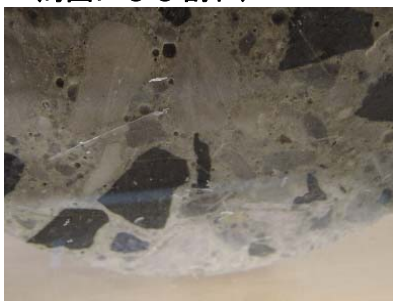
0-0-15 5°C

(若干のモルタル浮き、  
針状の結晶成長)



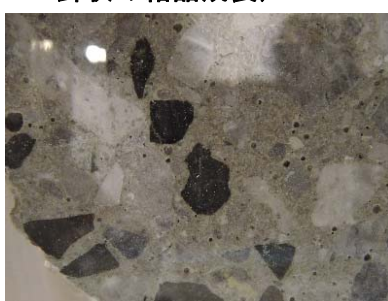
0-0-7.5 5°C

(変化なし)



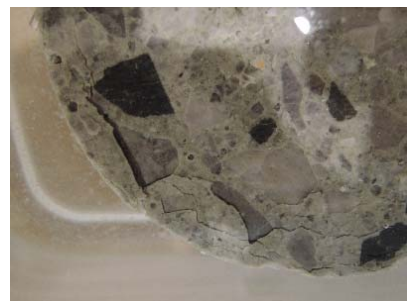
0-0-30 20°C

(周囲にひび割れ、浮き)



0-0-15 20°C

(若干の針状の結晶成長)



0-0-7.5 20°C

(変化なし)

0-0-15 40°C (変化なし)

図 1.4-19 材齢 6 ヶ月における各種 飛灰抽出模擬液に浸漬した試験体 (Ca系)

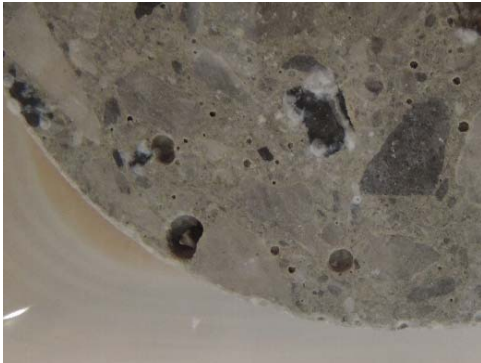
<Na/K系>



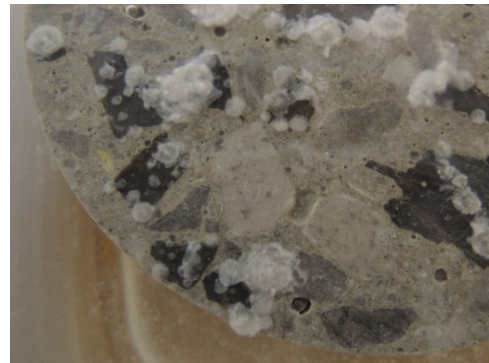
15-10-0 5°C : 溶液は白濁だが変化なし



7.5-5-0 5°C : 溶液は若干白濁だが変化なし



15-10-0 20°C : 溶液は若干白濁だが変化なし



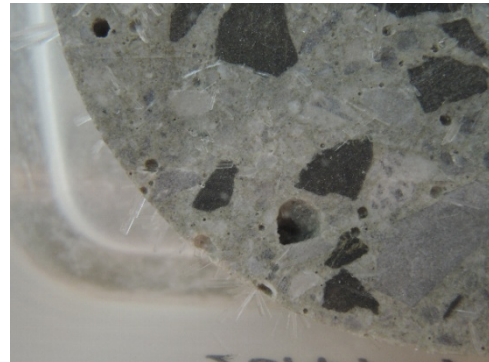
7.5-5-0 20°C : 溶液は若干白濁だが変化なし

図 1.4-20 材齢 6 ヶ月における各種 飛灰抽出模擬液に浸漬した試験体 (Na/K系)

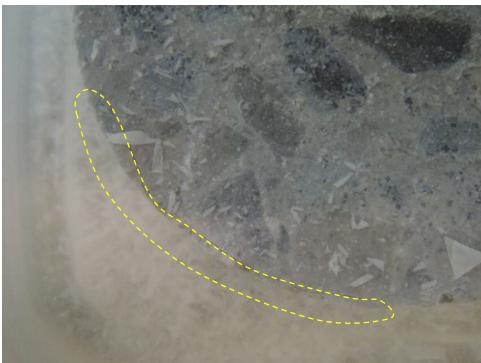
<Na/K/Ca系(飛灰抽出模擬液)>



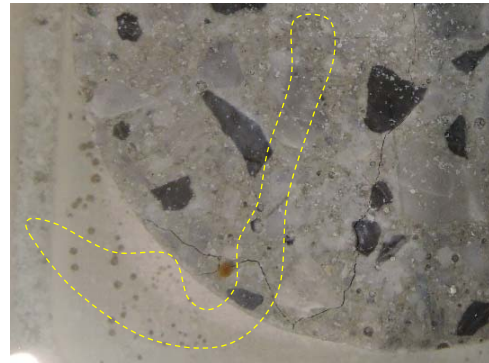
15-10-15 5°C : 周囲にひび割れペースト浮き



7.5-5-7.5 5°C : 針状の結晶が気泡から成長



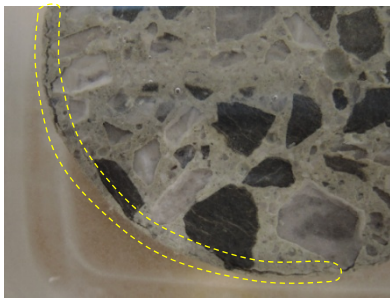
15-10-15 20°C : 周囲にひび割れ



7.5-5-7.5 20°C : 周囲と中央部にひび割れ

図 1.4-21 材齢 12 ヶ月における各種 飛灰抽出模擬液に浸漬した試験体 (Na/K/Ca系)

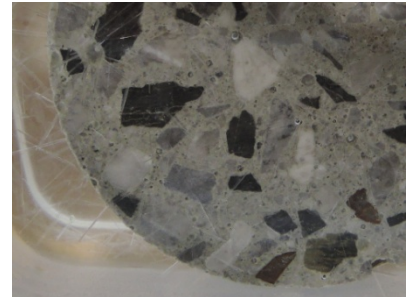
<Ca 系>



0-0-30 5°C  
(モルタル部が浮上がり、  
周囲にひび割れ)



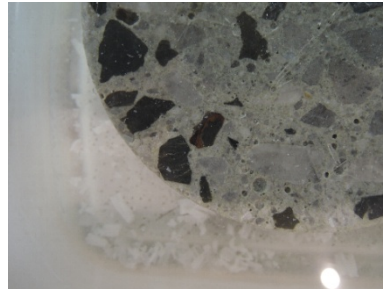
0-0-15 5°C  
(若干のモルタル浮き、  
針状の結晶成長)



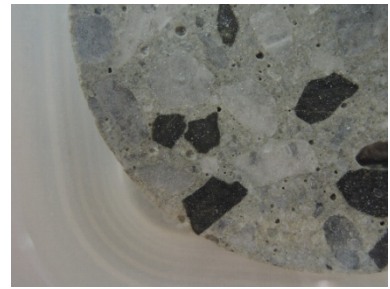
0-0-7.5 5°C  
(針状の結晶成長)



0-0-30 20°C  
(モルタル浮きひび割れ大)



0-0-15 20°C  
(若干の針状の結晶成長)  
0-0-15 40°C (変化なし)



0-0-7.5 20°C  
(変化なし)

図 1.4-22 材齢 12 ヶ月における各種 飛灰抽出模擬液に浸漬した試験体 (Ca 系)

<Na/K 系>



15-10-0 5°C  
(溶液は白濁、ASR ゲル生成)



7.5-5-0 5°C  
(溶液は若干白濁、ASR ゲル生成)



15-10-0 20°C  
(溶液は若干白濁、ASR ゲル生成)



7.5-5-0 20°C  
(溶液は若干白濁、ASR ゲル生成)

図 1.4-23 材齢 12 ヶ月における各種 飛灰抽出模擬液に浸漬した試験体 (Na/K 系)



**(d) 劣化原因の考察**

・3-1-15はCaを必須とし生成には高濃度のClが必要である。ここで、モルタル部の浮きおよび周囲のひび割れによる劣化が3-1-15によるものと仮定すると、Caを含有する浸漬液であったこと、低温で生成し易い[3]が必須成分であるClの浸透速度は20℃が早く早期に劣化を生じやすい[2]という既往の研究と観察結果(0-0-30 5℃、0-0-30 20℃の比較)とは合致することから、劣化の原因は3-1-15の生成によるものと考えられる。

・また、15-10-15 20℃と0-0-15 5℃との比較において、15-10-15 20℃はCl濃度が6.61mol/lと高く、かつ温度も20℃と高いことからClの浸透速度は0-0-15 5℃と比較して十分速く、また、劣化程度は小さいが劣化が生じた0-0-15 5℃と同じCa濃度を有し3-1-15による劣化が生じてもよいと考えられるが、15-10-15 20℃には劣化が認められていないことから、Na/Kが存在すると、3-1-15の生成が抑制されると考えられる。

・浸漬液中に生成した針状結晶は3-1-15であったが、試験体の劣化程度と、針状結晶の浸漬液中への析出とは一致せず、また、3-1-15はCaCl<sub>2</sub>が高濃度ほど析出し易いと考えられるが、よりCaCl<sub>2</sub>濃度が高い浸漬液では析出していないなど、不明な点があった。

**2) 焼却飛灰模擬溶抽出液を用いた化学的劣化**

**(a) 目的**

FAを混合したコンクリート、および、普通コンクリートを用い、焼却飛灰模擬抽出液に浸漬させ、その状態観察と、変質部のXRDによる生成鉱物を分析し、焼却飛灰に対するコンクリートの抵抗性を確認する。

**(b) 試験方法**

用いたコンクリートはNo.21(普通コンクリート)およびNo.23(FA30%置換コンクリート)であり、何れも骨材A2を用いたアルカリ添加なしのW/C50%、単位セメント量160kg/m<sup>3</sup>としたNIES提供のコンクリートである。作製時の配合を表1.4-11に示す。コンクリートは練混ぜ・成型後、2週間室温で封かん養生したものである。

コンクリートを浸漬させた飛灰抽出模擬液の組成は表1.4-12に示す。浸漬温度は20℃および40℃とした。

**表 1.4-11 コンクリート配合(化学的劣化)**

水準	単位量 (kg/m <sup>3</sup> )						混和剤		
	OPC	FA	水	細骨材 (非反応性)	粗骨材 (反応性)	粗骨材 (非反応性)	AE減水 剤(kg/m <sup>3</sup> )	AE助剤 (g/m <sup>3</sup> )	NaOH換算 (kg/m <sup>3</sup> )
No.21	320	—	160	843	290	721	1.0	6.4	—
No.23	224	96	160	829	286	720	1.0	6.4	—

**表 1.4-12 用いた焼却飛灰模擬抽出液の組成(単位: mol/l)**

Na	K	Ca	Cl	SO <sub>4</sub>
2.55	1.32	1.38	6.61	0



図 1.4-24 焼却飛灰抽出模擬液へのコンクリート試験体の浸漬状況（4ヶ月経過後）  
（上段：20℃浸漬、下段：40℃浸漬）

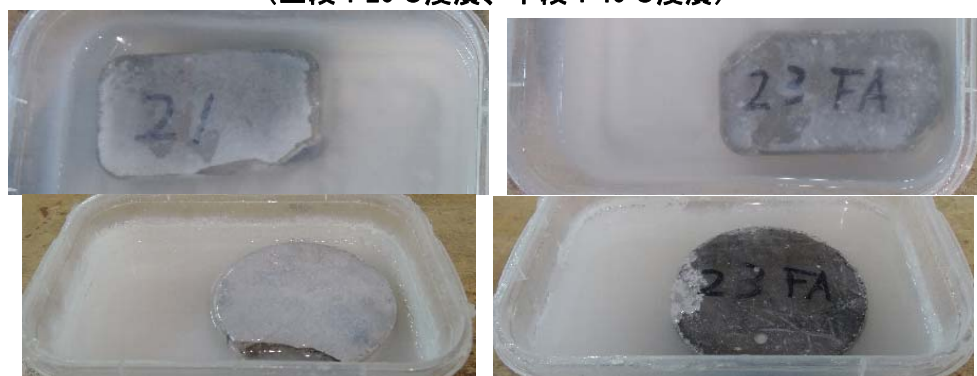


図 1.4-25 焼却飛灰抽出模擬液へのコンクリート試験体の浸漬状況（1年半経過後）  
（上段：20℃浸漬、下段：40℃浸漬。試験体が欠けているのは XRD 測定のため。）

## 7) 結果と考察

浸漬 4 ヶ月での試験体の浸漬状況を図 1.4-24 に、また、浸漬 1.5 年での試験体の浸漬状況を図 1.4-25 に示す。浸漬期間が長くなると、浸漬液は白濁となり、一部、結晶状のものも認められた。しかし、浸漬期間 1.5 年経過しても試験体は何れも外観上変化は生じていなかった。

材齢 6 ヶ月において、試験体を一部採取し粉末 X 線回折を実施した結果によると、普通コンクリートに高濃度塩化カルシウム溶液でコンクリートに劣化を生じる原因物質と考えられる  $3\text{CaO} \cdot \text{CaCl}_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$  (3-1-15) が認められ、40℃と比較して 20℃で強い回折強度を示す。また、ポルトランドライトは普通コンクリートに認められ、FA コンクリートには殆ど存在しないようであった。なお、何れの試験体にも halite (NaCl)、sylyine (KCl) が認められた。

No.21 (普通コンクリート) および No.23 (FA30%置換コンクリート) の焼却飛灰抽出模擬液の浸漬では、20℃および 40℃ともに、試験体にひび割れなどの劣化は生じなかった。しかしながら、XRD 分析の結果、普通コンクリートにのみ 3-1-15 が認められ、20℃の方がその生成量が多いが 40℃でも認められた。試験体に劣化は認められないが、普通コンクリートに 3-1-15 が生成していることから、今後、Cl の浸透がより進めば、劣化を生じる可能性があると考えられる。

一方、FA30%置換したコンクリートは、何れの温度でも 3-1-15 は認められなかった。また、3-1-15 の生成には  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  が必要であるが、FA コンクリートには  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  が認められない。FA の混和によって Cl の浸透は普通コンクリートより遅いと考えられるが、FA コンクリートには  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  が認められないことから、今後、さらに時間経過によって Cl が浸透したとしても、FA コンクリートでは 3-1-15 が生成による劣化は限定的であると考えられる。

#### (4) 湿潤飛灰によるコンクリートの乾燥解析

##### 1) 含水率の異なる吸湿飛灰がコンクリートに及ぼす影響

###### (a) 目的

最終処分場で処分される焼却飛灰は、施工時には低含水率であると考えられるが、飛灰には塩化カルシウムを含有することから、経年等によって吸湿することが考えられ、吸湿によって、コンクリートが乾燥し、また、飛灰が吸湿によって含水率が変化して漏水し、コンクリートに塩化物イオンが作用することも考えられる。

そこで、ここでは、最終処分場において内部に飛灰を入れた時のコンクリートを模擬し、上下面のみを解放としたコンクリート試験体を用い、上面部は密閉空間として塩化カルシウムを負荷した焼却飛灰を入れ、下面解放とした条件で、コンクリートの収縮状況、および、下面からの透湿によって漏水した飛灰によってコンクリートにどの程度の塩分が浸透するかを確認することを目的とした。

なお、この目的を達成するため、予備試験として以下を行なった。上部を密閉空間としたコンクリートに焼却飛灰を入れ、経時的な質量変化および飛灰の漏水状態を確認し、計画した試験の妥当性を検証した。漏水はコンクリートを通しての吸湿によるものであり、その時間的な要因も考えられたため、比較として、コンクリートを使用せずに透湿防水シートを用いて、自由に湿度が透過できる条件についても試験を行うこととした。

###### (b) コンクリートを用いた予備検討

###### ① 概要

コンクリート試験体の上に粒状塩化カルシウムを載せアクリル容器で覆った条件下での高濃度塩水の生成状況を確認した。予備検討では、塩水の生成状況、試験体の質量変化、漏水の発生状況などを確認した。

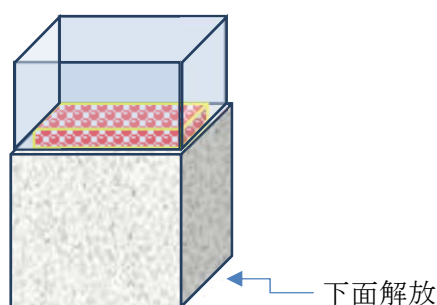


図 1.4-26 試験体のイメージ

###### ② 試験体

40℃-封緘養生を1ヵ月間行った普通コンクリートを作製し、100×100×厚さ100mmと100×100×厚さ50mmのサイズの試験体をコンクリートカッターを用いて湿式で切り出した。切り出した試験体の上下面を除く4面を非透湿性塗料でシールし、上部に板厚2mmのアクリル板で作製した囲いを載せ、この囲いの中に粒状塩化カルシウムを200g入れ、アクリル板で蓋をした。非

透湿性塗料には、太平洋マテリアル㈱製の2液硬化型のエポキシ樹脂「ユニタック#5000-3」（推奨塗布量 0.3kg/m<sup>2</sup>）と菊水化学工業㈱製の「キクスイ浸透性プライマー」（推奨塗布量 0.31～0.47kg/m<sup>2</sup>）を用いた。ユニタック#5000-3を3面に、キクスイ浸透性プライマーを1面にそれぞれメーカーが推奨する塗布量を塗布した。試験体のイメージを図1.4-26に、作製した試験体を図1.4-27に示す。

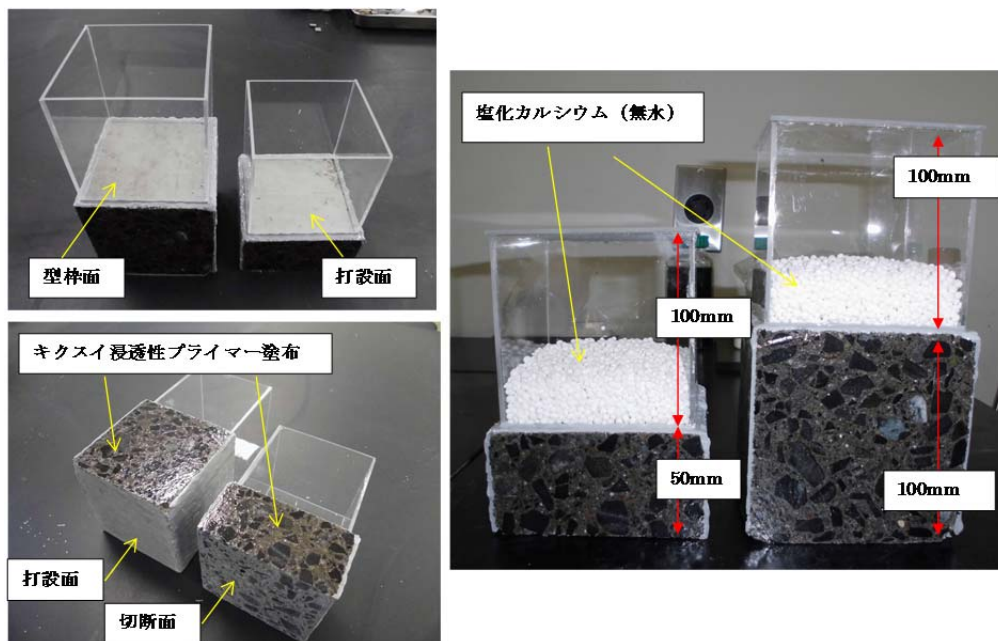


図 1.4-27 作製した試験体

表 1.4-14 使用材料

使用材料	記号	種類・名称	製造会社・産地・備考等	密度(g/cm <sup>3</sup> )
水	W	水道水	-	-
セメント	C	普通ポルトランドセメント	太平洋セメント株式会社 熊谷工場品	3.16
細骨材	S	山砂	静岡県掛川市産	2.59 (表乾密度)
粗骨材	G	G <sub>大</sub>	茨城県桜川市産 質量比で G <sub>大</sub> :G <sub>小</sub> = 0.25:0.75 で混合	2.65 (表乾密度)
		G <sub>小</sub>		2.62 (表乾密度)
混和剤	15S	AE 減水剤 マスターポリヒード 15S	BASF ジャパン株式会社	-
	303	AE 剤(I 種)マスターエア 303A	BASF ジャパン株式会社	-

表 1.4-14 コンクリートの配合

配合	内容	W/B (%)	s/a (%)	単位量(kg/m <sup>3</sup> )						
				W	P			S	G	
					C	FA	Ex		G <sub>大</sub>	G <sub>小</sub>
1	NPC	55	47	163	296			850	972	
					296	-	-		245	727

### ③ 使用材料と配合

使用材料を表 1.4-13 に、配合を表 1.4-14 に示す。

### ④ 試験環境条件

作製した試験体を 40℃、95%RH 以上となるように設定した恒温恒湿槽（図 1.4-28）に入れ、経時的に試験体の質量変化、漏水発生を確認した。



図 1.4-28 恒温恒湿槽内への試験体設置状況

### ⑤ 結果

厚さ 50mm と 100mm の試験体の質量変化を図 1.4-29 に示す。厚さ 50mm の試験体では、試験開始から 10 日目にコンクリートとアクリル容器の接着面から潮解した塩化カルシウムの溶液が漏れていることが確認された。このため、図 1.4-30 に示すように防水性のシーリング材をコンクリートとアクリル容器との接着面の外周部に塗布したが、試験体の質量が増減し、液漏れを完全に止めることができなかった。

厚さ 100mm の試験体では、液漏れは確認されなかったが、コンクリートとアクリル容器との接着面のシーリング材を塗布した。そして、試験日数の経過に伴い試験体の質量は徐々に増加していた。

以下、厚さ 50mm と 100mm の試験体別に状況変化を記す。

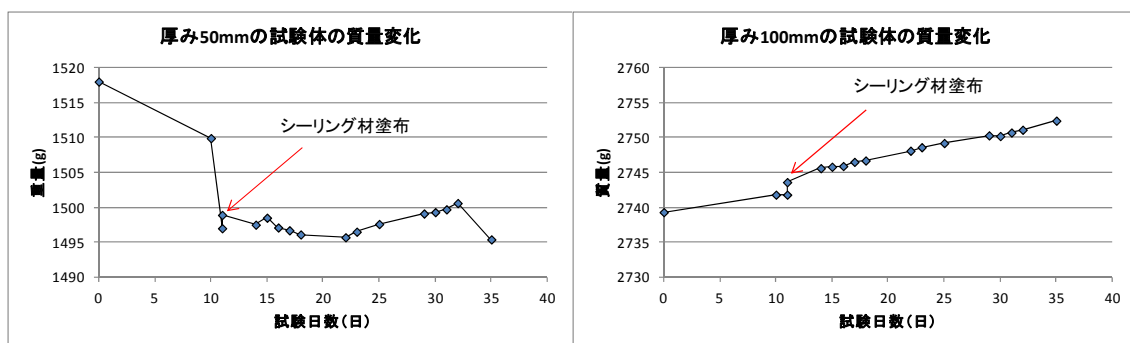


図 1.4-29 予備検討での質量変化

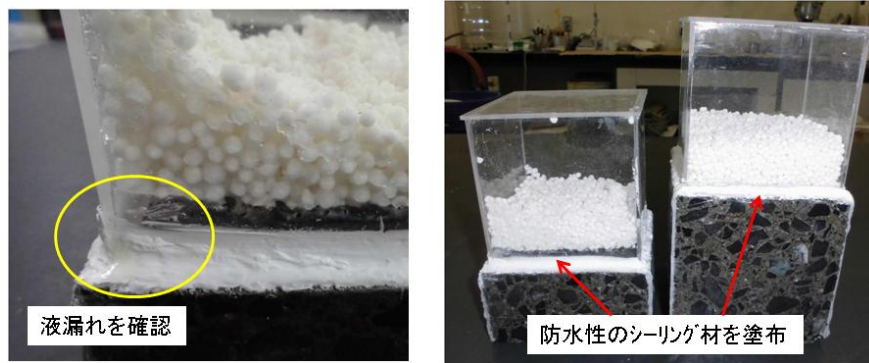


図 1.4-30 厚さ 50mm の試験体での液漏れとシーリング材塗布後の状況

・厚さ 50mm の試験体

厚さ 50mm の試験体では、試験開始から 4 日目に確認した時には、試験体を傾けると液が溜まる状態になっており、液の溜まる量は、4 日目よりも 7 日目の方が多くなっていました。また、アクリル容器内の粒状の塩化カルシウムは、試験開始から 4 日目では、既に粒子同士がくっつき合った状態になっていた。その時の状態を図 1.4-31 に示す。

そして、日数が経過するに伴い、アクリル容器内に入れた粒状の塩化カルシウムとコンクリートとの境界付近に大きな空間が形成されていた。これは、塩化カルシウムの潮解と液体が漏れ出すことが繰り返されたことが原因と考えている。



図 1.4-31 厚さ 50mm の試験体の状態

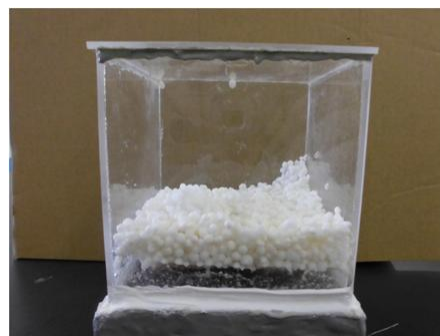


図 1.4-32 試験開始から 30 日目（厚さ 50mm の試験体）

・厚さ 100mm の試験体

厚さ 100mm の試験体では、試験開始から 17 日目に試験体を傾けると液が溜まる状態になっていた。18 日目と 30 日目に確認したところ、図 1.4-33 に示すように 18 日目と 30 日目の液の溜まる量は、17 日目とあまり大差ない状況であった。

なお、図 1.4-34 に示すように、粒状の塩化カルシウムとコンクリートとの境界付近に大きな空間は形成されておらず、液漏れは確認されなかった。



図 1.4-33 厚さ 100mm の試験体の状態変化

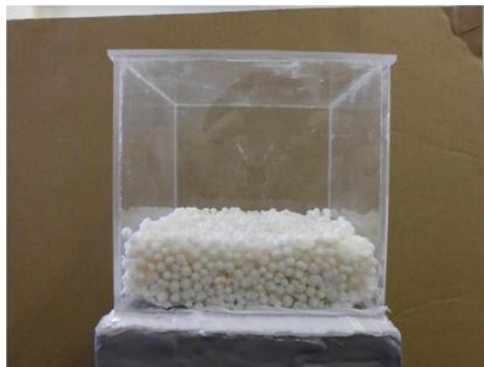


図 1.4-34 試験開始から 30 日目（厚さ 100mm の試験体）

以上の検討結果から、コンクリート上部の塩化カルシウムは、コンクリートを通じた透湿によって吸湿し、また、吸湿によって塩化カルシウムからの漏出水は、容易にはコンクリートに吸水せず、コンクリート表面に留まる可能性があることが示唆された。

### (c) 透湿防水シートによる予備検討

#### ①目的

コンクリートに変えて透湿防水シートを用いて、コンクリートでの予備検討と同様に塩水の生成状況、質量変化、漏水の発生状況を確認した。

#### ②試験方法

外径 50mm×高さ 60mm の蓋付きの円筒プラスチック容器の中に粒状の塩化カルシウムを 10g 入れ、直径約 80mm 程度の丸型に切りぬいた透湿防水シートをプラスチック容器の口に被せ、その上に、直径 40mm 程度の穴を開けた円筒プラスチック容器の蓋をした。容器に蓋をした後、樹脂製の硬質ネットを敷いた角型プラスチック容器に円筒容器の蓋が下側になるように置き、40℃

-100%RH に設定した恒温恒湿槽に入れた。

試験に用いた透湿防水シートは、セーレン(株)製の「ラミテクト Hi」である。透湿防水シートの主な物性値を表 1.4-15 に示す。また、使用した材料、作製した試験体、試験実施時の状況などを図 1.4-35～図 1.4-36 に示す。

なお、試験開始時の全体質量（容器+透湿防水シート+塩化カルシウム）は 32.0g、容器に入れた塩化カルシウム量は 10.0g であった。

表 1.4-15 ラミテクト Hi 物性表

項目		JIS A 6111-2001 規格値	ラミテクト Hi
透湿性 $m^2 \cdot s \cdot Pa / \mu g$		0.12 以下	0.12 以下
結露防止性		結露は認められない	結露は認められなかった
引張強さ	縦	100N 以上	180 以上
	横	100N 以上	100 以上
つづり針保持強さ	縦	30N 以上	30 以上
	横	27N 以上	30 以上
発火性		発火しないこと	認められなかった
防水性		10kPa 以上	34 以上
防風性		10 以上	250 以上

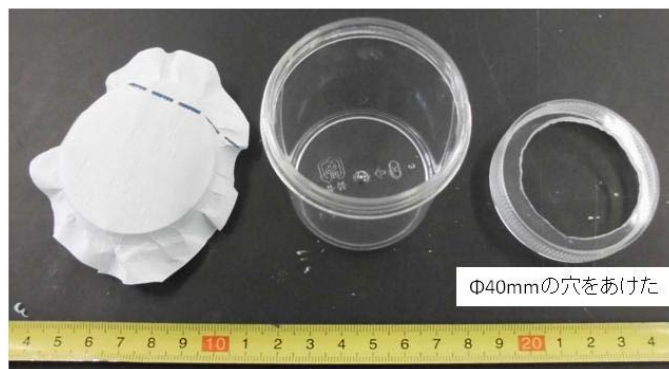


図 1.4-35 試験に用いた透湿防水シート、円筒プラスチック容器

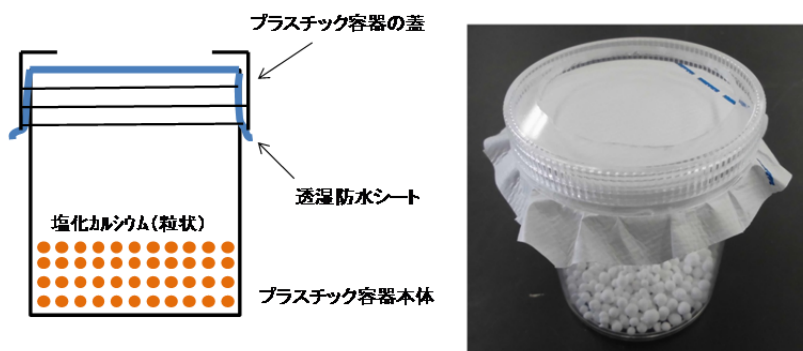
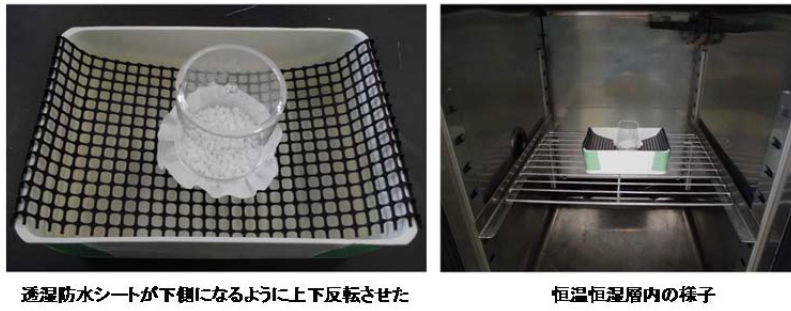


図 1.4-36 粒状の塩化カルシウムを容器に入れて蓋をした状態





透湿防水シートが下側になるように上下反転させた

恒温恒湿室内の様子

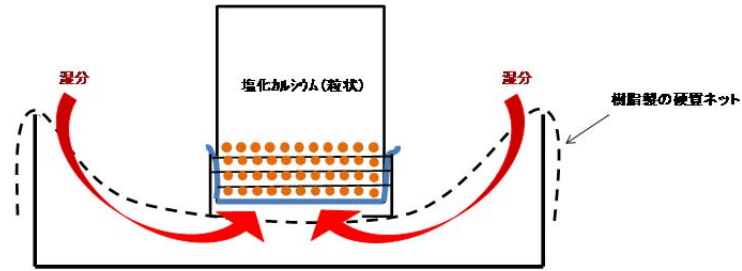
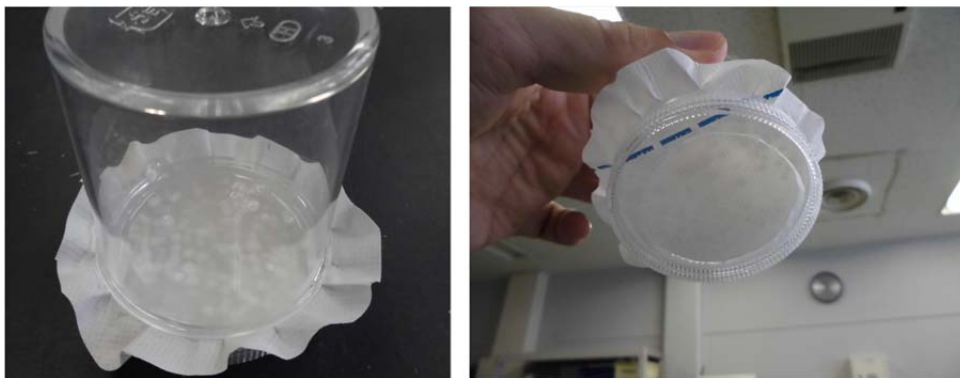


図 1.4-37 試験実施時の状況

表 1.4-16 質量変化

			全体質量(g)	増減(g)	備考
7月18日	金	10:52	32.00	0.00	試験開始時
		14:52	34.80	2.80	液漏れなし
		16:41	35.56	3.56	液漏れなし
7月22日	火	8:14	28.14	-3.86	透湿防水シートにシワが寄り液漏れしていた

※角型容器内に溜まっていた液体の質量:51.34g



塩カルが吸湿溶解している

漏水は確認されなかった

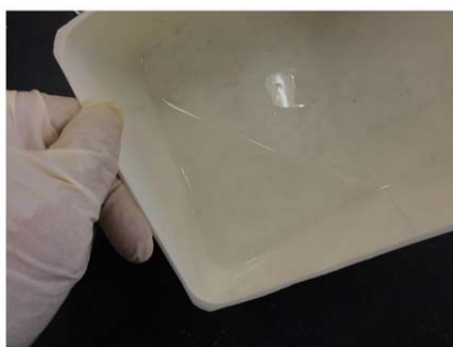
図 1.4-38 試験開始から約 4 時間後の状態



容器内の塩カルは完全に溶解



透湿防水シートにシワが寄っていた



下に置いた受け容器内には液体が溜まっていた

図 1.4-39 試験開始から 4 日目の状況

## ⑥ 結果

試験開始からの質量変化を表 1.4-16 に示す。試験開始から約 4 時間後の状態を図 1.4-38 に示す。試験開始から 4 時間経過後には、大半の塩化カルシウムが潮解し質量も増加していたが透湿防水シートからの液漏れは確認されなかった。試験開始から約 6 時間後の状態は、4 時間経過後の状態と大差なかった。試験開始から 4 日目になると、円筒容器内の塩化カルシウムは全て溶解しており、透湿防水シートにはシワが寄っており、容器内には液体が僅かしか残っていなかった。一方、円筒容器の下側に置いていた角型容器内には大量の液体が溜まっていた。この時の状況を図 1.4-39 に示す。

### (d) 予備試験のまとめ

透湿防水シートの潮解した水のシートを通した漏れによって、コンクリートとの比較はできなかったが、40℃-RH100%の条件における塩カルの吸湿・潮解は、かなり早い時期から生じることが確認されたことから、試験条件として 40℃での促進は妥当と考えられる。

また、透湿防水シートを使用した予備検討では、かなり早期から潮解が認められたことから、コンクリート中の湿度の透気性が潮解に左右し、また、コンクリートも同時に乾燥を受ける可能性がある。また、潮解によって生じた液体が、コンクリートの空隙を通じて毛細管現象により吸水する可能性があるが、コンクリート上面に留まったことから、吸水は限定的になると考えられる。

## (e) 本試験

### ① 目的

本項では、予備試験の結果を踏まえ、遮断型構造の処分場における指定廃棄物を格納するコンクリートピットの断面を模擬した試験体を作製し、焼却飛灰の吸湿によるコンクリートピット内部の乾燥状態におけるコンクリートの収縮挙動を明らかにすることを目的とした。

図 1.4-40 に示すように、乾燥抑制塗料を用いて、乾燥面を上下の 2 面に限定することで、遮断型構造のコンクリートピット断面を模擬し、画像相関法を用いて、経時的なコンクリートの乾燥収縮により試験体撮影面に生じるひずみ分布の変化を測定した。

実験において、最終処分場が建設される立地・気候や、コンクリートの調合に関しては複数の検討が必要になる。したがって、コンクリートの調合として、一般的な普通ポルトランドセメントを用いたコンクリート（以下、普通コンクリート）と、汚染焼却飛灰廃棄物の特性を考慮し、温度応力やアルカリ骨材反応、塩分浸透への抵抗性が高いと考えられる、フライアッシュと膨張材を使用したコンクリート（以下、対策コンクリート）とを比較対象とした。試験体の乾燥条件は 20℃60%RH と 40℃10%RH での比較、および 20℃湿潤状態と 40℃湿潤状態での比較を行った。

また、コンクリートピットに格納される焼却飛灰の多くは、防水シートで作られたフレキシブルコンテナ容器に収納される。そのため、焼却飛灰の吸湿は主に、フレキシブルコンテナの上部から起こり、このとき、コンクリートと焼却飛灰は互いに非接触の状態である。しかし、焼却飛灰がフレキシブルコンテナの底部や側部に生じた亀裂や、上部から漏れ出た場合には、焼却飛灰とコンクリートが接触した状態で焼却飛灰の吸湿が起こる。本研究では、このような焼却飛灰がコンクリートに接触および非接触の状態についても比較検討を行った。

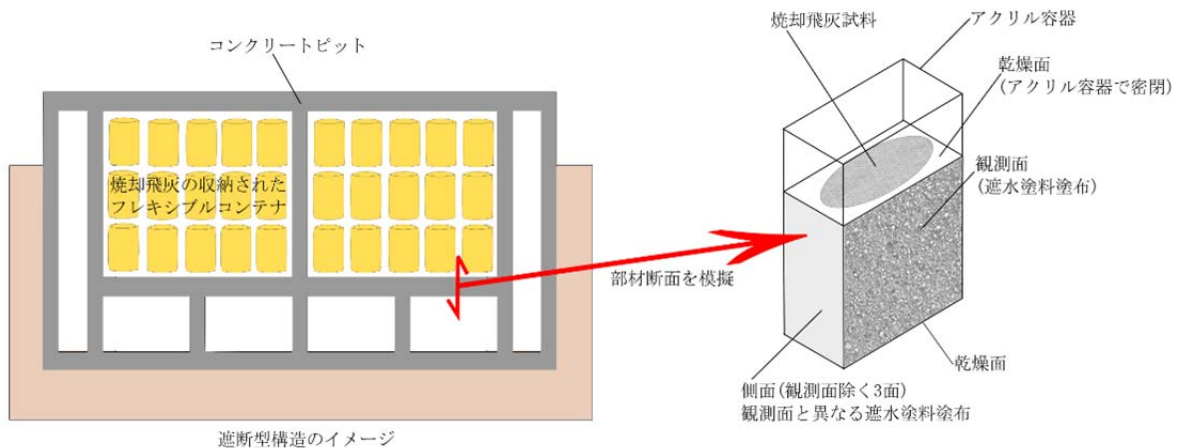


図 1.4-40 コンクリートピット断面と試験体の模擬図

### ② 試験方法

#### (ア) 使用材料と配合

使用材料およびコンクリート配合は、普通コンクリートおよび対策コンクリートとした（表 1.4-9）。試験体は、脱枠後、材齢 28 日まで 40℃封緘養生を行い、その後、20℃封緘養生を行った。

### (イ) 試験体の被覆

材齢 61 日目に湿式のコンクリートカッターで 100mm×100mm×50mm のサイズに切り出した。試験体を切り出し後、画像を取得する切断面 1 面と上下方向の型枠面 2 面の計 3 面を除いた 3 面を太平洋マテリアル(株)製のエポキシ樹脂「ユニタック #5000」で被覆した。

エポキシ樹脂が十分に硬化した後、デジタル画像相関法に用いる試験体の観測面は、切断後、表面に見られる空隙を二液反応硬化系エポキシ樹脂で埋め、樹脂の硬化後に湿式研磨を行い、平滑な面とした。その後、遮水塗料として二液反応硬化系エポキシ樹脂系塗料（キクスイプライマー EPW）を使用し、他面とは異なる遮水塗料を用いた。

その後、試験体の上側に高さが 50mm となるアクリル容器を設置した。このアクリル容器の中には、接触、非接触の状態となるように塩化カルシウムを混合した飛灰を入れた。

試験体は、普通コンクリートと対策コンクリートそれぞれについて 12 個ずつ作製した。

### (ウ) 試験パラメータ

表 1.4-17 に本実験で扱う試験体のパラメータを示す。乾燥条件は 20℃および 40℃の 2 水準とした。試験体の上側の乾燥面（以下、上乾燥面）に取り付けたアクリル容器には、内部に焼却飛灰を添加する。飛灰の添加状態は、接触・非接触の 2 水準とした。これは、処分場のコンクリートピット内部で起こる焼却飛灰の吸湿挙動が、焼却飛灰がコンクリートに接した状態と接していない状態で起こることを想定している。図 1.4-41 に 2 水準の飛灰試料の添加状況を示す。試験体の上乾燥面に 5×10×5cm のアクリルケースを接着剤で取り付け密閉とし、内部に焼却試料を添加した。非接触水準では、前述のアクリルケース内部に 4×9×3cm のアクリル容器を置き、容器内に飛灰試料を添加した。なお、試料の暴露面積を確保するうえで、容器とコンクリートの接触が極力小なるよう、容器の底部にアクリル棒を取り付けた。

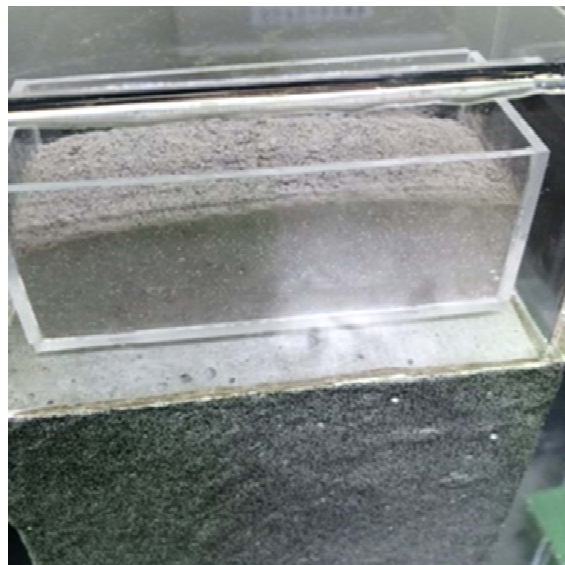
本実験では、焼却飛灰に CaCl<sub>2</sub> を 15wt% で添加した試料を用いた。また、接触水準と非接触水準の両水準間では、添加する試料高さを 2cm で統一して実施した。

表 1.4-17 画像相関法試験水準一覧

パラメータ	調合	乾燥	飛灰
N20C	普通	20℃	接触
N20UC			非接触
N40C		40℃	接触
N40UC			非接触
NFE20C	対策	20℃	接触
NFE20UC			非接触
NFE40C		40℃	接触
NFE40UC			非接触



接触水準



非接触水準

図 1.4-41 飛灰試料の添加状況

#### (エ) 画像相関法による二次元ひずみの測定

画像相関法は既往の方法<sup>[4]</sup>を用いた。詳細は以下の通りである。

各パラメータにおいて試験体を用いて、画像相関法（デジタル画像相関法）により試験体観測面に生じたひずみ分布を測定した。同時に、試験体の質量を電子天秤で数日おきに測定した。

デジタル画像相関法<sup>[5]</sup>とは、試験体表面にランダムな模様を作成し、変形前後をデジタルカメラなどで撮影、得られたデジタル画像の輝度分布から、試験体の変位とその方向を求める手法である。本検討では、二次元のひずみ分布を測定することにより、焼却飛灰の吸湿によるコンクリートの収縮挙動を把握しようとして試みた。デジタル画像相関法には、CCD カメラ Atik383L+（ATIK 社製、3326×2504 ピクセル）、カメラレンズ Ai AF Nikon 35mm f/2D（Nikon 社製）を使用した。試験体の観測面には、前処理として白色の遮水塗料の上に黒色のスプレーを吹き付け、まだら模様を作製した。スプレーの乾燥後、飛灰試料の添加前に基調を撮影、その後試料を添加し乾燥を開始した。

なお本実験では、各乾燥条件における試験体の下側の乾燥面（以下、下乾燥面）の暴露状態を、試験体を保管している恒温槽内の相対湿度下（20℃60%RH および 40℃5－20%RH）で行った検討と、各温度の恒温槽において、湿ったウエスの入ったアルミニウム製の密閉袋（以下、アルミバック）に試験体を入れ湿潤状態を保って行った検討の 2 種類行った。

したがって、以降の記述は、

- (a) 各温度の恒温槽内の相対湿度下での検討
- (b) 湿潤状態での検討

上記の 2 検討に分けて行っていく。

#### ア) 各温度の恒温槽内の相対湿度下での検討

図 1.4-42 に撮影に使用した治具を示す。40℃水準で乾燥させている試験体は、恒温槽から試験体を取り出したのち、吸湿を防ぐためアルミバックに入れて 20℃となるまで冷却、その後画像相関法に使用する画像の取得を行った。

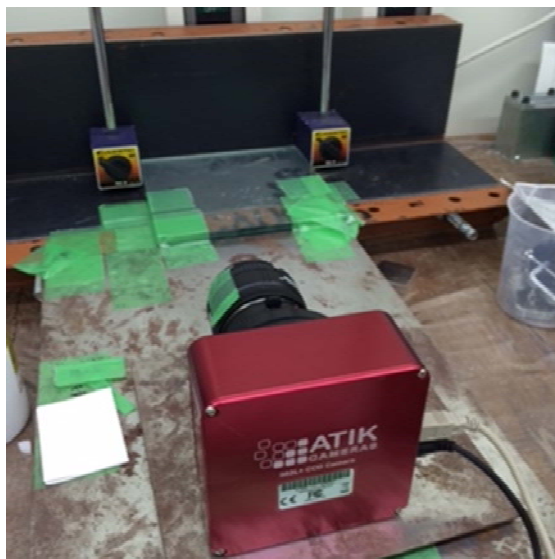


図 1.4-42 相対湿度下での画像相関法撮影に使用した治具

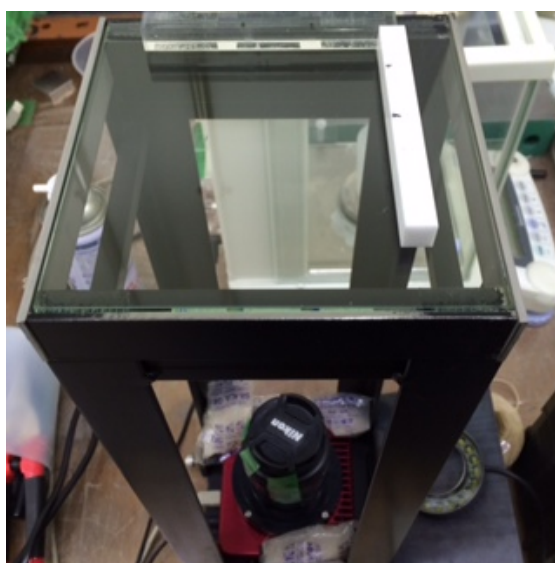


図 1.4-43 湿潤状態での画像相関法に使用した治具

#### イ) 湿潤状態での検討

図 1.4-43 に撮影に使用した治具を示す。40℃恒温槽で保管している試験体は、内部が湿潤になっていないアルミバックに試験体を移し、20℃になるまで冷却し、画像の取得を行った。また、アルミバック内に入れる湿ったウエスは定期的に濡らし、絞ったうえで再びアルミバック内に戻すことで、内部の湿潤状態が維持されるよう配慮した。また、内部で、試験体とウエスが直接接触れないよう配慮した。

### (オ)EPMA による Cl 浸透深さの測定

試験開始から 91 日経過後、N40C（普通コンクリート、40℃、飛灰接触）および NFE40C（対策コンクリート、40℃、飛灰接触）の試験体を用い、試験体に浸透した Cl 量を確認するため、EPMA による元素分布の測定を行った。測定部位は、飛灰を接触する部分の 40 x 40mm 角であり、測定元素は Ca、Si、Al、S、Cl で、測定は 50 ピクセルとした。

## ③結果及び考察

### (ア) 各温度の恒温槽内の相対湿度下での検討

#### ア) 質量変化

図 1.4-44 に各パラメータの脱水量の経時変化を示す。同じ乾燥条件で比較すると、20℃・40℃ともに普通コンクリートの方が多く脱水している。また、飛灰条件で比較を行うと、N40C と N40UC では大きな差が見られるが、他のパラメータではおおむね同じ脱水量であった。

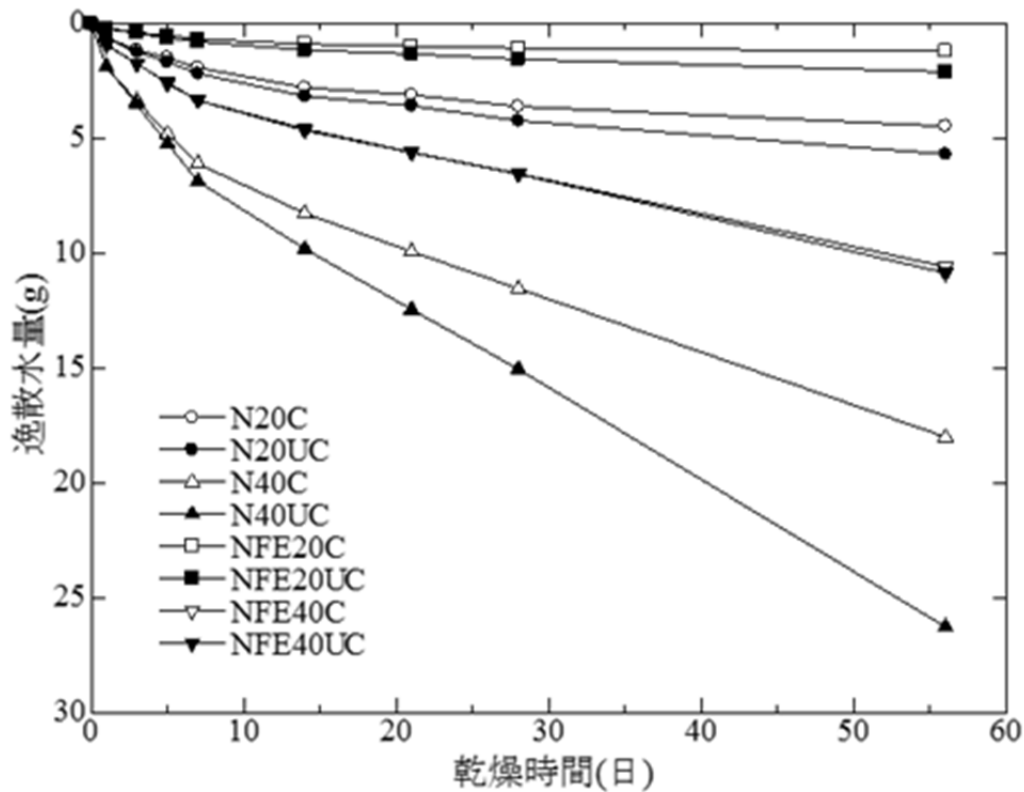


図 1.4-44 脱水量の経時変化

## イ) 画像相関法によるひずみ分布

### ・最大主ひずみ分布

図 1.4-45 に画像相関法により得られた N20C、NFE20C 表面の、乾燥期間 7 日、14 日、28 日、56 日の最大主ひずみ分布を示す。なお、図の試験体上部が飛灰と接触する上乾燥面である。28 日、56 日の画像では NFE20C に対して N20C の方がより試験体の内部まで乾燥が進んでいることが分かる。

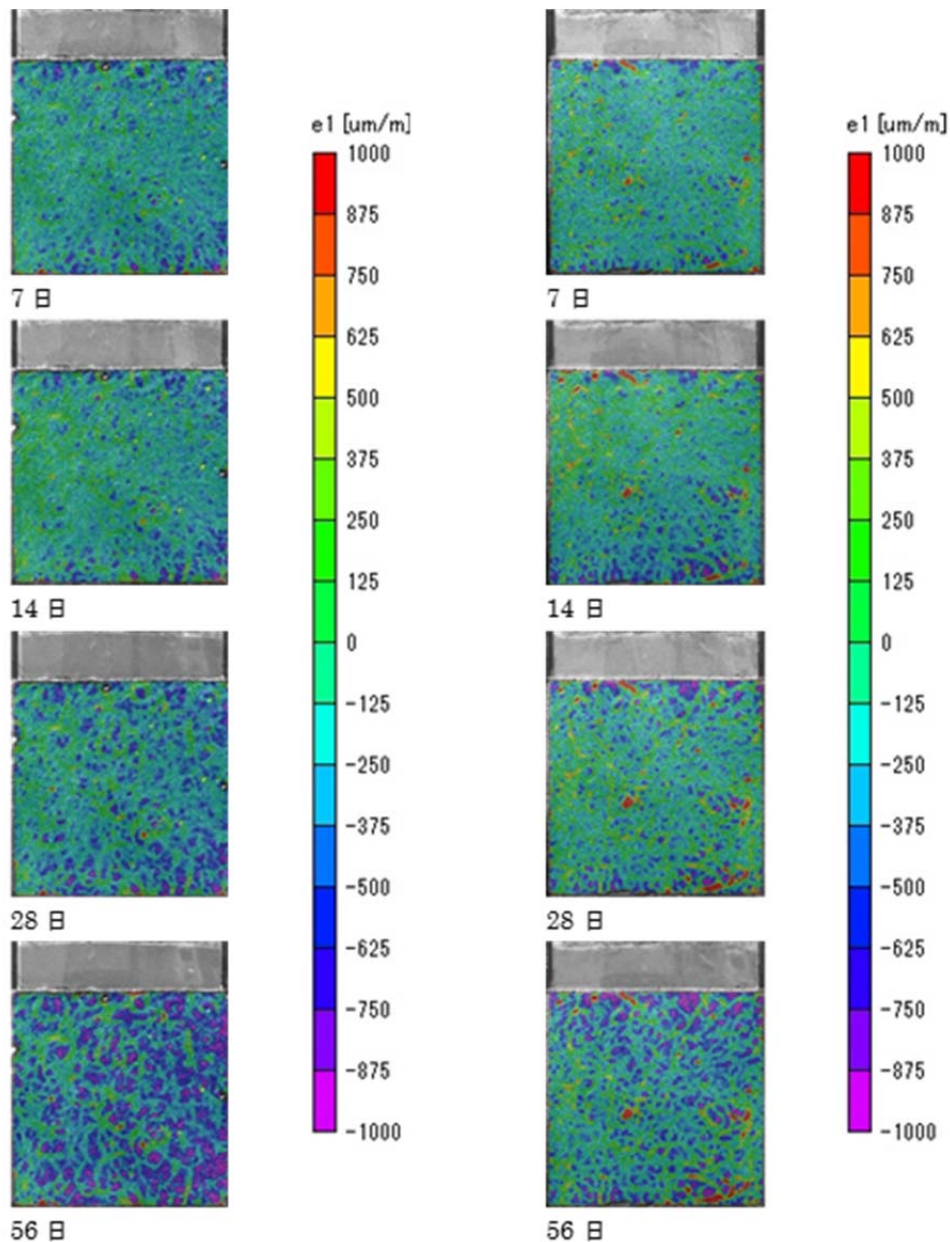


図 1.4-45 最大主ひずみ分布の経時変化 (左 : N20C、右 : NFE20C)



・最小主ひずみ分布

図 1.4-46 に画像相関法により得られた N20C、NFE20C 表面の、乾燥期間 7 日、14 日、28 日、56 日の最小主ひずみ分布を示す。なお、図の試験体上部が飛灰と接触する上乾燥面である。乾燥が進むにつれ、モルタルの収縮が試験体内部へと進展していくのが観察される。最小主ひずみ分布からも、NFE20C に比べ、N20C の方が 28 日、56 日においてより試験体の内部まで乾燥が進み、モルタルが収縮していることが観察された。これは、普通コンクリートに比べ対策コンクリートの方が、コンクリートが緻密な構造をしており、水分の拡散が小さいため、乾燥が内部への浸透するのを抑制できている為と考えられる。

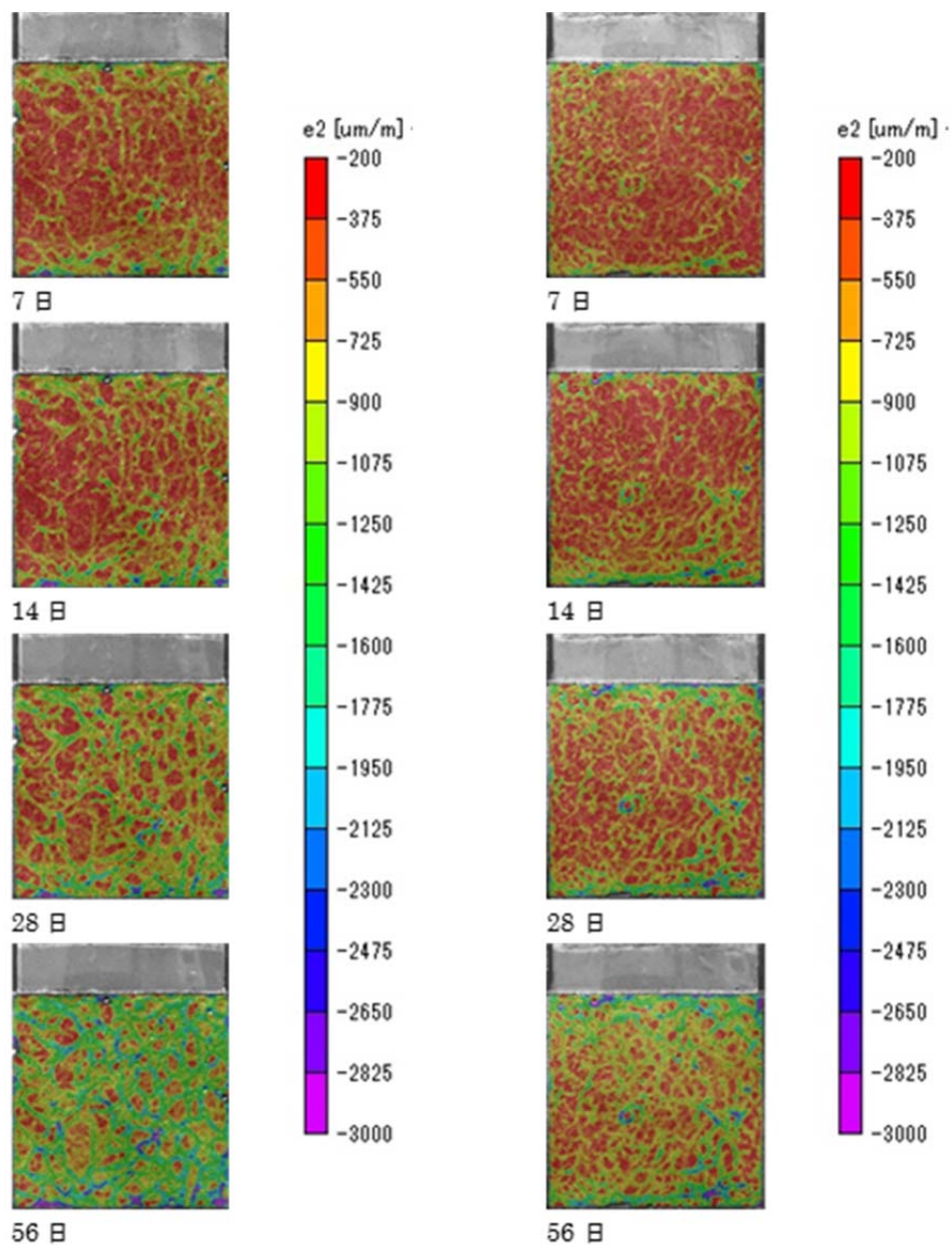


図 1.4-46 最小主ひずみ分布の経時変化 (左 : N20C、右 : NFE20C)

・ Y 方向ひずみ分布

図 1.4-48、図 1.4-49 に、乾燥 7 日、14 日、28 日、56 日について、画像相関法で得られた 2 次元のひずみ分布測定点から、等間隔で 110 点数値を抽出し、縦軸を飛灰の添加される上乾燥面からの距離、横軸を Y 方向ひずみとして各パラメータの経時変化を比較したグラフを 20℃水準、40℃水準に分けて示す。Y 方向ひずみは、内外拘束が働かないという点で乾燥収縮の影響をひずみで評価できると考えられる。なお、このひずみ分布は、乾燥面近辺では解析領域に誤差が生じるため、解析全 110 点のうち、上下 5 点ずつを取り除き、さらに試験体の縦方向に 11 本の分布を平均化する。そのうえで、平均のひずみ分布に 10mm 幅の区間を設け、区間ごとの平均値をとったものである。この平均値を使用することで、骨材とモルタルの収縮量の差による分布のばらつきの影響を小さくし、コンクリート全体としての傾向を捉えることを意図している。図 1.4-47 に Y 方向ひずみ分布を抽出する概念図を示す。また、乾燥面近辺では骨材量が少なく、骨材の影響が小さくなることから、平均区間幅を半分の 5mm とした。なお、ひずみ分布を示す際、取得した画像に現れる観測面の傾きを補正する処理を行った。

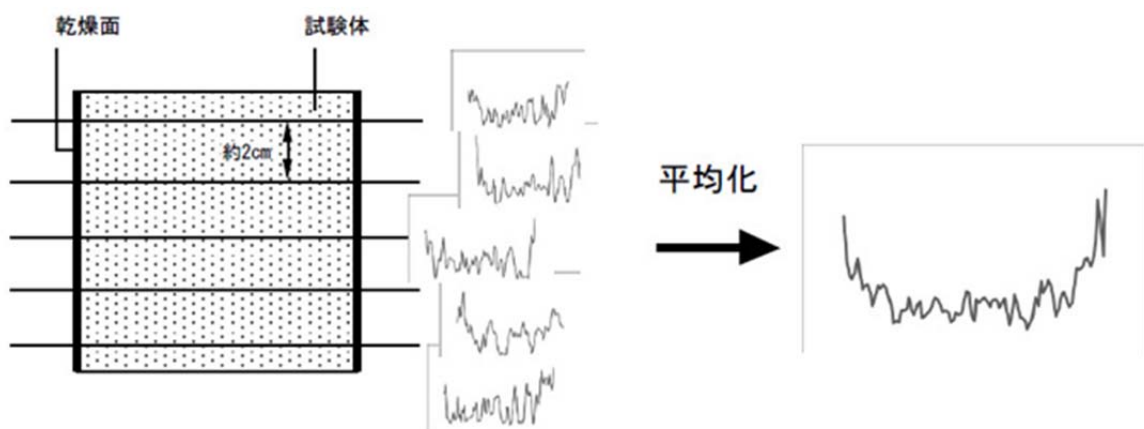
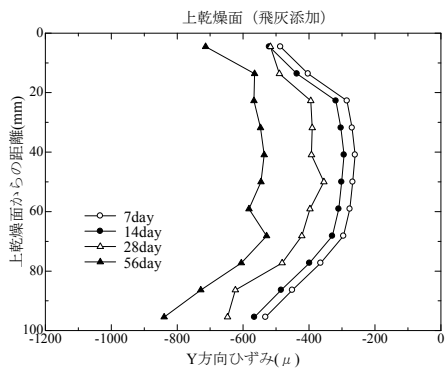
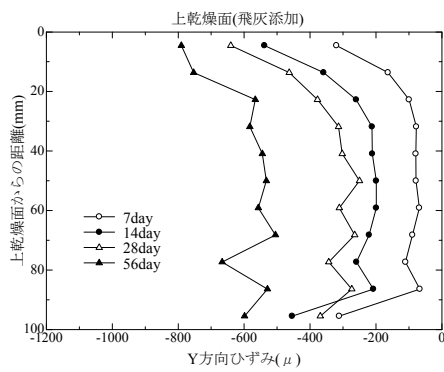


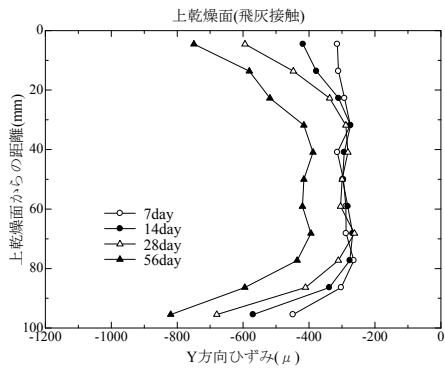
図 1.4-47 Y 方向ひずみ分布抽出の概念図



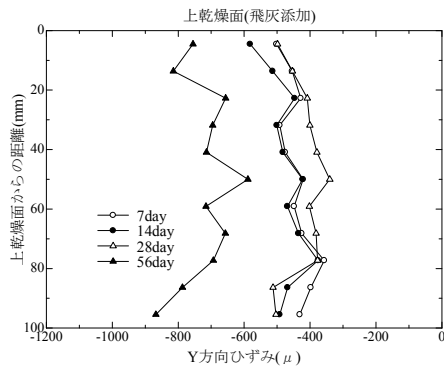
N20C



N20UC

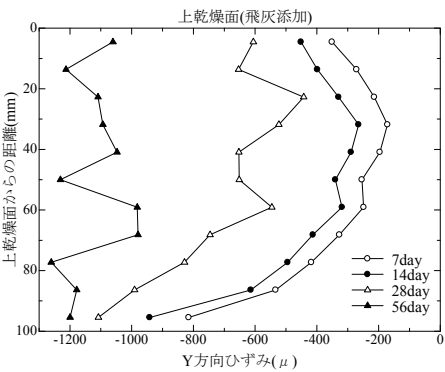


NFE20C

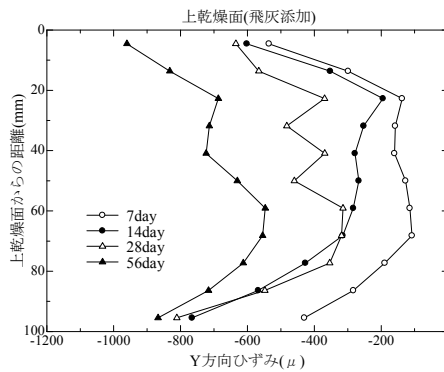


NFE20UC

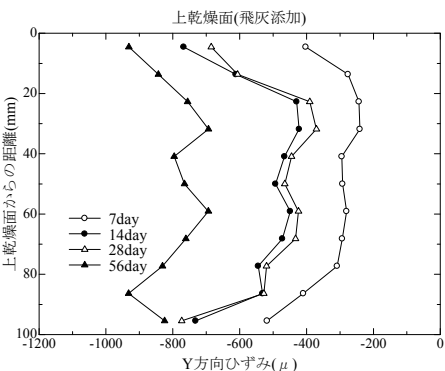
図 1.4-48 20℃水準における Y 方向ひずみの経時変化



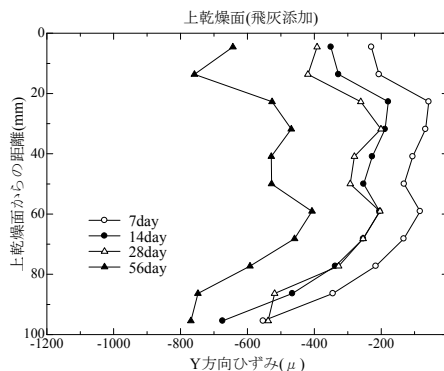
N40C



N40UC



NFE40C



NFE40UC

図 1.4-49 40℃水準における Y 方向ひずみの経時変化

図 1.4-48、図 1.4-49 から、おおむねすべての試験体で、Y方向ひずみ分布の概形は乾燥 7 日目とそれ以降では変わっていないことが分かる。ここから、各試験体で得られる Y 方向ひずみ分布の概形は乾燥 7 日目までに決定されると考えられる。飛灰条件による差異は、20℃水準では非接触水準の方が、接触水準より全体的に収縮しているが、40℃水準では接触水準の方が全体の収縮が進んでいる。また、乾燥 14 日と 28 日のひずみ分布の比べると、普通コンクリートでは、分布が 28 日では収縮側に移動しているのに対し、対策コンクリートは乾燥面付近の収縮は起きているものの試験体内部は、ほとんど変化していない。一方、乾燥 28 日と 56 日のひずみ分布を比較すると、普通コンクリート・対策コンクリートともに全体的な収縮挙動を示した。

### (イ) 湿潤状態での検討

#### ア) 質量変化

図 1.4-50 に各パラメータの質量増加量の経時変化を示す。前検討とは異なり、湿潤状態で行ったため、質量は経時的に増加した。乾燥条件と比較すると 20℃水準に比べ 40℃水準のパラメータが大きな質量増加を見せた。

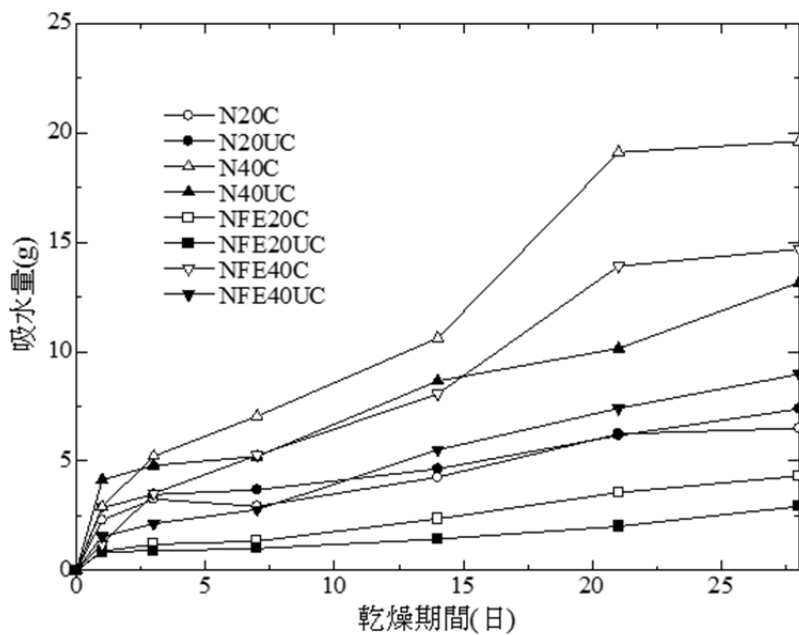


図 1.4-50 質量増加量の経時変化

#### イ) 画像相関法によるひずみ分布

##### ・最小主ひずみ分布

図 1.4-51 に画像相関法により得られた N20C、NFE20C 表面の、乾燥期間 1 日、7 日、14 日、28 日の最小主ひずみ分布をそれぞれ示す。乾燥が進むにつれ、飛灰の添加された上乾燥面ではモルタルの収縮が進展していくのが観察されるが、下乾燥面では湿潤状態のため、収縮挙動はあまり見られない。また、NFE20C に比べて N20C では、乾燥 7 日で上乾燥面からの試験体の内部まで収縮が進展しているのが観察される。一方、NFE20C では、上乾燥面付近では収縮が進んでいるが、内部への進展はあまり進んでいない。図 1.4-52 に乾燥 28 日の各パラメータの最小主ひず

み分布を示す。図 1.4-52 から、乾燥 28 日において、20℃水準のパラメータは飛灰が添加されている上乾燥面付近でのモルタルの収縮が目立っている。一方、40℃水準のパラメータは 20℃水準と比べ、試験体の観測面全体に収縮が起きている。普通コンクリートと対策コンクリートで比較すると、飛灰のある上乾燥面からの収縮の進展は、おおむねどの水準でも普通コンクリートの方が内部へと進展していることが分かる。前項で述べたように、普通コンクリートに比べてコンクリートが緻密である対策コンクリートは、水分の拡散が小さいため、試験体内部への乾燥の進行を抑制できている、と考えられる。

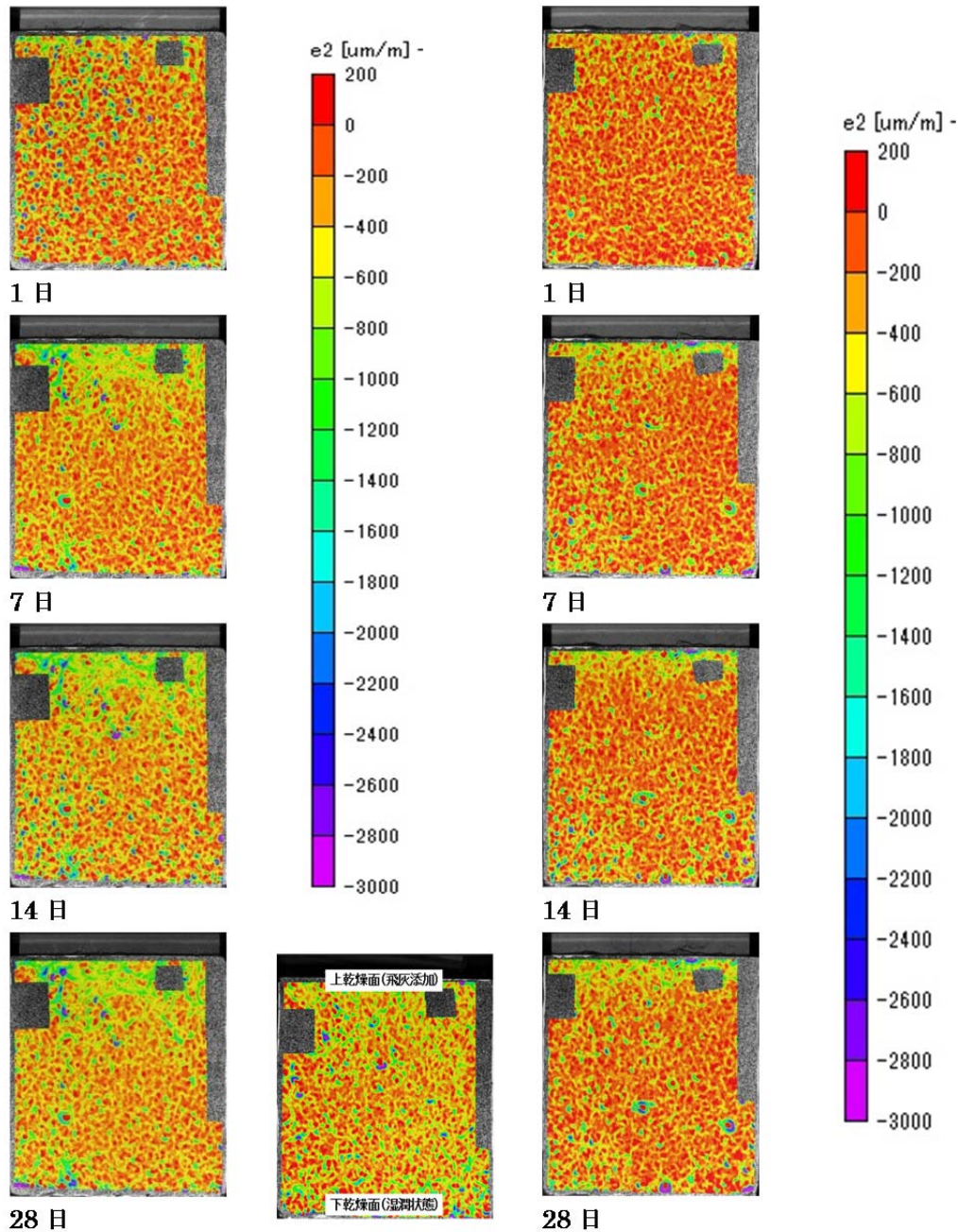


図 1.4-51 最小主ひずみ分布の経時変化 (左 : N20C、右 : NFE20C)

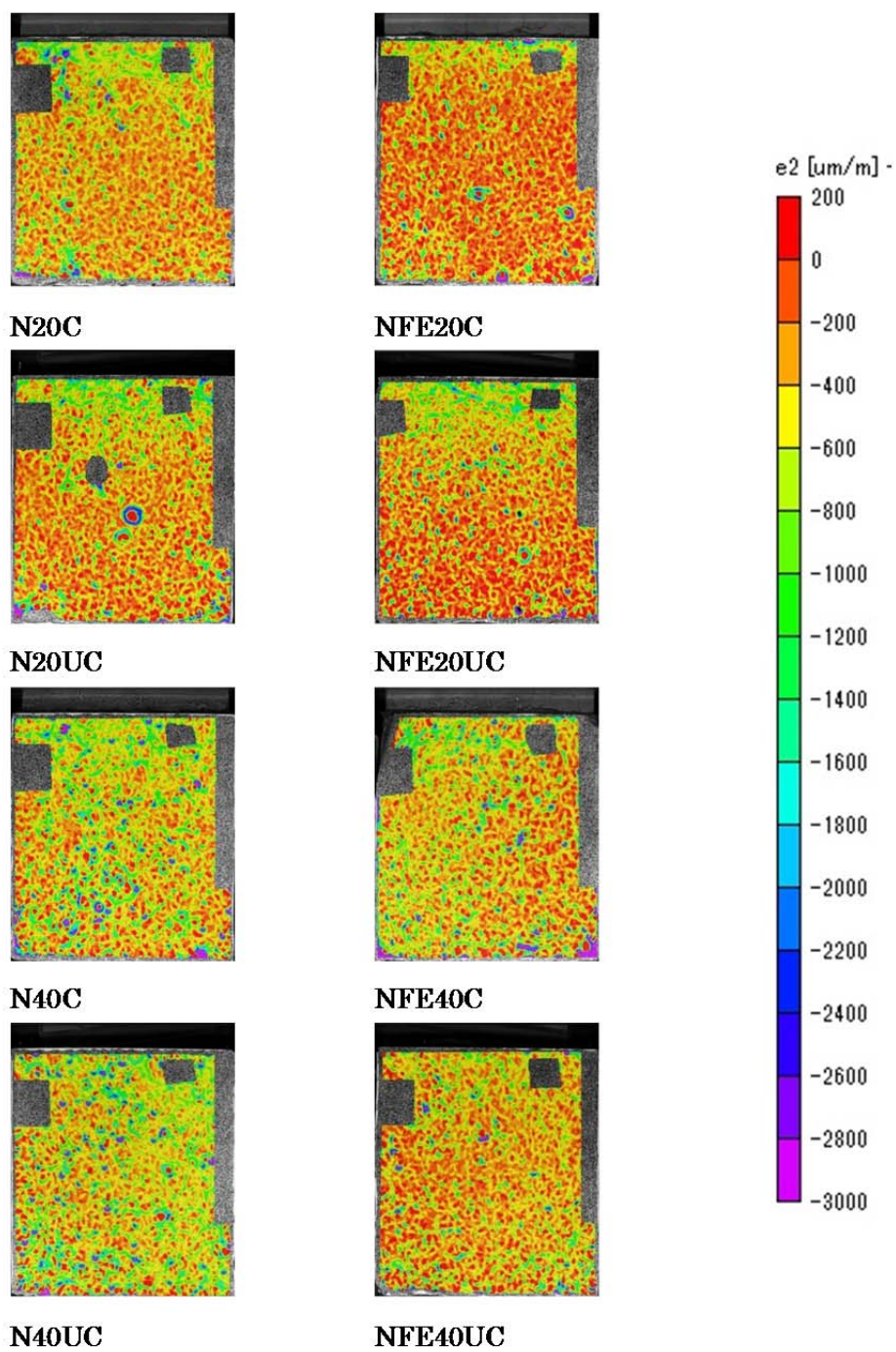


図 1.4-52 乾燥 28 日での各パラメータの最小主ひずみ分布

・最大主ひずみ分布

図 1.4-53 に画像相関法により得られた N20C、NFE20C 表面の、乾燥期間 1 日、7 日、14 日、28 日の最大主ひずみ分布をそれぞれ示す。下乾燥面側に赤く膨張を示す箇所が観察される。また、乾燥 28 日の段階では、ひび割れが発生しているかどうかは分からなかった。

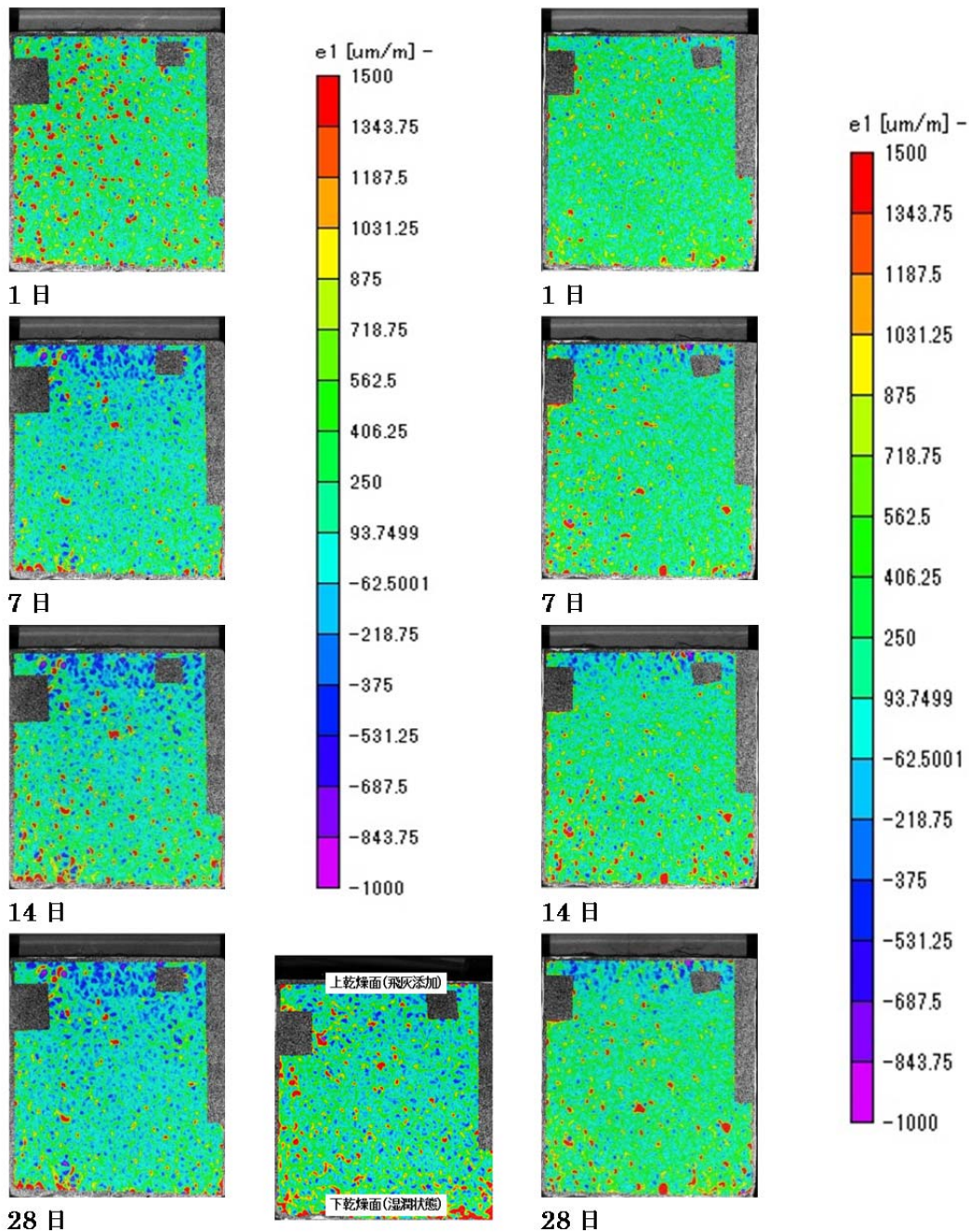
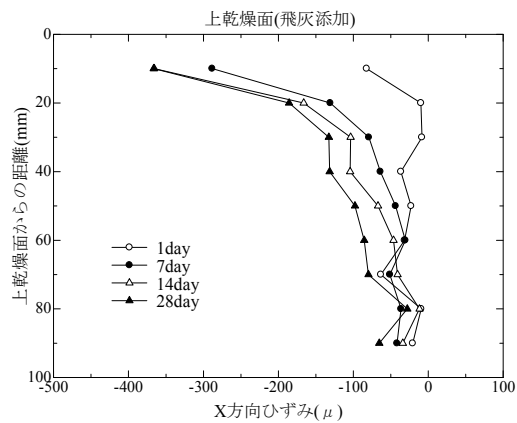
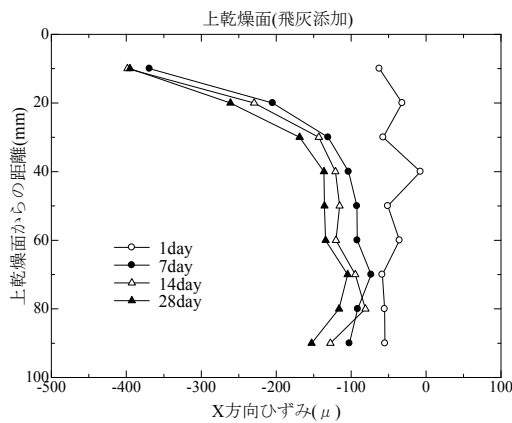


図 1.4-53 最大主ひずみ分布の経時変化（左：N20C、右：NFE20C）

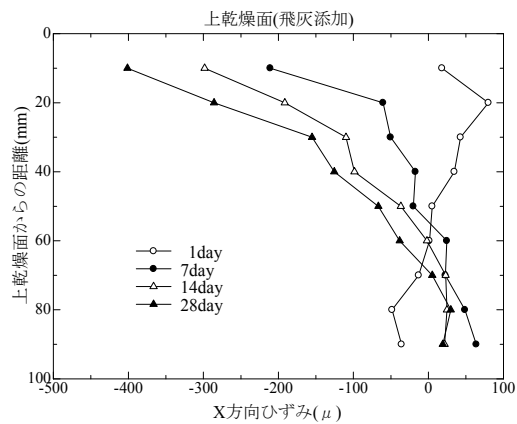
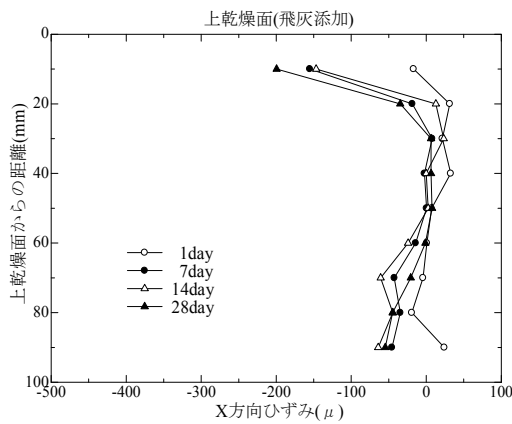
・ X 方向ひずみ分布

図 1.4-54、図 1.4-55 に、乾燥 1 日、7 日、14 日、28 日について、画像相関法で得られた 2 次元のひずみ分布測定点から、等間隔で 100 点数値を抽出し、縦軸を飛灰の添加される上乾燥面からの距離、横軸を X 方向ひずみとして各パラメータの経時変化を比較したグラフを 20℃水準、40℃水準に分けて示す。X 方向ひずみは、内外拘束が働かないという点で乾燥収縮の影響をひずみで評価できると考えられる。検討 (A) では Y 方向ひずみがこの自由拘束ひずみに該当したが、本検討では、数値を抽出する方向から、X 方向ひずみが自由拘束ひずみに該当する。なお、このひずみ分布は、乾燥面近辺では解析領域に誤差が生じるため、解析全 100 点のうち、上下 5 点ずつを取り除き、さらに試験体の縦方向に 11 本の分布を平均化する。そのうえで、平均のひずみ分布に 10mm 幅の区間を設け、区間ごとの平均値をとったものである。この平均値を使用することで、骨材とモルタルの収縮量の差による分布のばらつきの影響を小さくし、コンクリート全体としての傾向を捉えることを意図している。また、乾燥面近辺では骨材量が少なく、骨材の影響が小さくなることから、平均区間幅を半分の 5mm とした。前項の図 1.4-47 にひずみ分布を抽出する概念図を示している。



N20C

N20UC

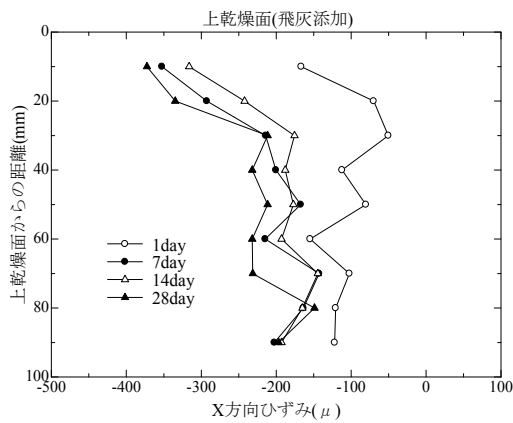


NFE20C

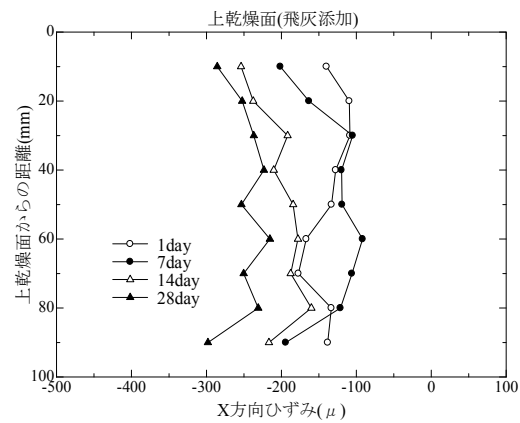
NFE20UC

図 1.4-54 20℃水準における X 方向ひずみの経時変化

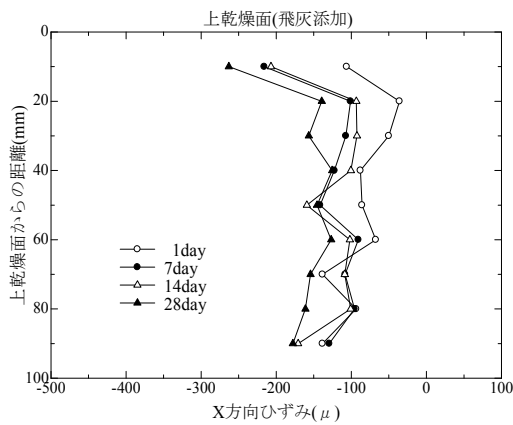




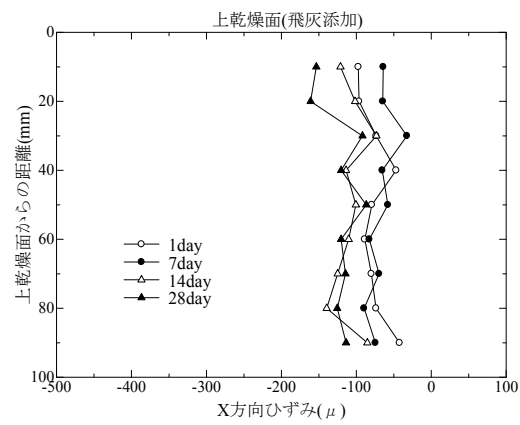
N40C



N40UC



NFE40C



NFE40UC

図 1.4-55 40°C水準における X 方向ひずみの経時変化

図 1.4-54 から、20°C水準の試験体は、飛灰側の乾燥面付近では収縮が進み、湿潤環境の乾燥面近辺は収縮が鈍いという形となった。また、乾燥 7 日目のひずみ分布の概形をおおよそ保った状態で収縮が進展していくことから、Y 方向ひずみ分布の項でも述べたように、画像関連法で得られる自由拘束ひずみ分布の概形は、試験体乾燥開始 7 日程度で決まると、本検討からも推測される。N20C と NFE20C を比較すると、N20C の X 方向ひずみ分布の曲線は、上乾燥面から試験体の内部へと緩やか勾配であるのに対し、NFE20C では上乾燥面近辺では収縮しているが内部ではその挙動は鈍く、曲線の勾配が急になっている。また、乾燥 28 日時点では、接触水準と非接触水準での差異はあまり見受けられなかった。

図 1.4-55 より、40°C水準では 20°C水準に比べて、乾燥期間を経ると試験体全体が収縮していくことが分かる。また、上乾燥面付近が早く収縮していく傾向は、20°C水準に続いて見られた。調合条件で比べると、乾燥期間 7 日の段階から試験体全体が対策コンクリートに比べて普通コンクリートがより収縮側に位置している。また、7 日以降の試験体全体の収縮も、普通コンクリートに比べると対策コンクリートは鈍いことが分かる。接触水準および非接触水準を比較すると、40°C条件では、普通コンクリート・対策コンクリートともに、接触水準の方が上側乾燥面近辺の収縮が乾燥 28 日で 100μ 程度大きくなっている。

(ウ) EPMA による元素分析

EPMA 測定結果を表 1.4-18、図 1.4-56 および図 1.4-57 に示す。Cl の浸透深さは表面からおおよそ 1mm と僅かであった。

表 1.4-18 試験体の元素マッピング (EPMA)

試料名	外観写真 ←Clの浸透方向	測定成分				
		Cl	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SO <sub>3</sub>	CaO	SiO <sub>2</sub>
普通コンクリート M40C	コンクリート					
	ペースト部					
対策コンクリート NFE40C	コンクリート					
	ペースト部					
成分濃度 スケール	-					

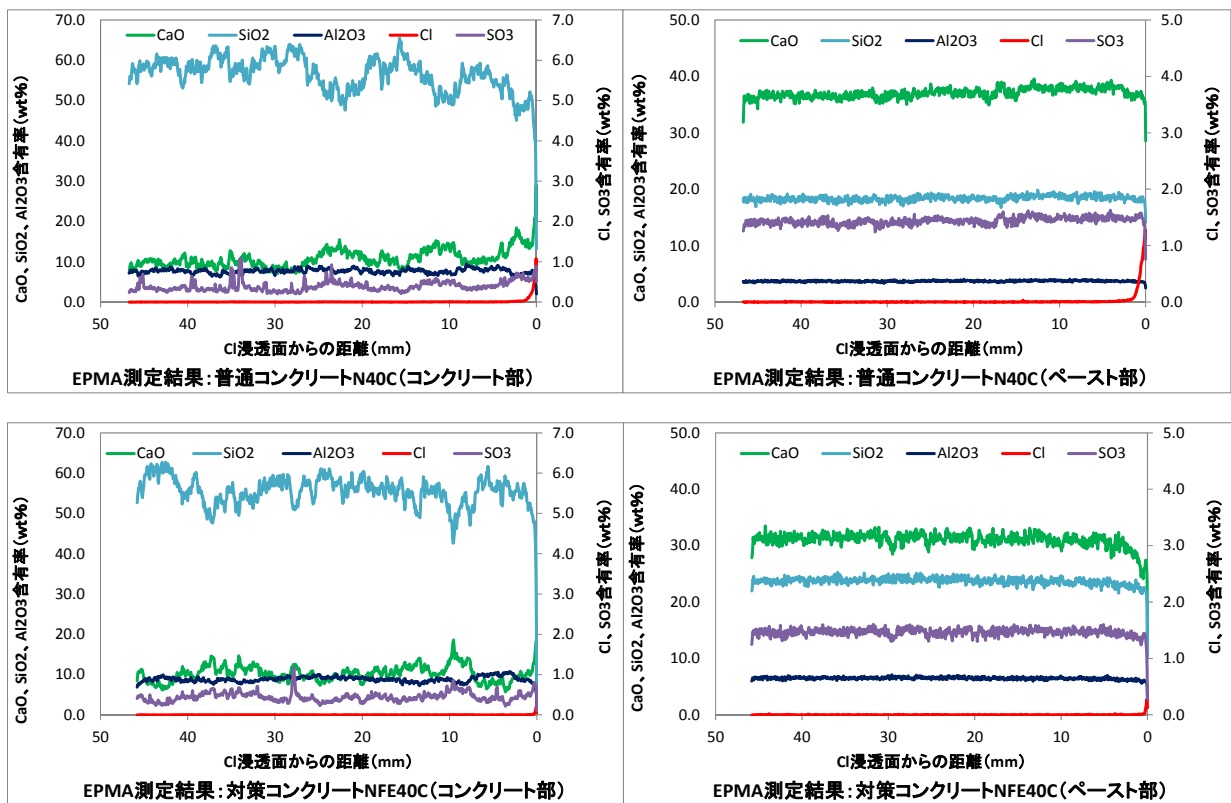


図 1.4-56 コンクリート試験体表面からの元素濃度分布  
(上段：普通コンクリート N40C、下段：対策コンクリート NFE40C)

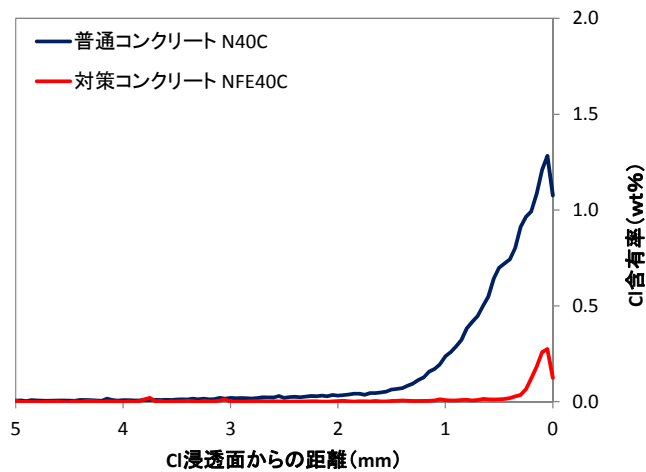


図 1.4-57 普通コンクリートおよび対策コンクリートの Cl 濃度分布

#### ④まとめ

本項では、最終処分場のコンクリートピット断面を模擬し、焼却飛灰の吸湿によるコンクリートの収縮挙動について画像相関法を用いて検討を行った。実験に際し、水セメント比および調合の異なるコンクリートを用い、焼却飛灰がコンクリートに対して接触・非接触の2水準を想定、また、乾燥条件についても温度水準 20℃・40℃および恒温槽内の相対湿度下での検討と湿潤状態

での検討を行った。その結果以下の知見が得られた。

- ・デジタル画像相関法によって得られる各試験体が示す自由拘束ひずみ分布の概形は、乾燥7日までに決定されると考えられる。
- ・普通コンクリートに比べて、対策コンクリートは水分拡散係数が小さいため、乾燥面付近ではモルタルの収縮が進むものの、内部への収縮の進展に対して抑制効果があることが確認された。また、40℃では試験体全体が収縮挙動を示したが、対策コンクリートは普通コンクリートに比べると鈍い挙動であり、この点でも抑制効果があると確認された。
- ・焼却飛灰の添加方法の比較では、乾燥温度 40℃において、接触水準の試験体の方が非接触水準に比べ、より収縮することが見られた。
- ・試験体の乾燥条件・調合条件の違いから、試験体の質量の経時変化に差が生じることが確認された。
- ・飛灰を直接コンクリートに接触させた試験体の CI 浸透量は僅かであったが対策コンクリートでは浸透は抑制された。CI 浸透量が少ないのは飛灰が吸湿することでコンクリートの含水率が低下し、CI が移動しなかったためと考えられる。

本検討で、画像相関法を用いた普通コンクリートと対策コンクリートの比較により、対策コンクリートが乾燥収縮の進展に対して抑制効果があることが分かった。対策コンクリートのように、フライアッシュを入れたコンクリートは、フライアッシュの水和により長期的な強度増進と緻密性の増大が期待される。本実験のように飛灰側の乾燥面付近では収縮が進み表層のひび割れは生ずるかもしれないが、内部まで生ずる貫通ひび割れが抑制されるため、飛灰の吸湿をうけるコンクリートピット内部など飽和塩が発生しうる状況では、部材中に用いる鉄筋を保護する性能から見た場合、フライアッシュを添加し、水セメント比を小さくしたコンクリートの方が望ましいと言える。

## 2) コンクリートの変形挙動解析

### (a) コンクリートの変形挙動の解析

#### ① 解析対象コンクリートの物性値

本解析では、仕様 a (ダブル配筋の S 社タイプ) と仕様 b (シングル配筋の T 社タイプ) を検討したが、これらに物性の変化はなく、配筋が異なる状況となっている。

解析では、普通ポルトランドセメントで、水セメント比 0.30 程度のものを対象としている。

表 1.4-19 解析対象コンクリート物性値

仕様	ヤング率 (N/mm <sup>2</sup> )	ポアソン 比	圧縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )	引張強度 (N/mm <sup>2</sup> )	最大骨材粒径 (mm)
(a)および (b)	32000	0.18	55.0	3.91*	20

JCI マスコン指針式による

## ②解析に用いた構成則の概要

ここで示す解析は 3 次元の水分移動 FEM 解析と、水分移動解析によって推察される含水率から乾燥収縮ひずみを予測し、それを等価接点力として力の釣り合いをとく、3 次元応力 FEM 解析を連成したものである。

### (ア) 水分移動解析

多孔体中の水分移動については、液水と水蒸気を分けて考え、ポテンシャルを多孔体中の水の化学ポテンシャルとするのが望ましいが、硬化がある程度進み、空隙構造が変化しなくなつてからの水分移動であれば、化学ポテンシャルによって定まる含水率は、ヒステリシスの問題を考慮しなければ、一意に定まるので、含水率や相対含水率をみかけの駆動力とする水分移動であっても、確度の高い解析が可能となる。

ここでは、この簡易の含水率を駆動力とした手法を採用した。式(1)を支配方程式とし、式(2)を境界条件とし用いることとした。

$$\frac{\partial w}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} D(w) \frac{\partial w}{\partial x} + \dot{W} \quad \text{式(1)}$$

$$J_w = A \cdot D(w) \frac{\left(\frac{w}{w_0}\right) - \left(\frac{w_{env}}{w_0}\right)}{d_{env}} \quad \text{式(2)}$$

ここで、 $w$ ：コンクリート中の体積含水率( $\text{g}/\text{m}^3$ )、 $\dot{W}$ ：水分の消費・生成量( $\text{g}/\text{m}^3/\text{s}$ )、 $D(w)$ ：コンクリートの含水率を駆動力とした拡散係数( $\text{m}^2/\text{s}$ )、 $J_w$ ：境界面からの水分逸散量( $\text{g}/\text{s}$ )、 $A$ ：境界面積( $\text{m}^2$ )、 $w/w_0$ ：相対含水率、 $w_{env}/w_0$ ：空気湿度から算出した外気含水率、 $d_{env}$ ：境界面と空気との遷移区間を仮想的にセメント硬化体の長さで換算した値( $\text{m}$ )である。相対含水率と水分移動係数は、図 1.4-58 に示される関係を用いた。

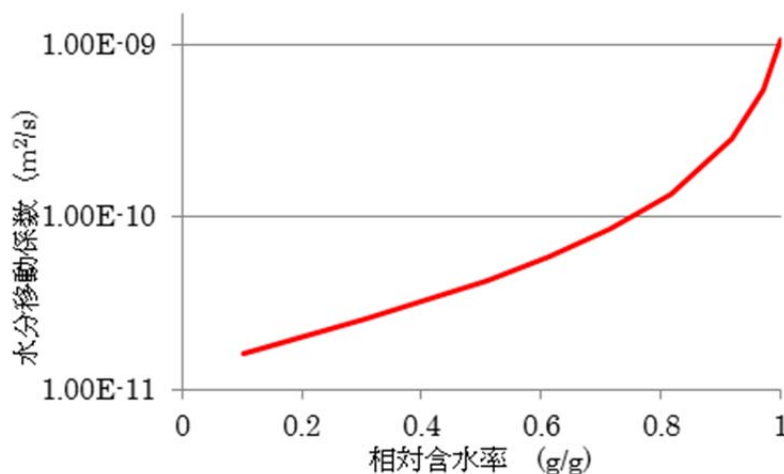


図 1.4-58 相対含水率と水分移動係数との関係

### (イ) 含水率とひずみの関係

水分移動の解析は、乾燥収縮ひずみを求めることが目的である。応力解析において収縮応力の駆動力となる自由ひずみは、含水率とひずみの関係を定めることによって求めた。各湿度の平衡含水率とひずみの関係は、長さ変化等温線と吸着等温線によって求められる。ここでは、図 1.4-59 に示される関係を用いた。

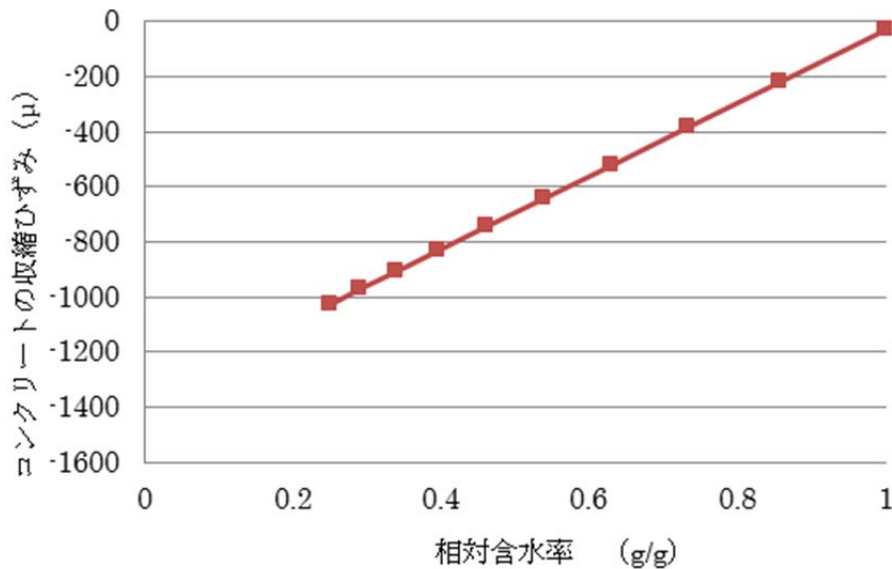


図 1.4-59 相対含水率とコンクリートの収縮ひずみの関係

### (ウ) 応力・ひび割れ解析

本検討では、コンクリートに生ずるひび割れを予測する上で、エネルギー保存則に基づく有限要素法を用いて評価した。解析にあたり、8 接点アイソパラメトリック要素によってコンクリートを評価するとともに、鉄筋をライン要素、および鉄筋とコンクリートの付着については、ボンド要素を採用した。本解析でひび割れを評価するにあたり、コンクリートの応力ひずみ関係を適切に評価することが重要である。以下、その手法について簡易に述べる。

本検討では引張応力下のコンクリートは、ひび割れ発生前は線形弾性体と仮定し、応力がコンクリートの引張破壊基準を満足するとき、最大主引張応力に垂直な方向にひび割れが発生するものとして考えた。また、一度発生したひび割れの方向は固定とする固定分布ひび割れ帯モデルを用いた。すなわち、局所座標系に対して次式に表されるひび割れ後の応力-ひずみ関係の方向を固定し採用する。

$$\{\sigma_{cr}\} = [D_{cr}]\{\varepsilon_{cr}\} \quad \text{式(3)}$$

ここで

$$[D_{cr}] = \begin{bmatrix} E_{cr} & 0 & 0 \\ 0 & Ec & 0 \\ 0 & 0 & \beta G_0 \end{bmatrix} \quad \text{式(4)}$$

マトリクス $[D_{cr}]$ は局所座標系（ひび割れ方向）でのマトリクスであるため、ひび割れ発生時の主応力方向から座標変換マトリクスを用いて全体座標系に変換する必要がある。

$$[D_{cr}]_{xy} = [T_r]^{-1} [D_{cr}] [T_r] \quad \text{式(5)}$$

$$[T_r] = \begin{bmatrix} \cos^2 \theta & \sin^2 \theta & -2\cos\theta\sin\theta \\ \sin^2 \theta & \cos^2 \theta & 2\cos\theta\sin\theta \\ \cos^2 \theta & -\cos\theta\sin\theta & \cos^2 \theta - \sin^2 \theta \end{bmatrix} \quad \text{式(6)}$$

コンクリートに生じる最初のひび割れは通例、主応力 $(\sigma_1, \sigma_2)$ によって判定されるが、本検討では、最大主応力に依存したひび割れ判定を実施した。ここで、引張強度を $f_t$ とすると、次式で与えられる。

$$\sigma_1 \geq f_t \quad \text{式(7)}$$

本研究では、ひび割れ後の引張軟化の構成則として、1/4モデルを採用した。これは、図 1.4-60 に示すように、ひび割れと直行方向の応力-ひずみ関係を、ひび割れ要素の構成則として用いるものである。ひび割れ発生後のひび割れ直行方向の剛性 $E_{cr}$ は、図 35 に示す 1/4 モデル上の、現在のひずみ-応力点と原点を結んだ傾きである。すなわち、ひび割れ発生後に除荷が起きる場合には、塑性域は生じないものとし、原点指向型とした。また 2 軸引張応力下にある要素において、最大主引張応力直行方向にひび割れ（以下、1 次ひび割れ）が発生後、ひび割れ方向で引張応力が生じるケースについては、ひび割れ方向の剛性は健全なコンクリートの剛性の 1/3 とし、その後引張破壊基準に達した（以下、2 次ひび割れ）後は、1 次ひび割れと同様に、1/4 モデルにしたがって引張剛性の軟化を考慮することとした。

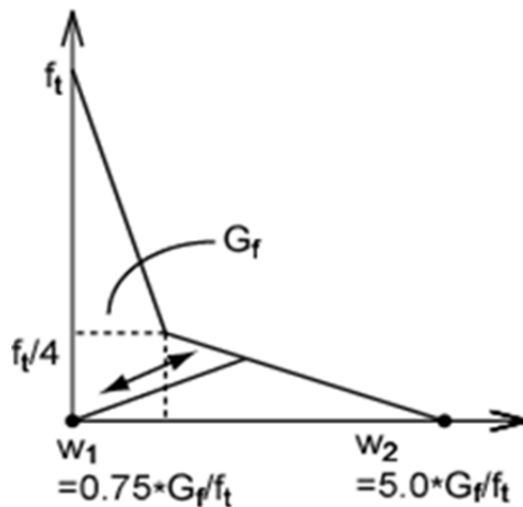


図 1.4-60 引張軟化曲線(1/4モデル)

せん断剛性の低下はせん断剛性低減係数  $\beta$  を用いて、以下の式で考慮した。

$$G_{cr} = \beta \cdot G_0 \quad \text{式(8)}$$

$\beta$  はせん断剛性の低下を骨材の噛合いの影響を考慮して決定する。 $\beta$  については数多くの実験結果から算定式が提案されているが、本研究ではひび割れひずみによって決定する以下の式を採用した<sup>[6]</sup>

$$\beta = G_{cr} / G_0 = \frac{1}{1 + 4447\varepsilon_{cr}} \quad \text{式(9)}$$

鉄筋は降伏強度に達する前では線形弾性体とし、降伏強度後の変形では応力一定を保つこととした。本来、ひずみ硬化を考慮する必要があるが、本解析では解析対象とする試験体では鉄筋が降伏するケースを想定していないため、降伏後の鉄筋の応力—ひずみ関係の挙動は解析結果に影響を及ぼさないと考え、簡易なモデルとした（図 1.4-61）。

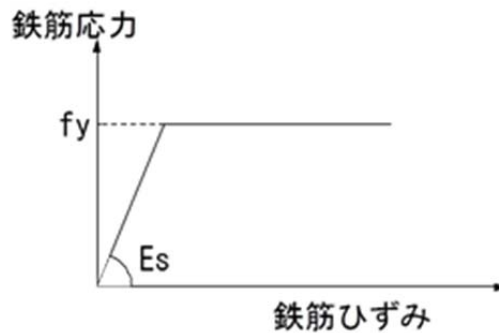


図 1.4-61 鉄筋の応力ひずみ関係

次に付着挙動であるが、本検討では鉄筋とコンクリート界面の付着は完全付着として仮定した。最後に、収縮ひずみ、温度ひずみ、クリープひずみの取り扱いについて述べる。瞬間弾性ひずみとクリープひずみの和は使用状態の応力の範囲において、作用応力に比例すると考えることができる。さらに応力に起因するひずみと体積変化に起因するひずみも重ね合わせることが可能であると考える。従って時間とともにコンクリートの作用応力と物性値が変化するとき、1軸下の作用応力とコンクリートの収縮によって生じる全ひずみは次の式で与えられる。なお、クリープ解析の概念図を図 1.4-62<sup>[7]</sup>に示す。

$$\varepsilon_x(t_{i+1/2}) = \sum_{j=1}^i [(\Delta\sigma_c)_{xj} J(t_{i+1/2}, t_j)] + \varepsilon_{\Delta T, as, ds}(t_{i+1/2}, t_1) \quad \text{式(10)}$$

ここに、



$\varepsilon_x(t_{i+1/2})$  : 区間 i の終点時の全ひずみ

$(\Delta\sigma_c)_{xj}$  : 区間 j で生じる x 軸方向の増分応力

$J(t_{i+1/2}, t_j) = \frac{1}{E_c(t_j)} + \frac{\phi(t_{i+1/2}, t_j)}{E_{c,28}}$  : クリープ関数

$\phi(t_{i+1/2}, t_j)$  : 載荷時材齢  $t_j$ 、着目材齢  $t_{i+1/2}$  時のクリープ係数

$E_c(t_j)$  : 有効材齢  $t_j$  時のヤング係数

$E_{c,28}$  : 標準養生材齢 28 日のヤング係数

$\varepsilon_{\Delta T, as, ds}(t_{i+1/2}, t_1)$  :  $t_1$  から  $t_{i+1/2}$  までの増分温度、収縮ひずみ

式(11)を用いて区間 i-1/2 と区間 i+1/2 の終点におけるひずみ差を求めることにより、次式に示す区間 i の増分ひずみが得られる。

$$\begin{aligned}
 (\Delta\varepsilon_c)_{xi} &= \varepsilon(t_{i+1/2})_x - \varepsilon(t_{(i-1)+1/2})_x \\
 &= \sum_{j=1}^i \left[ (\Delta\sigma_c)_{xj} J(t_{i+1/2}, t_j) \right] + \varepsilon_{\Delta T, as, ds}(t_{i+1/2}, t_1) \\
 &\quad - \left\{ \sum_{j=1}^{i-1} \left[ (\Delta\sigma_c)_{xj} J(t_{(i-1)+1/2}, t_j) \right] + \varepsilon_{\Delta T, as, ds}(t_{(i-1)+1/2}, t_1) \right\} \\
 &= (\Delta\sigma_c)_{xi} J(t_{i+1/2}, t_i) \\
 &\quad + \sum_{j=1}^{i-1} \left[ (\Delta\sigma_c)_{xj} \frac{\phi(t_{i+1/2}, t_j) - \phi(t_{(i-1)+1/2}, t_j)}{E_{c,28}} \right] + (\Delta\varepsilon_{\Delta T, as, ds})_{xi}
 \end{aligned} \tag{11}$$

ここに、

$(\Delta\varepsilon_c)_{xi}$  : 区間 i で生じる増分全ひずみ

$(\Delta\sigma_c)_{xi}$  : 区間 i で生じるコンクリートの増分応力

$(\Delta\varepsilon_{\Delta T, as, ds})_{xi}$  : 区間 i で生じる増分収縮ひずみと温度ひずみの和

$$(\Delta\sigma_c)_{xi} = \frac{E_c(t_i)}{1 + \frac{E_c}{E_{c,28}} \phi(t_{i+1/2}, t_i)} \left[ (\Delta\varepsilon_c)_{xi} - \sum_{j=1}^{i-1} \left[ \frac{(\Delta\sigma_c)_{xj}}{E_{c,28}} [\phi(t_{i+1/2}, t_j) - \phi(t_{i-1/2}, t_j)] \right] - (\Delta\varepsilon_{T,as,ds})_{xi} \right] \quad \text{式(12)}$$

よって区間 i での全応力は次式によって求められる。

$$\sigma_{cx}(t_i) = \sigma_{cx}(t_{i-1}) + (\Delta\sigma_c)_{xi} \quad \text{式(13)}$$

以上を  $[\sigma] = E[\varepsilon]$  を用いて整理すると、

$$\{\Delta\sigma_c\}_i = [D_c]_i \left[ \{\Delta\varepsilon_c\}_i - \sum_{j=1}^{i-1} \left[ \frac{\{\Delta\sigma_c\}_{xj}}{[D_{c,28}]} [\phi(t_{i+1/2}, t_j) - \phi(t_{i-1/2}, t_j)] \right] - \{\Delta\varepsilon_{T,as,ds}\}_i \right] \quad \text{式(14)}$$

式(14)の応力ひずみ関係を用いて荷重を計算すると、

$$\{P\} = \int_V [B]^T [D_c]_i \left\{ \{\Delta\varepsilon_c\}_i - \sum_{j=1}^{i-1} \left[ \frac{\{\Delta\sigma_c\}_{xj}}{[D_{c,28}]} [\phi(t_{i+1/2}, t_j) - \phi(t_{i-1/2}, t_j)] \right] - \{\Delta\varepsilon_{T,as,ds}\} \right\} dV \quad \text{式(15)}$$

区間 i-1 までの応力ひずみ状態が既知であり、区間 i での増分全ひずみが分かれば式(15)を展開して、増分収縮ひずみ、増分温度ひずみ、過去の応力履歴により生じる増分クリープひずみを等価節点力として与える。等価節点力とはひずみを等価な節点力に換算したものである。以下にその式を示す。

$$\begin{aligned} \{P\} + \int_V [B]^T [D_c]_i \sum_{j=1}^{i-1} \left[ \frac{\{\Delta\sigma_c\}_{xj}}{[D_{c,28}]} [\phi(t_{i+1/2}, t_j) - \phi(t_{i-1/2}, t_j)] \right] dV + \int_V [B]^T [D_c]_i (\Delta\varepsilon_{T,as,ds})_i dV \\ = \int_V [B]^T [D_c]_i (\Delta\varepsilon_c)_i dV \end{aligned} \quad \text{式(16)}$$

ここに、

$$\int_V [B]^T [D_c]_i \sum_{j=1}^{i-1} \left[ \frac{\{\Delta\sigma_c\}_{xj}}{[D_{c,28}]} [\phi(t_{i+1/2}, t_j) - \phi(t_{i-1/2}, t_j)] \right] dV : \text{過去の応力履歴により生じる増分クリープひずみによる等価節点力}$$

増分収縮ひずみおよび温度ひずみによる等価節点力

$$\int_V [B]^T [D_c]_i (\Delta\varepsilon_{T,as,ds})_i dV : \text{増分収縮ひずみおよび温度ひずみによる等価節点力}$$

以上のように、クリープひずみ、自由ひずみを等価節点力として評価し、時間依存性解析を実施することとした。

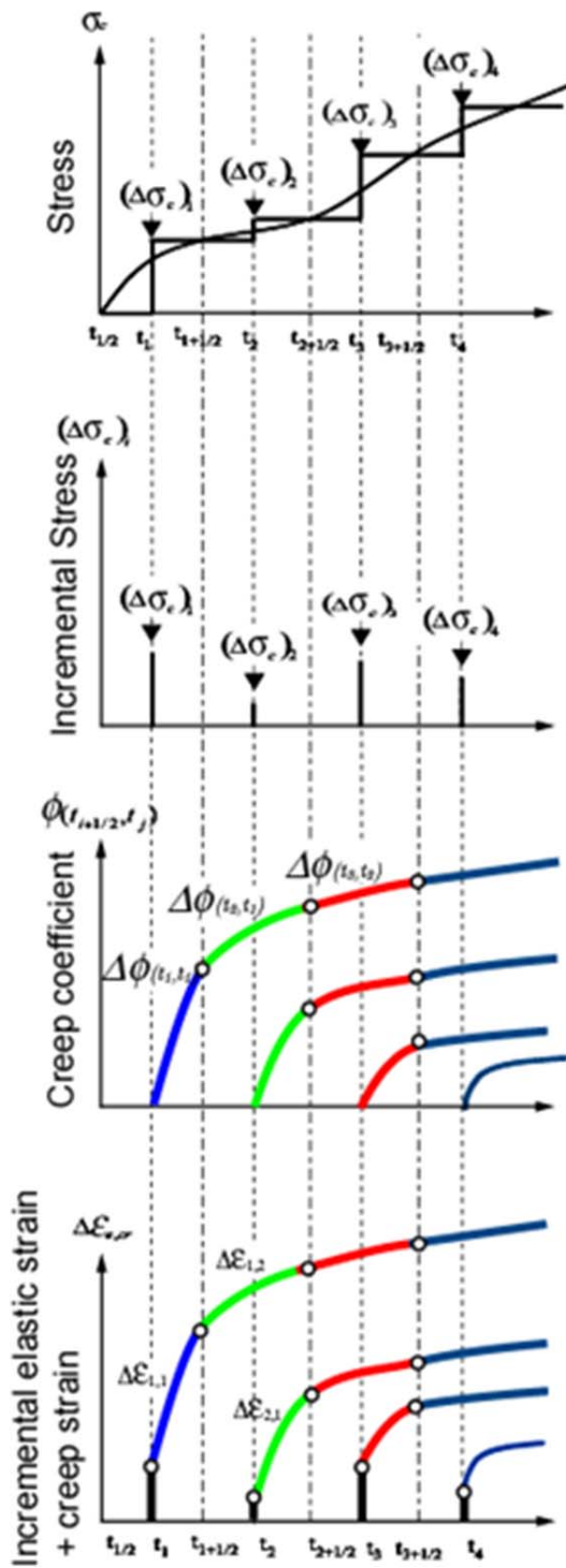
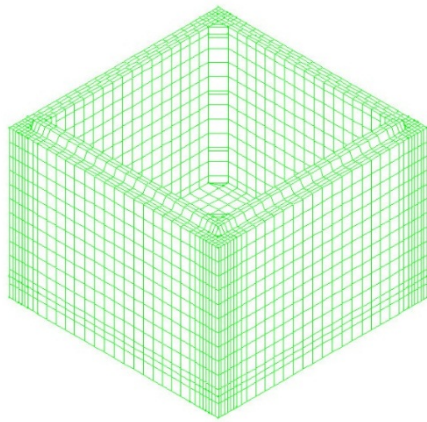


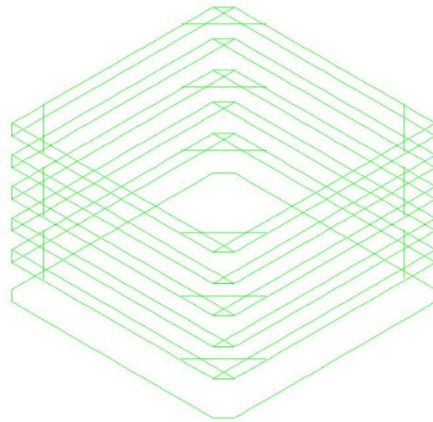
図 1.4-62 クリープ解析の概念図 [7]

⑦ 解析に用いたメッシュ

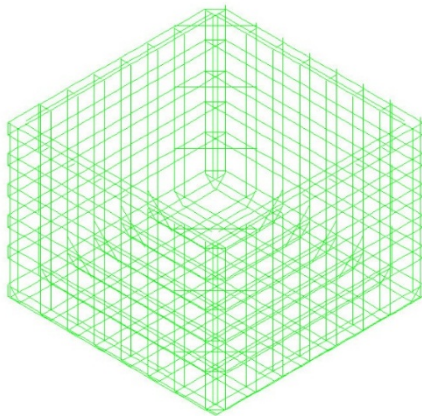
解析に用いたメッシュを、仕様 a と仕様 b について、それぞれ図 1.4-63 と図 1.4-64 に示す。



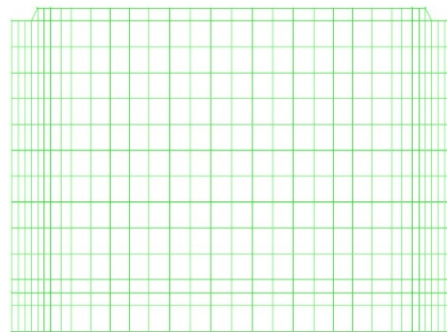
1) 立体図



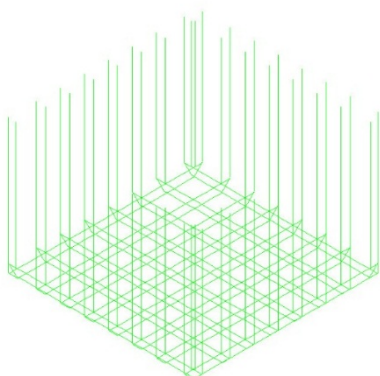
2) 横筋配筋図



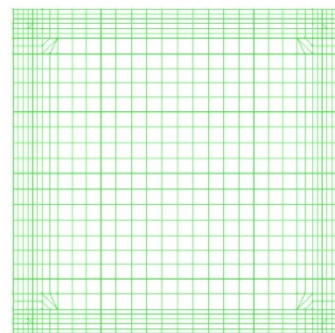
3) 全体配筋図(ダブル配筋)



4) 側面要素分割

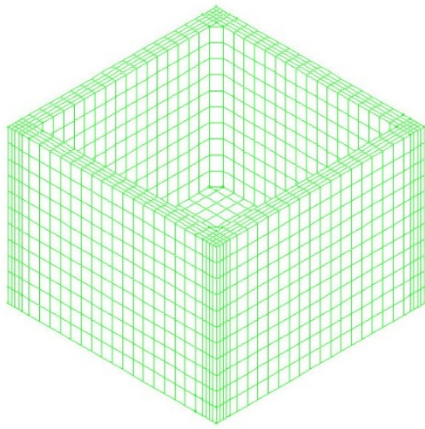


5) 底版&縦筋図

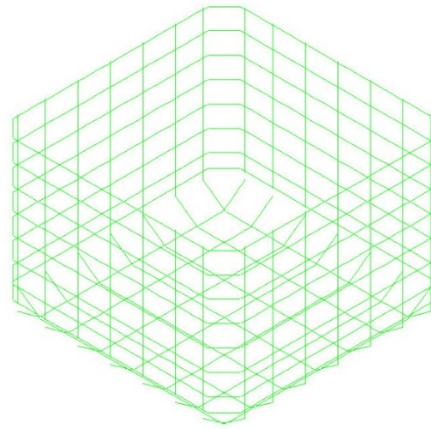


6) 底版要素分割

図 1.4-63 解析に用いた仕様 a のメッシュ図



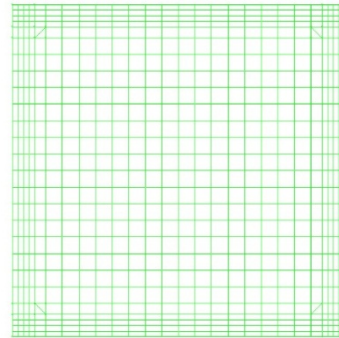
1) 立体図



2) 配筋図 (シングル配筋)



3) 側面要素分割



4) 底版要素分割

図 1.4-64 解析に用いた仕様 b のメッシュ図

## 2) 仕様 b の解析結果

### ①ボックスの含水率分布

1.5×1.5×1.1m の高濃度汚染物質保管ボックスを解析対象物（仕様 b）とし、コンクリートは十分に硬化したものと仮定して解析を行った。壁と底版の厚さは 100mm である。鉄筋の配筋はシングル配筋とする。周囲の相対湿度は、外部は 60%、内部は 30%の値を採用した。

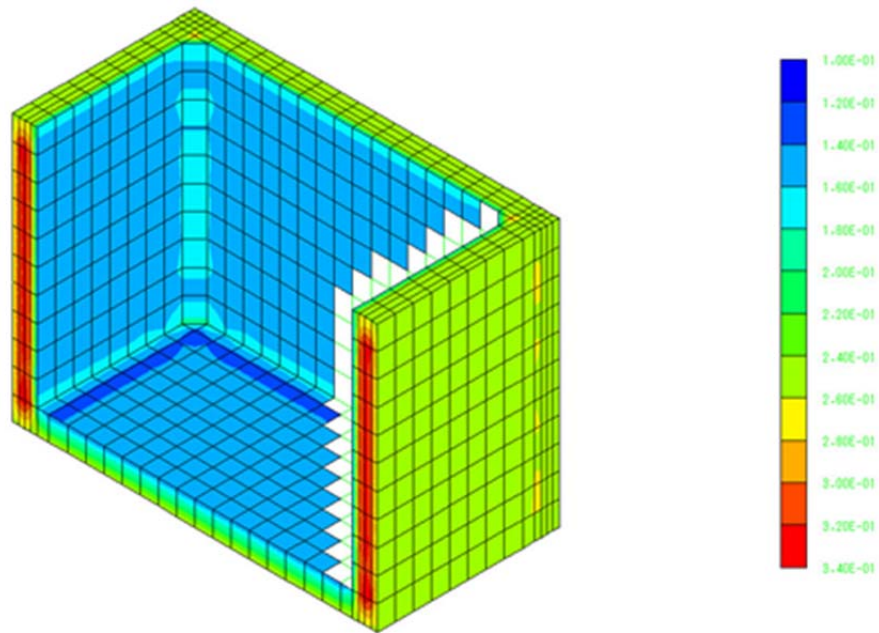


図 1.4-65 材齢 28 日の含水率分布

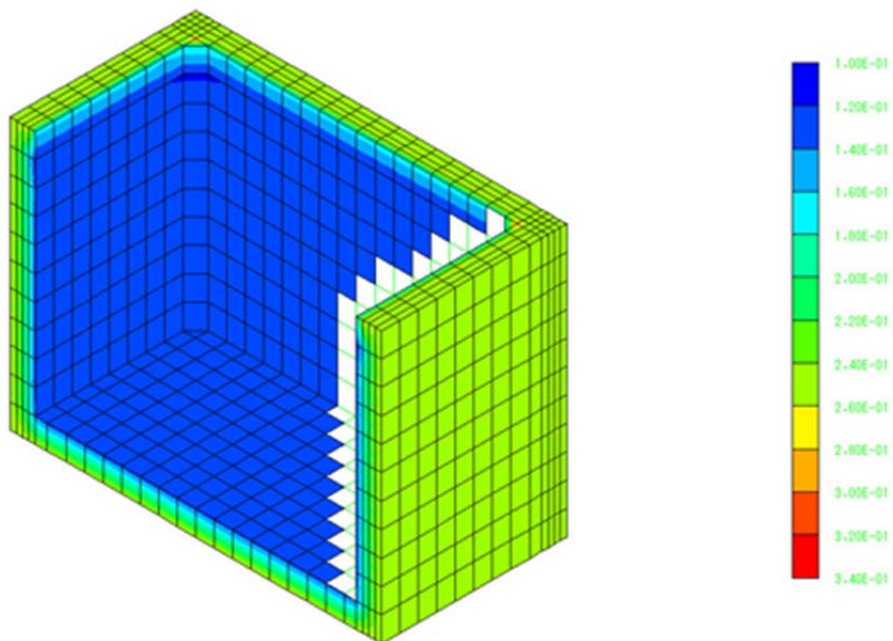


図 1.4-66 材齢 1 年の含水率分布

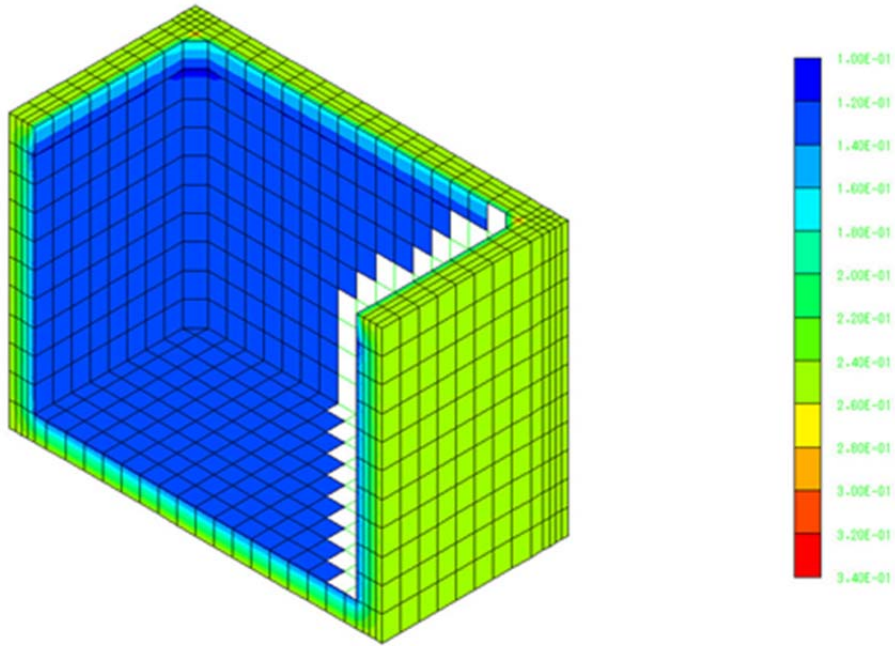


図 1.4-67 材齢 10 年の含水率分布

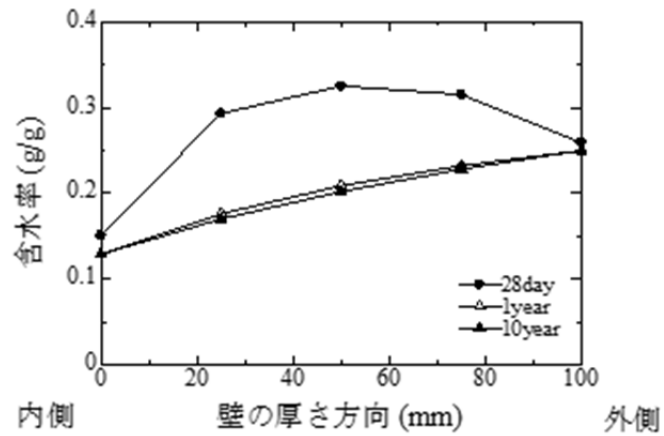


図 1.4-68 ボックスの壁の厚さ方向の含水率分布

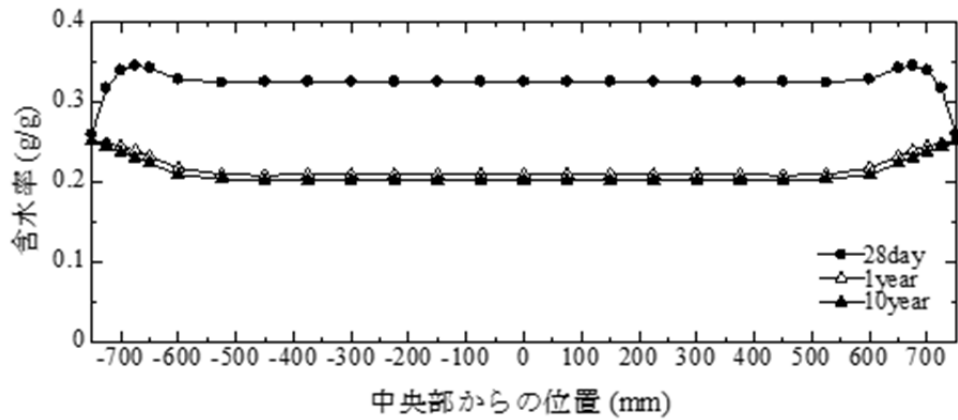


図 1.4-69 ボックスの壁の長手方向の含水率分布

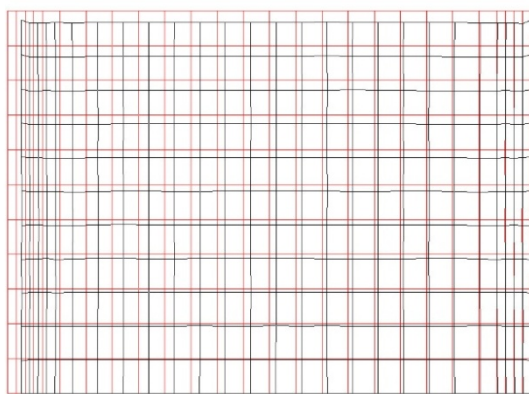
図 1.4-65、図 1.4-66、図 1.4-67 は材齢 28 日、1 年、10 年の含水率の分布を 3 次元で表した図である。ただし、これらはセメントペーストあたりの含水率として検討している。

図 1.4-68、図 1.4-69 は下からの高さの 60mm の位置での含水率をまとめた図である。図 1.4-68 では、

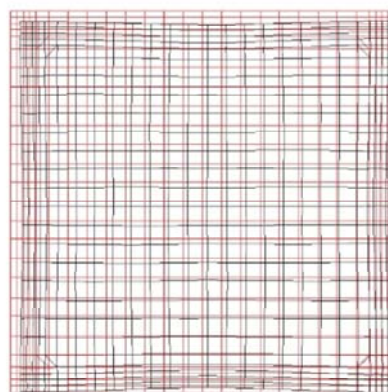
図 厚さ方向の含水率を材齢 28 日、1 年、10 年の値を取り、どのように変化をするかを示す。図 1.4-69 では、壁部分の中央の含水率の変化を中央部からの位置と含水率の関係で示す。

## ②主応力、クラック相当ひずみの分布

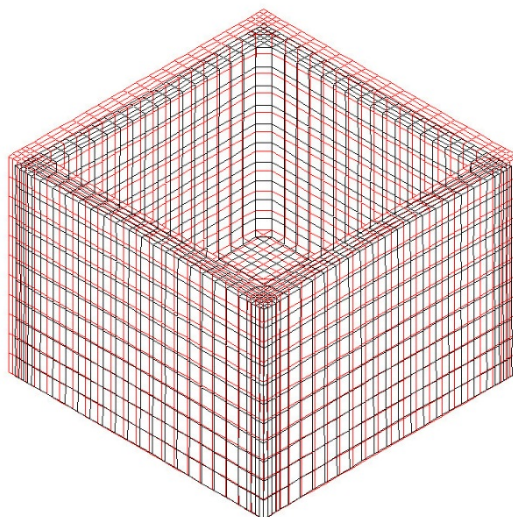
図 1.4-70 に解析の結果、得られた変形図を示す。変形図は 50 倍として示している。



変形図-真横視点(倍率 50 倍)



変形図-真上視点(倍率 50 倍)



変形図-立体図(倍率 50 倍)

図 1.4-70 仕様 b における変形図



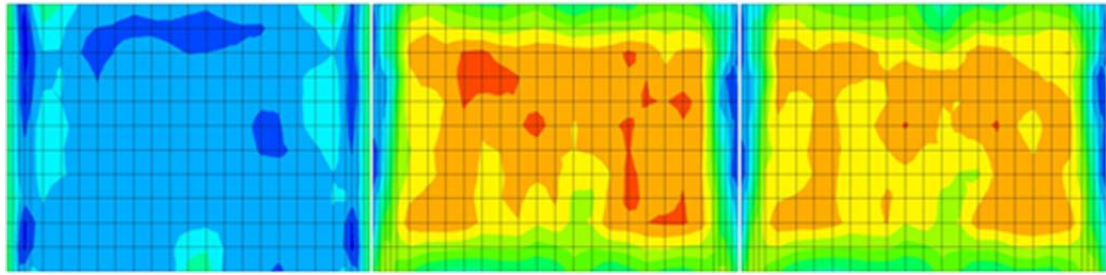


図 1.4-71 壁の一面の時間経過に伴う最大主応力の変化 (28 日、1 年、10 年)

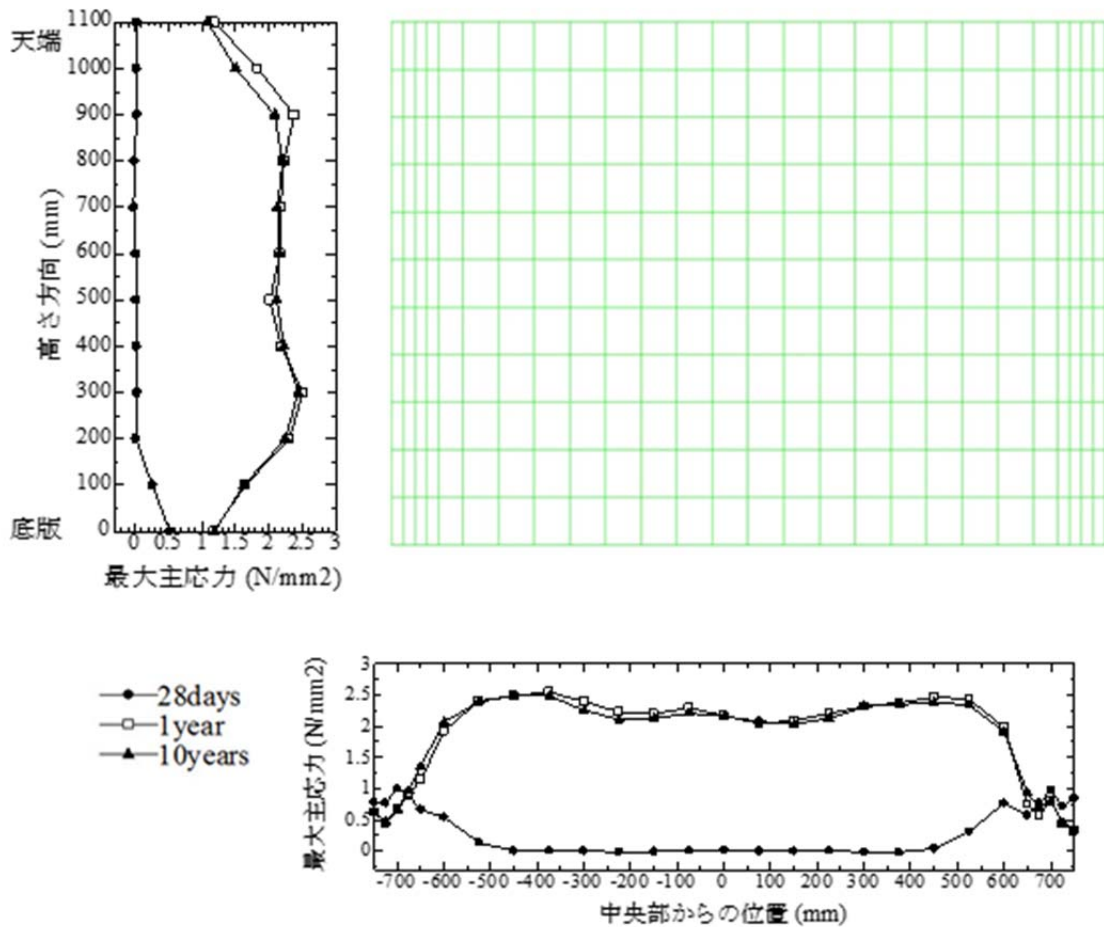


図 1.4-72 時間経過に伴う最大主応力の変化

図 1.4-71 は壁の一面の 28 日、1 年、10 年のときの最大主応力の分布を表した図である。左から順番に材齢 28 日、1 年、10 年の最大主応力の分布である。青の方に近いと最大主応力が  $0\text{N/mm}^2$  に近い値を示し、赤の方に近ければ近いほど大きい引張応力を受けることを示す。

図 1.4-72 は壁の一面の中央部の高さ方向の最大主応力の変化と高さ 60mm の部分の水平方向の最大主応力の変化を示した図である。材齢 28 日のときは、応力は  $0\text{N/mm}^2$  でほとんど発生しない。他の部材と接する部分では  $1\text{N/mm}^2$  の以下の引張応力が発生する。材齢 1 年のときは、壁面の全体的に  $2\sim 2.5\text{N/mm}^2$  の範囲の引張応力が発生する。その以降は最大主応力の分布の変化が少ない。

図 1.4-73 は材齢 10 年のボックス壁 4 面の最大主応力の分布を示す。乾燥面の中央部より他の

壁との接触部と近い部分で比較的に大きい引張応力を受ける傾向は 4 面で確認された。

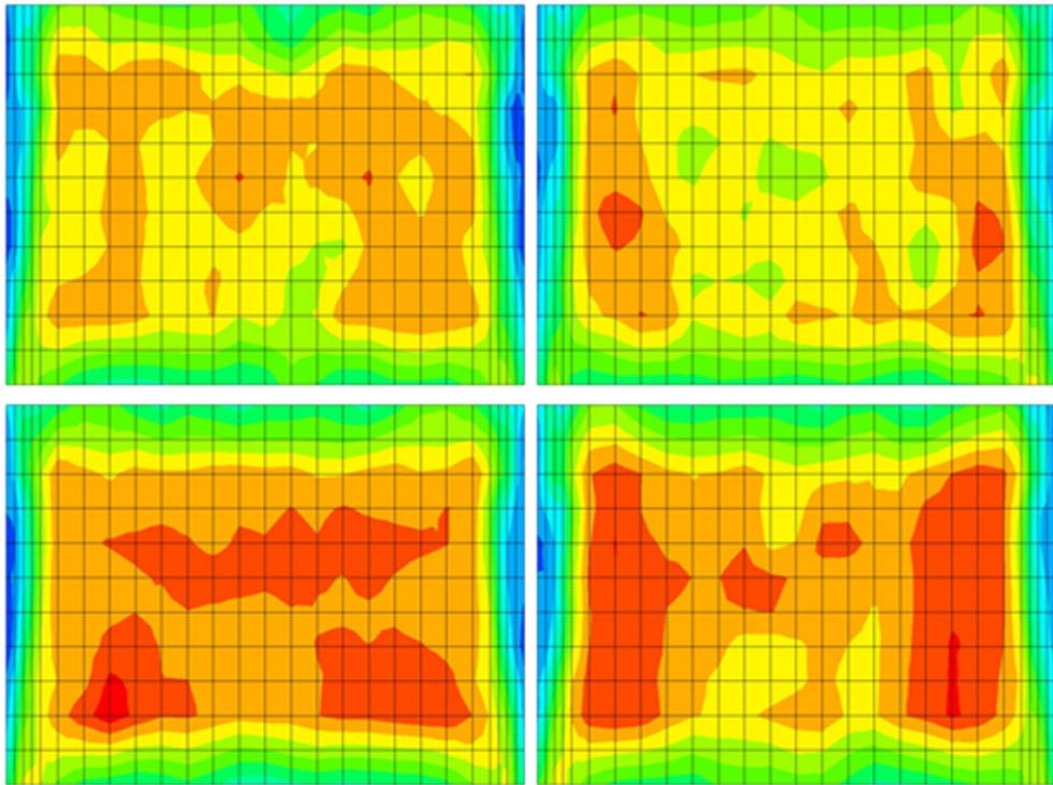


図 1.4-73 ボックスの各壁の材齢 10 年の最大主応力分布

### ③クラック相当ひずみとひび割れ幅

図 1.4-74 に、壁の一面の 28 日、1 年、10 年のときの時間経過に伴うクラック相当ひずみの変化を、また、表 1.4-20 に各壁の最大ひび割れ幅を示す。また、図 1.4-75、図 1.4-76 では壁の天端と高さ 30mm の部分でのクラック相当ひずみが時間経過による変化を示した。天端の場合は、初期にクラック相当ひずみの値が決まり、時間経過による変化はみられない。高さ 30mm の部分の場合は、28 日から 1 年の間では増加するが、その後はほとんど変化しない。図 1.4-77 は、材齢 10 年の各壁のクラック相当ひずみの分布を示す。天端のひび割れは初期に発生するが、時間経過によるひび割れ幅の増加は少ない。壁面内で発生するひび割れは材齢 28 日から材齢 1 年の間にひび割れ幅が増加し、その後の時間経過によるひび割れ幅の増加は少ない。図 1.4-77 でも示されているが、天端のひび割れと壁面内のひび割れがつながる場合とつながらない場合と比べてひび割れ幅の増加が大きい。図 1.4-77 の左上から右下まで壁番号を順番に 1、2、3、4 にし、最大ひび割れ幅の値を整理して示す。

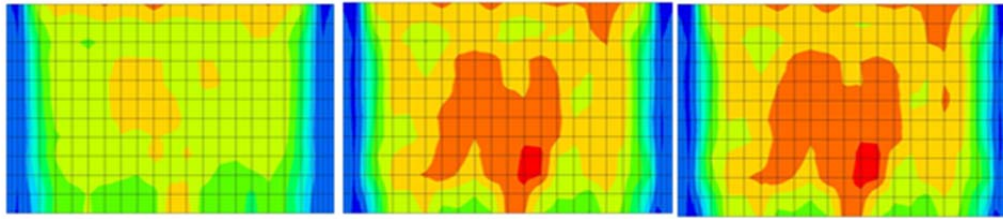


図 1.4-74 壁の一面の時間経過に伴うクラック相当ひずみの変化 (28日、1年、10年)

表 1.4-20 各壁の最大ひび割れ幅(単位: mm)

壁番号	1	2	3	4
28日経過	0.12	0.14	0.11	0.14
1年経過	0.17	0.17	0.12	0.19
10年経過	0.17	0.18	0.12	0.19

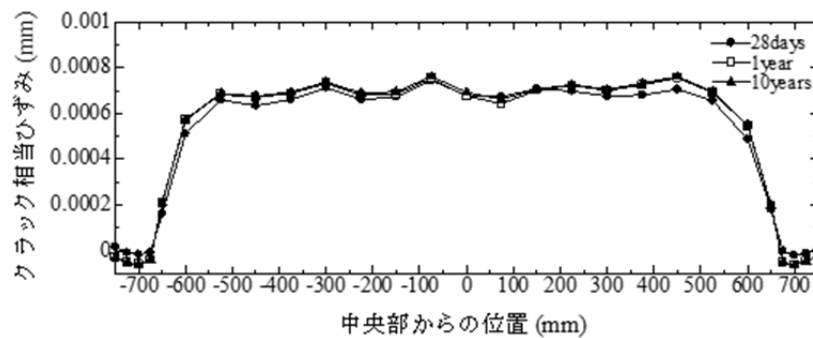


図 1.4-75 壁の天端のクラック相当ひずみの変化 (28日、1年、10年)

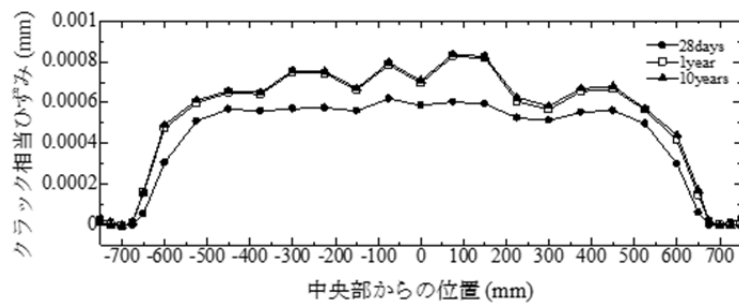


図 1.4-76 高さ 30mm の部分のクラック相当ひずみの変化 (28日、1年、10年)

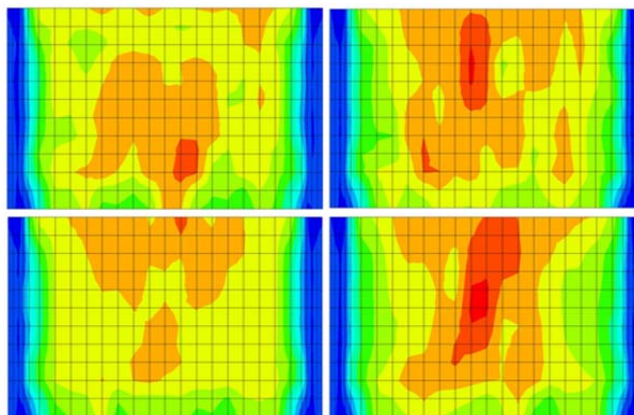


図 1.4-77 材齢 10 年の各壁のクラック相当ひずみの分布

ボックスの底版では、十字形のひび割れの発生が確認された。図 1.4-78 では底版の二つの方向に対してクラック相当ひずみの分布を示す。図 1.4-79 は水平方向線上と垂直方向線上でのクラック相当ひずみ分布をグラフで示す。垂直方向に発生したひび割れ幅は 0.42mm であり、水平方向に発生したひび割れ幅は 0.36mm である。

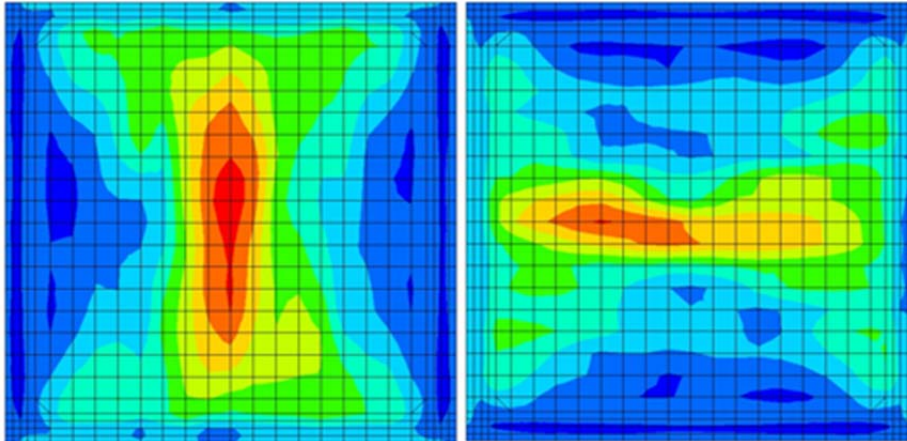


図 1.4-78 ボックスの底版の二つの方向のクラック相当ひずみ分布

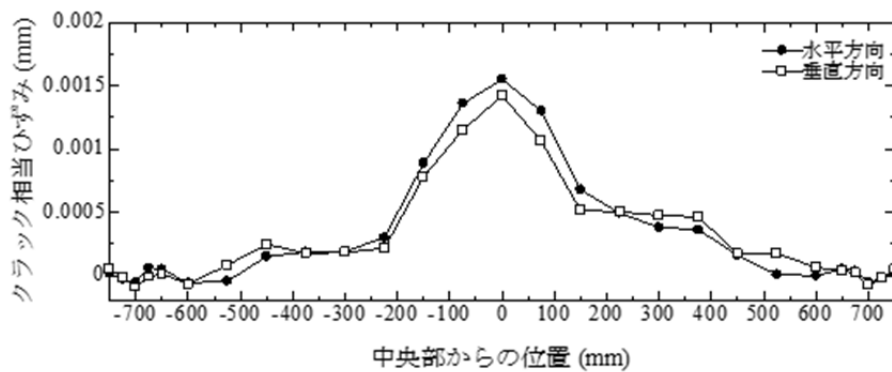


図 1.4-79 底板のクラック相当ひずみ分布

### (c) 仕様 a の解析結果

#### ①含水率

1.7×1.7×1.2m の寸法の高濃度汚染物質保管ボックスを解析対象物(仕様 a)とし、圧縮強度、割裂引張強度、ヤング率は仕様 b と同じ値を用いて解析を行った。周囲相対湿度も仕様 b と同じ条件を用いた。壁の厚さは 150mm である。

図 1.4-80 は材齢 28 日の含水率分布を示す。図 1.4-81、図 1.4-82 は高さ 600mm の部分に対して壁の厚さ方向と壁内部の長手方向の含水率分布の時間による変化を示す。壁の厚さが仕様 b と比べて厚いので含水率の変化が遅く進行することが確認された。

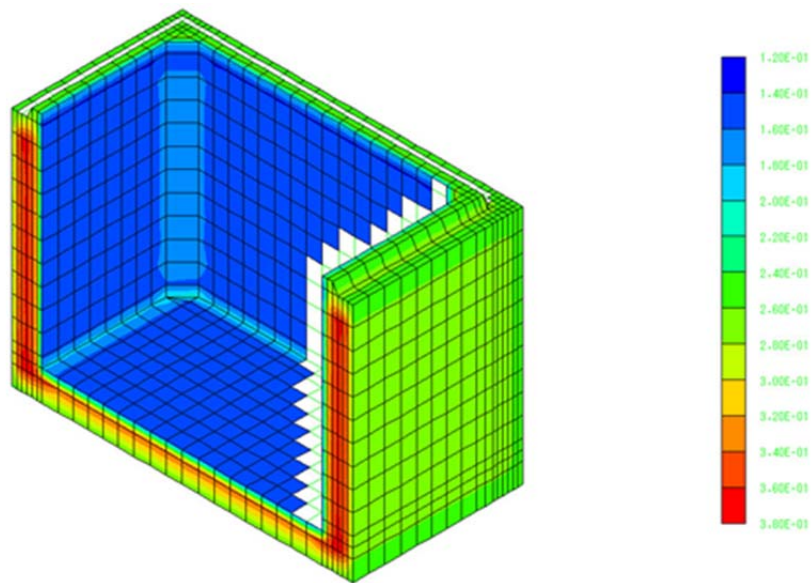


図 1.4-80 仕様 a の材齢 28 日の含水率分布

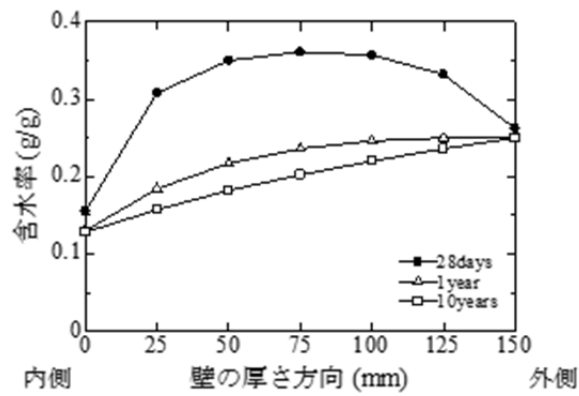


図 1.4-81 仕様 a の壁の厚さ方向の含水率分布

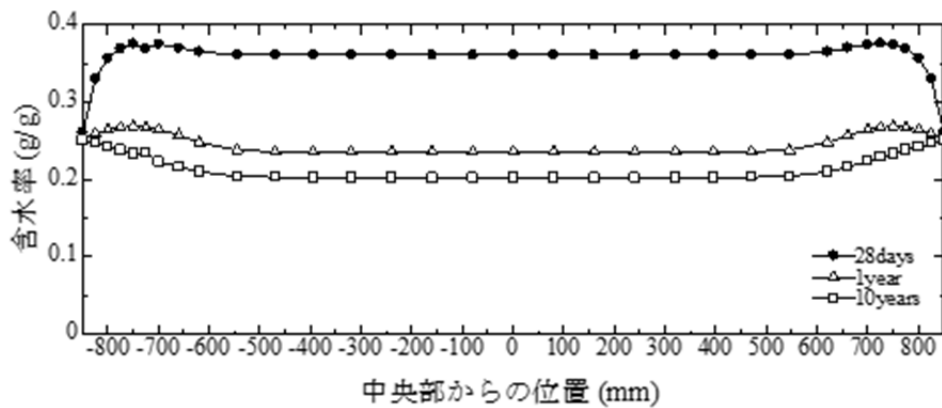
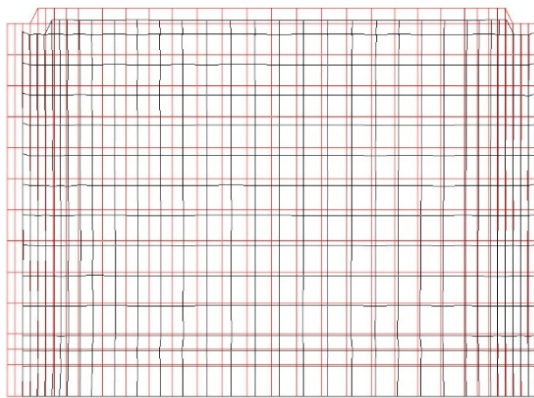


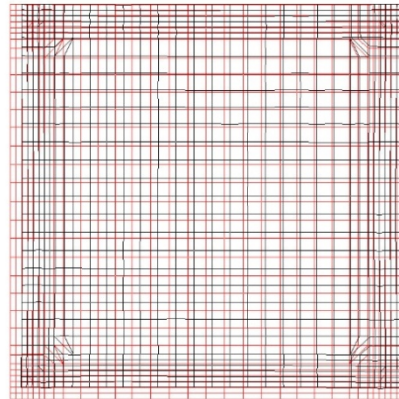
図 1.4-82 仕様 a の壁内部の長手方向の含水率分布

## ②最大主応力

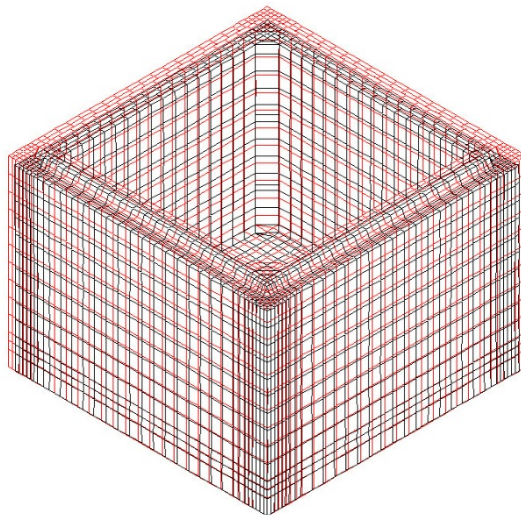
図 1.4-83 に解析の結果、得られた変形図を示す。変形図は 50 倍として示している。



変形図-真横視点(倍率 50 倍)



変形図-真上視点(倍率 50 倍)



変形図-立体図(倍率 50 倍)

図 1.4-83 仕様 a における変形図

図 1.4-84 は壁の一面の時間経過による最大主応力の分布の変化を示す。左から順番に材齢 28 日、1 年、10 年のときの最大主応力の分布である。青の方に近いと圧縮応力を、赤の方に近いと引張応力を受けることを意味する。

図 1.4-85 は図 1.4-84 に示す壁の一面の時間経過による最大主応力の変化をグラフで示す。高さ 60mm の部分の水平方向の最大主応力分布と中央部の垂直方向の最大主応力分布を示す。仕様 b は材齢 1 年以降には最大主応力の変化が少ないが、仕様 a は壁厚が厚いために材齢 1 年以降も最大主応力が増加する傾向を示す。

図 1.4-86 は各壁に関して材齢 10 年の最大主応力分布を示す。壁全体に渡って引張応力を受ける傾向が各壁で確認された。

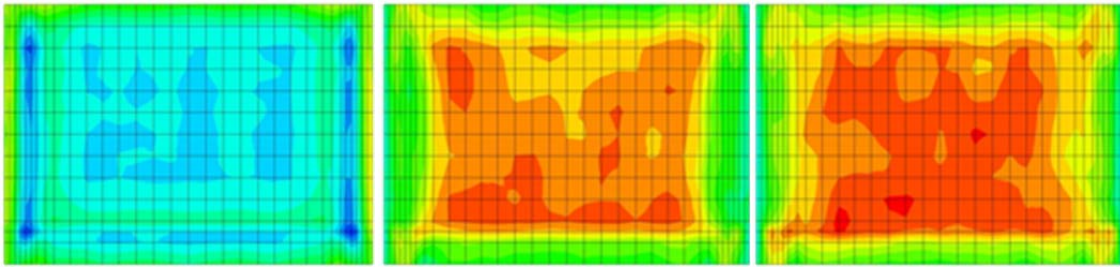


図 1.4-84 壁の一面の時間経過に伴う最大主応力の変化 (28 日、1 年、10 年)

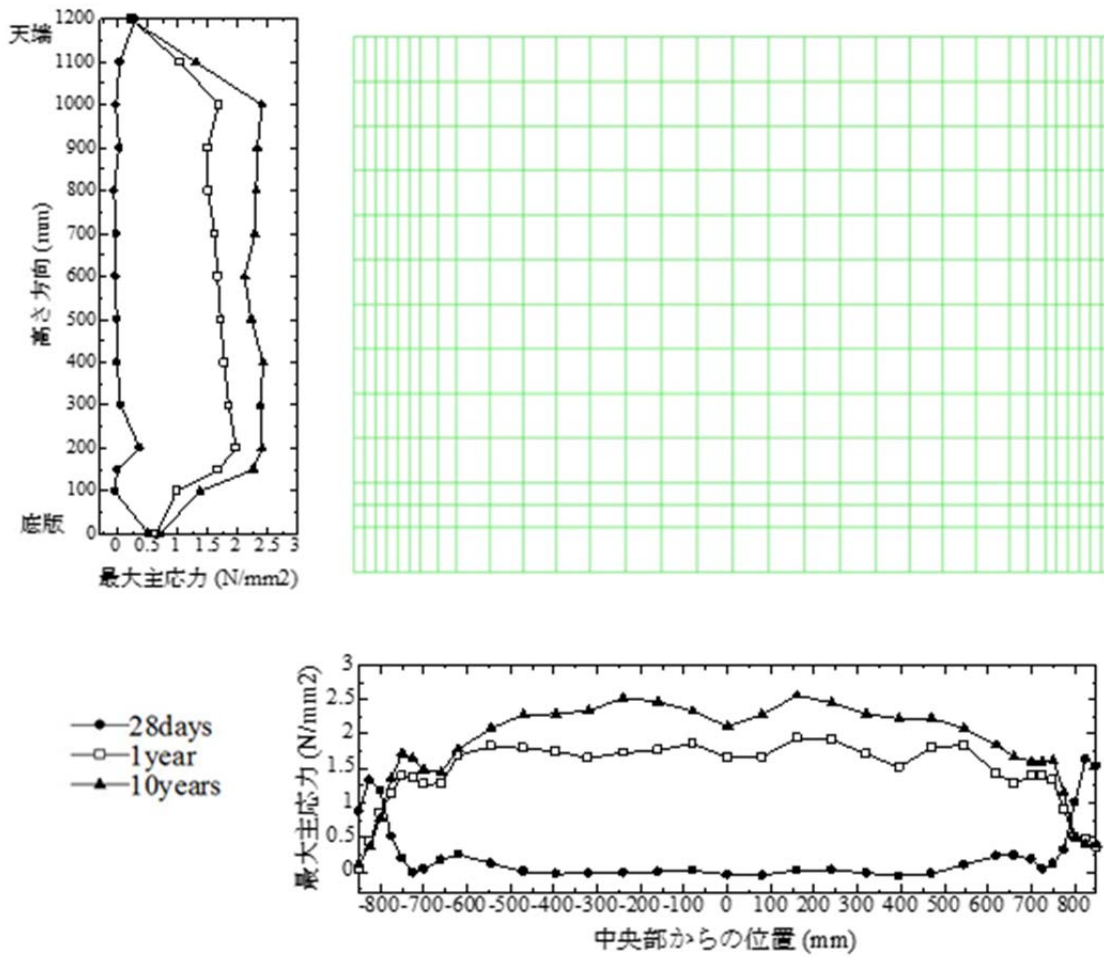


図 1.4-85 時間経過に伴う最大主応力の変化

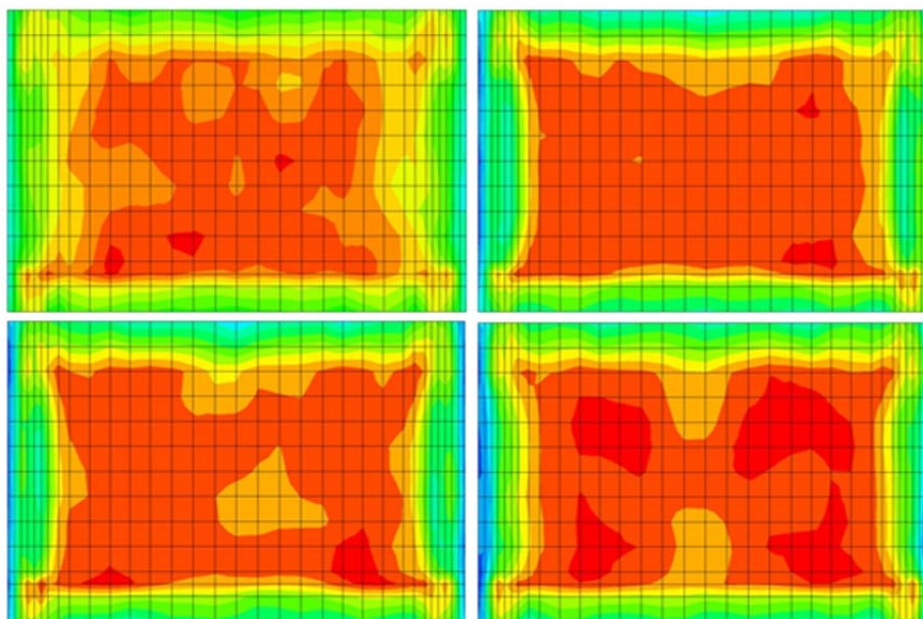


図 1.4-86 各壁の材齢 10 年のときの最大主応力分布

### ③ひび割れ幅

図 1.4-87 は壁の一面の時間経過によるクラック相当ひずみの変化を示す。左から順番に材齢 28 日、1 年、10 年のクラック相当ひずみ分布である。図 1.4-88 は材齢 10 年の最大クラック相当ひずみの値が確認された高さ 1m での水平方向のクラック相当ひずみ分布の変化を示す。

壁厚が 100mm でシングル配筋の仕様 b では材齢 28 日から材齢 1 年の間にクラック相当ひずみが増加し、その以降は変化が少なかった。壁厚が 150mm でダブル配筋の仕様 a の場合は材齢 28 日のクラック相当ひずみから局所的に増加する傾向を示す。図 1.4-89 では-600mm、200mm、600mm の部分の 3 ヶ所で局所的に増加する結果が確認された。

仕様 a では、他の壁と接する部分の近くで天端から発生するひび割れの進行が特徴である。左下の壁のクラック相当ひずみ分布をみると壁の中央部で発生するひび割れと天端から発生するひび割れがつながると中央部でひび割れが進行する傾向を示す。仕様 b でも壁面の中央部より他の壁と接する部分の近くで比較的に大きいクラック相当ひずみが確認されたが、仕様 a でも同じ傾向が確認できた。仕様 a の場合は、鉄筋の配筋方法としてダブル配筋を採用したため、鉄筋の効果で局所的にひび割れが発生したと考えられる。

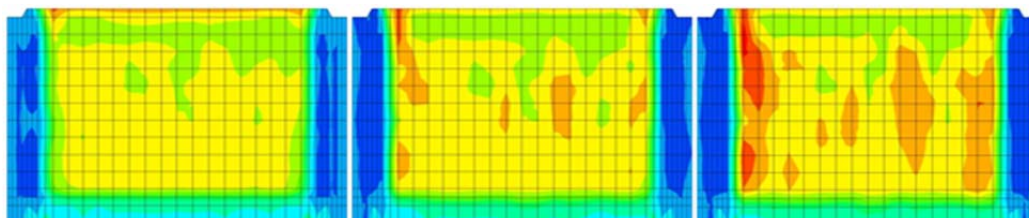


図 1.4-87 壁の一面の時間経過に伴うクラック相当ひずみの変化 (28 日、1 年、10 年)



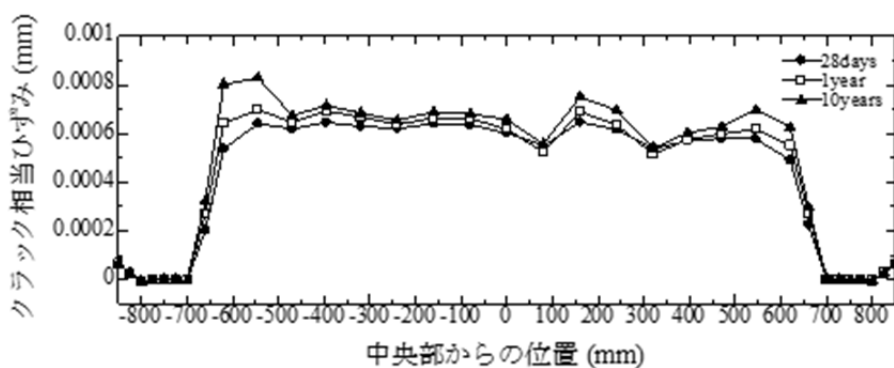


図 1.4-88 高さ 1m の部分でのクラック相当ひずみ分布の変化

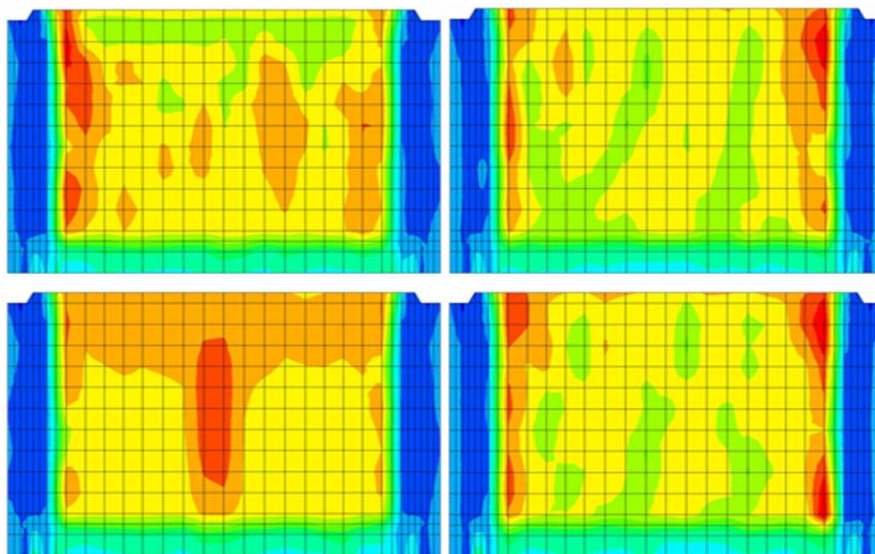


図 1.4-89 材齢 10 年の壁 4 面のクラック相当ひずみ分布

表 1.4-21 は、図 1.4-89 の左上の壁面から右下の壁面まで順番に 1、2、3、4 の番号を付け、番号に対応する壁面の最大ひび割れ幅を示す。仕様 b と比べ、全体的に 0.1~0.2mm 程度ひび割れ幅が小さいことが確認された。

図 1.4-90 は材齢 10 年の底版の二つの方向に対するクラック相当ひずみ分布を示す。底版全体に渡って  $2 \times 10^{-4}$  mm の前後のクラック相当ひずみの値を示す。仕様 b 場合は壁で発生する中央部のひび割れと連成して底板に十字形のひび割れが発生した。仕様 a の場合は壁の天端に発生するひび割れから進行するひび割れであるため、底板のひび割れ発生に影響を及ぼさなかったと考えられる。底板のひび割れ制御には、壁のひび割れの制御が効くと考えられる。

表 1.4-21 各壁の最大ひび割れ幅(単位 : mm)

壁番号	1	2	3	4
28 日経過	0.11	0.11	0.16	0.12
1 年経過	0.12	0.14	0.16	0.14
10 年経過	0.14	0.15	0.19	0.15

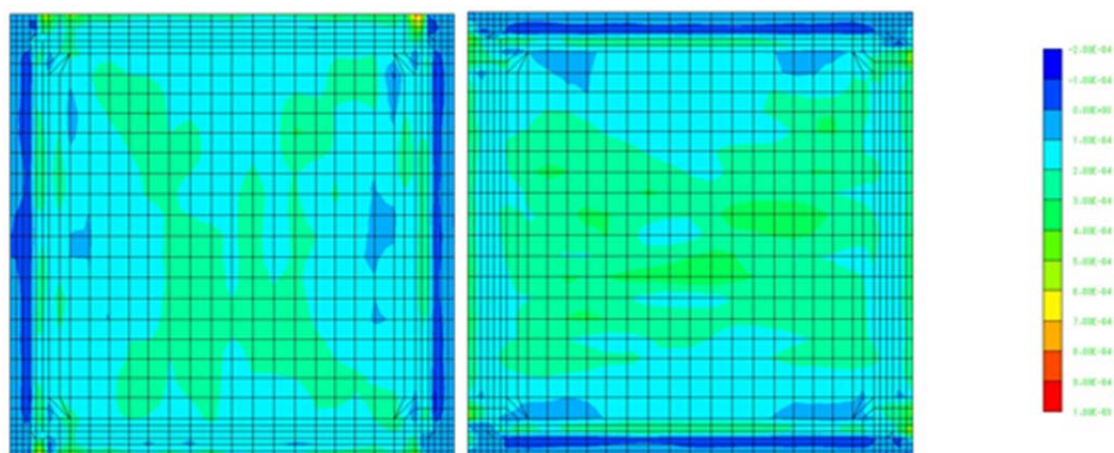


図 1.4-90 材齢 10 年の底版の二つの方向に対するクラック相当ひずみ分布

#### (5) まとめ

焼却飛灰に万が一水が供給され、コンクリートの表面保護層が破損した場合に起きる現象について検討した。検討内容は、鋼材腐食、化学的劣化、乾燥収縮である。

鋼材腐食については、塩素濃度が一定値を超えると鋼材上の不導体被膜が破壊され、腐食状態となるが、濃度が高いからと言って著しい腐食速度の増加が認められるわけではなかった。より詳細な考察は必要であるが、発錆に関しては、限界塩素濃度を超えるかどうか重要であるという結果を得た。腐食速度は、より長期の暴露により評価を進める予定である。

化学浸食については、焼却飛灰から発生すると想定される濃厚塩水の各成分の影響を個別に実験し、その後、模擬抽出液により現象を再確認した。Ca イオンを含まないアルカリ塩化物系では、反応性骨材からアルカリシリカゲルの発生が認められたが、ひび割れもなく、 $3\text{CaO}\cdot\text{CaCl}_2\cdot 15\text{H}_2\text{O}$  (3-1-15) の生成は認められなかった。塩化 Ca 溶液では、30%の条件で  $5^\circ\text{C}$  と  $20^\circ\text{C}$  でひび割れが認められ、3-1-15 の発生も顕著であった。アルカリの存在は 3-1-15 の生成を抑制し、ひび割れも軽減される。模擬溶液でも 3-1-15 の生成は認められたが、ひび割れまでには至らなかった。今後、劣化が生じる可能性もある。フライアッシュを添加することで、3-1-15 の生成は抑制でき、今後の劣化もないものと想定できる。

$\text{CaCl}_2$  が存在すると、コンクリートと直接接触していなくても、気相を介して吸湿が起きる。また直接接触すると、わずかながら Cl はコンクリートに浸透していく。ただし、 $\text{CaCl}_2$  の飽和能でありながら、Cl 浸透は 1mm 程度と限定的であり、その原因は不明確である。コンクリートピットを模擬して、コンクリートの変形を画像層間法により評価した。その結果、材齢とともに収縮が進行する状況、普通コンクリートと対策コンクリートの差を評価でき、対策コンクリートのほうが水分移動が抑制され、フライアッシュを添加し水セメント比を小さくしたコンクリートが望ましいことが分かった。さらにコンクリート容器を模擬し、変形挙動を解析した結果、長期的なひび割れ挙動をコンクリート容器の配筋状況などをもとに詳細に予測できた。

#### 1.4.4 アルカリ骨材反応抑制対策

##### (1) 考慮すべき点

長期間にわたりひび割れを許容しないコンクリートを設計・施工するには、複数の観点からの対策が必要であるが、ここではアルカリ骨材反応（ASR）の観点から議論する。

現在も JIS に ASR 対策は提示されているが、それは完全なものではなく、1986 年の制定当時に許容できる範囲と考えられた抑制対策であり、適応場所によってはより確実な抑制対策を考えるべきものである。焼却飛灰を長期間にわたり処分することを考えると、一つは、焼却飛灰に含まれる塩化物イオンの影響を考えることができる。セメント水和物と塩化物イオンが反応すると、イオン交換反応により OH イオンが放出され、空隙水中の pH が上昇し、ASR が促進される可能性がある。ただし、CaCl<sub>2</sub> が多く含まれる場合には、液相 pH の上昇は限定的であり、飛灰溶液での検討が必要である。

もう一つは、骨材のアルカリ反応性試験方法の不完全さにある。最新の研究では、日本で用いられている化学法、モルタルバー法には限界があることが広く認識されている。しかし、日本の規準はこれらの限界に対応したものとなっていない。そこで、汚染焼却飛灰の処分を考えると、最新の手法を取り入れたコンクリートの ASR 抑制対策が求められる。世界的には、コンクリートプリズムを用いた促進膨張試験が最も信頼性が高いと考えられているため、国内の反応性骨材についてこの手法を適用する。

骨材の反応性試験、あるいはコンクリート配合の膨張試験は、未来永劫、コンクリートが ASR 膨張しないことを保証するものではない。ある有限の期間に有害となるひび割れが起きないと考えられるレベルを人為的に設定したものである。そこで、ここでは、ASR 膨張を促進試験の結果を用いて予測することも試みる。

##### (2) 継続測定：焼却飛灰模擬抽出液と温度とアルカリ量、アルカリラッピングの効果の予備検討

2014 年度に開始した膨張試験の継続測定結果を示す。使用材料の詳細は 2015 年度も同じであるので、事項で詳述する。表 1.4-22 に実験水準を示す。

表 1.4-22 継続測定した試験体の水準

試験体番号 (No.)	試験方法	使用反応性 骨材	反応性骨材の 粗／細骨材別	反応性骨 材 混合率	使用セメント	養生温度 (°C)	アルカリ総量 (kg/m <sup>3</sup> )	
21	焼却飛灰模擬液に浸漬	骨材A2	粗	30%	OPC	60	1.856 (セメントのみ)	
23	焼却飛灰模擬液に浸漬				FA30%		3.0	
26''	AAR-4 アルカリ湿布(1.5N)				OPC		4.25	
27''	AAR-4 アルカリ湿布(1.5N)						5.5	
28'	AAR-4						5.5	
28''	AAR-4 アルカリ湿布(1.5N)						5.5	
31'	AAR-4						5.5	
34''	AAR-4 アルカリ湿布(1.5N)				100%		40	5.5
					30%			

図 1.4-91 に焼却飛灰抽出模擬溶液に浸漬させた反応性の安山岩（A2）を用いたコンクリートの膨張挙動を示す。No.22 は、No.21 のコンクリートを単に水中に浸漬したものである。反応性骨材ではあるが、アルカリ総量は十分に少ないため、水中では膨張しない。このコンクリートを模擬溶液に浸漬すると、数 10 日で 0.2% の著しい膨張を示し、その後は安定した値を示した。質量変

化は、水中では若干の減少で溶脱を示唆した。一方、模擬溶液中では2.5%の質量増加を示し、なんかの反応が起きたことを示している。No21の普通ポルトランドセメントをASR抑制効果がある石炭火力発電所から産出されるフライアッシュで30%を置換すると、質量変化は1%の増加を示したものの、膨張は1.5年にわたり抑制されている。

この結果に基づくと、焼却飛灰の処分施設において、コンクリート表面の防食層が破損することを考えると、コンクリートは普通ポルトランドセメントではなく、置換率の高いフライアッシュセメントで製造することが必要である。

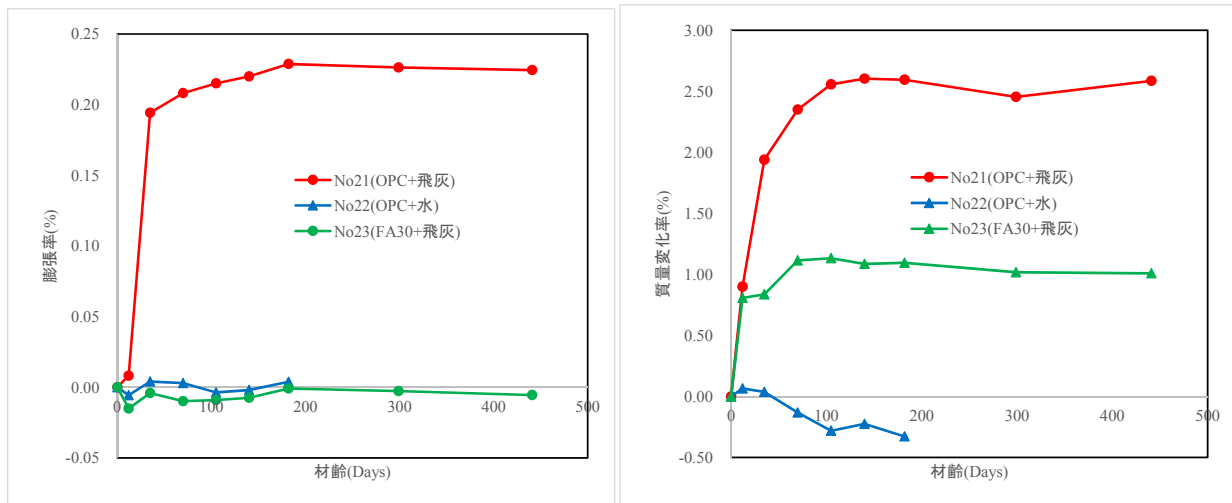


図 1.4-91 焼却飛灰抽出模擬溶液に浸漬させた反応性骨材(骨材 A2)を用いた試験体の膨張率および質量変化率

図 1.4-92～93 に、CPT の継続測定の結果を示す。この試験により、以下の結果を得た。

- 60℃養生、アルカリ湿布 (AW) を行った試験体は、アルカリ総量が多いほど膨張率が高くなった。また、アルカリ量に依存せず、何れも養生初期から膨張し、材齢が進むと膨張は収束した。
- AW の有無 (26”と 28”との比較) では、膨張率に大きな差異は無く、むしろ AW なしの方が膨張率は高かった (原因不明)。しかしながら、AW なしは質量変化率は少なく、十分な吸水はしない、あるいは、乾燥を生じたと考えられる。
- 骨材 A2 を 100%使用した 31” (AW なし) は、30%使用した 28” (AW なし) と比較して、膨張率は低くなったが、膨張パターンは異なり、材齢 14 日で膨張し、以後、膨張の増加は無かった。
- 40℃養生は 60℃養生と比較して (26”と 34”、何れも AW)、材齢初期の膨張率は小さいが、材齢が進むに従って膨張率は大きくなり、膨張が収束する傾向は見られない。一方、質量変化率は 40℃養生の方が大きい。

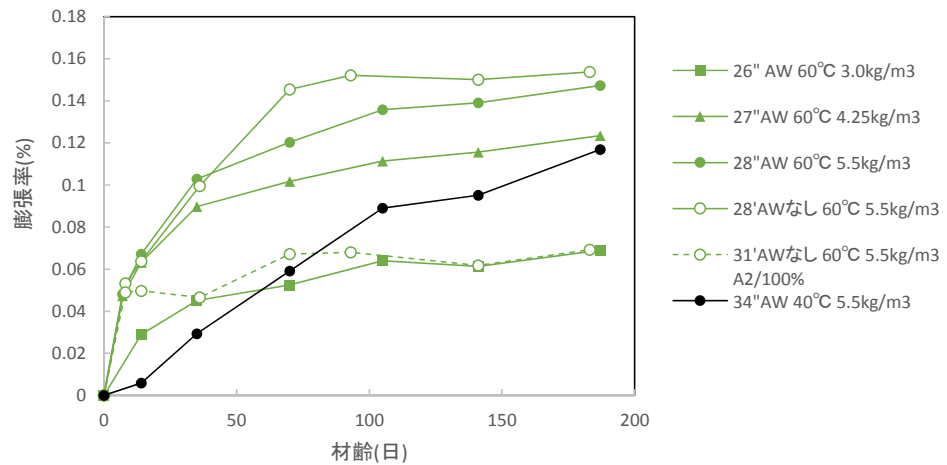


図 1.4-92 継続測定における膨張率(骨材 A2)

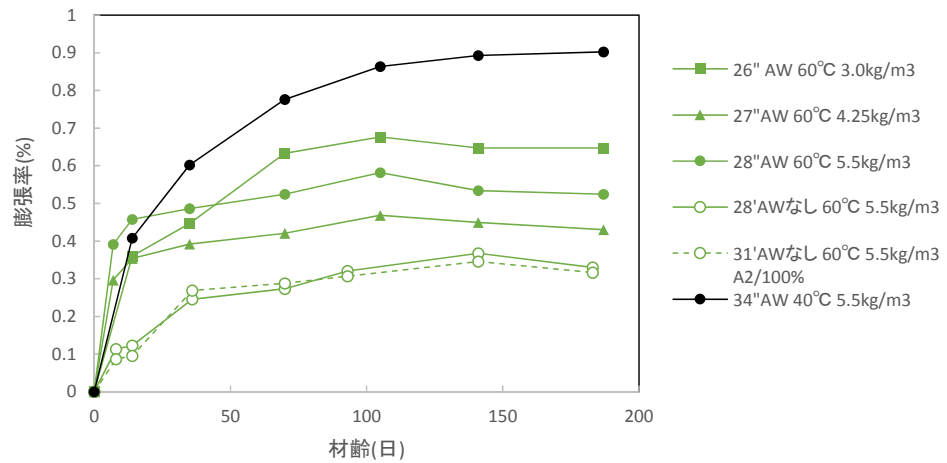


図 1.4-93 継続測定における質量変化率(骨材 A2)

### (3) CPT による ASR のアルカリ濃度と温度依存性

2014 年度の結果から、CPT においてアルカリ濃度と温度が複雑な影響を及ぼすことが分かったため、骨材を反応性と安山岩とチャートとし、両者の交互作用を調べた。

#### 1) 使用材料

普通ポルトランドセメントは、太平洋セメント株式会社熊谷工場品を、フライアッシュ は JIS II 種、東北電力 能代産を用いた。

使用骨材として、急速膨張性骨材、遅延膨張性骨材、および非反応性骨材を用いた。用いた骨材を表 1.4-23 に示す。各骨材を粉砕した試料を用いて、蛍光 X 線分析により求めた化学組成を表 1.4-24 に示す。

骨材 A2、骨材 T および骨材 G,H について、粉末 X 線回折によって相組成を求めた<sup>[8]</sup>。さらに各骨材について、厚さ 15 $\mu$ m 程度の鏡面研磨薄片を作製し、偏光顕微鏡および反射顕微鏡下で構成鉱物と組織の観察を行った。

表 1.4-23 使用した骨材一覧

骨材	要求特性値	産地	調整
A2	急速膨張性骨材：平成 25 年度の骨材 A2 と同じ砕石場から採取した骨材であり、著しい組成パシマム現象を示すオパールを含有し、アルカリ総量 3kg/m <sup>3</sup> 未満で膨張することが確認されている	東北	原石を破碎、篩い分けしたもの
T	遅延膨張性の粗骨材：平成 25 年度の骨材 T と同じ砕石場から採取した骨材であり、チャートであることが確認されている。	中部	コンクリート用骨材としての流通品
G、H	非反応性骨材(同じ供給源)：平成 25 年度の骨材 T と同じ砕石場から採取した骨材であり、非反応性骨材であることをが確認されている	九州	同一の石灰石鉱山から産出されるコンクリート用石灰石骨材を入手

表 1.4-24 使用骨材の化学組成(単位：mass%)

骨材	ig.loss	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	TiO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	MnO	Cl	Total
A2	4.92	63.31	14.06	5.38	4.58	0.98	0.06	3.94	1.39	0.64	0.19	0.20	0.000	99.65
T	0.86	95.24	2.38	0.57	0.03	0.16	0.01	0.04	0.55	0.07	0.02	0.01	0.002	99.94
G、H	43.57	0.35	0.14	0.11	54.66	0.44	0.00	0.00	0.01	0.02	0.02	0.00	0.000	99.32

骨材 A2:主に斜長石と ASR 反応性鉱物であるクリストバライトが高強度で検出され、その他、菱鉄鉱 (FeCO<sub>3</sub>)、石英、ドロマイト (CaMg(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) が検出された。なお、偏光顕微鏡下で認められたオパールとガラスは非晶質であり、結晶面間隔の測定により物質同定を行う粉末 X 線回折では検出が困難である。また、偏光顕微鏡下で認められた炭酸塩鉱物は、菱鉄鉱 (FeCO<sub>3</sub>) とドロマイト (CaMg(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) であることが判明した。

斑状組織を示す安山岩である。斑晶は、斜長石、輝石、不透明鉱物のほか、アパタイトの微晶晶をごく少量含む。石基は、斜長石、クリストバライト、輝石、不透明鉱物、およびガラス\*<sup>1</sup> から構成される。輝石は斑晶と石基に含まれるもののいずれとも、ほぼ完全に、スメクタイト、オパール、炭酸塩鉱物などに変質している。また、岩石中には微細な割れ目が多く分布し、これを充填するように炭酸塩鉱物、オパール、カルセドニー、石英が生成している。オパールの表面には、クリストバライトの粒状結晶が生成している場合がある。ASR 反応性鉱物として、オパール、ガラス、カルセドニー、および多量のクリストバライトを含む。

骨材 T:石英のみ検出され、粉末 X 線回折のみで同定できる ASR 反応性鉱物は検出されなかった。偏光顕微鏡観察によると、主に隠微晶質石英からなり、微量の粘土鉱物、不透明鉱物などを伴う。また、石英やカルセドニーからなる脈が多く分布する。放散虫化石殻を含む部分では内部をカルセドニーが置き換えている。一部に、スタイロライトを伴って、鉄酸化物や粘土鉱物などの不純物の濃集した部分が認められる。ASR 反応性鉱物として隠微晶質石英、カルセドニーを含む非変成のチャートである。

骨材 G (H):方解石が検出された。粉末 X 線回折で同定できる ASR 反応性鉱物は検出されなかった。偏光顕微鏡観察では、方解石のみから構成され、石英粒子や粘土鉱物などの不純物は認識されない。微晶質ないし隠微晶質な方解石からなるミクライト質な基質と、脈状にあるいは化石が置き換えられるなどにより粗粒方解石に再結晶した部分とからなる。ASR 反応性鉱物は含まない。

## 2) 試験水準およびコンクリート配合

実施した試験水準を表 1.4-25 に示す。コンクリート配合は、W/B=50%、単位セメント量 160kg/m<sup>3</sup>、細骨材率 45%一定とした。骨材は、急速膨張性骨材（粗骨材）を用いる場合は、粗骨材量の 30wt% 使用したペシマム配合とし、残りの粗骨材および細骨材には非反応性骨材を用いた。遅延膨張性骨材を用いる場合は、ペシマム配合とせず、粗骨材として用いる場合（No.40）は細骨材を非反応性骨材とし、細骨材として用いる場合（No.41～48）は粗骨材を非反応性骨材とした。

アルカリ総量は、特級試薬 NaOH を予め練混ぜ水に溶かして添加して調整した。なお、アルカリ総量には、セメントおよびフライアッシュ中のアルカリ量も含む。また、目標空気量は 4.5±1.5% とし、目標スランプはコンクリートが打設できる範囲とし、AE 減水剤（ポゾリス No.70）および AE 助剤（マイクロエア 303A。但し FA を置換した水準はマイクロエア 785（FA 用）を使用）を用いて調整した。練混ぜ直後のフレッシュ性状は表 1.4-25 に併せて示す。

表 1.4-25 AW-CPT 試験における試験水準およびコンクリートのフレッシュ性状

No.	骨材	養生温度	アルカリ総量 (kg/m <sup>3</sup> )	セメント	フレッシュ性状		
					スランプ (cm)	空気量 (%)	
40	T(細)	60℃	5.5	普通セメント	1.1	2.8	
41	T(粗)	60℃	5.5		13.0	3.5	
42			4.75		11.5	4.6	
43			4		14.0	3.9	
44			3		16.0	3.3	
45			40℃		5.5	(13.0)	(3.5)
46					4.75	(11.5)	(4.6)
47					4	(14.0)	(3.9)
48					5.5	(13.0)	(3.5)
49	A2	60℃	3		15.0	4.5	
50			2.5		12.0	4.3	
51			2		9.5	3.4	
52			5.5		7.0	3.7	
53		40℃	4.25		3.5	3.5	
54			3		(15.0)	(4.5)	
55		20℃	5.5		(7.0)	(3.7)	
56			4.25		(3.5)	(3.5)	
57			3		(15.0)	(4.5)	
58			2.5		(12.0)	(4.3)	
59	A2-FA15	60℃	5.5		FA15wt%置換	15.0	4.8
60	A2-FA30		5.6	FA30wt%置換	18.0	4.3	
60+	A2-FA30		5.5		—	—	

( )内は、温度条件の異なる他の水準と同じコンクリートを使用

## 3) 養生および膨張率測定法

試験法は、日本コンクリート工学会、ASR 診断の現状とあるべき姿研究委員会報告書、小型コンクリートプリズムを用いた ASR 促進試験方法（案）<sup>9)</sup>に準拠した。

アルカリラッピング（AW）は、不織布 1 枚を用い、1.5N NaOH50g を含浸させてコンクリート試験体に巻きつけた。

60℃養生の水準はステンレス製容器を用い、また、40℃および 20℃養生の水準はプラスチック丸型容器（トスロン）を用いて養生した。

#### 4) 結果

試験を行った水準の膨張率測定結果を図 1.4-94 および図 1.4-95 に、質量変化を図 1.4-96 および図 1.4-97 に示す。

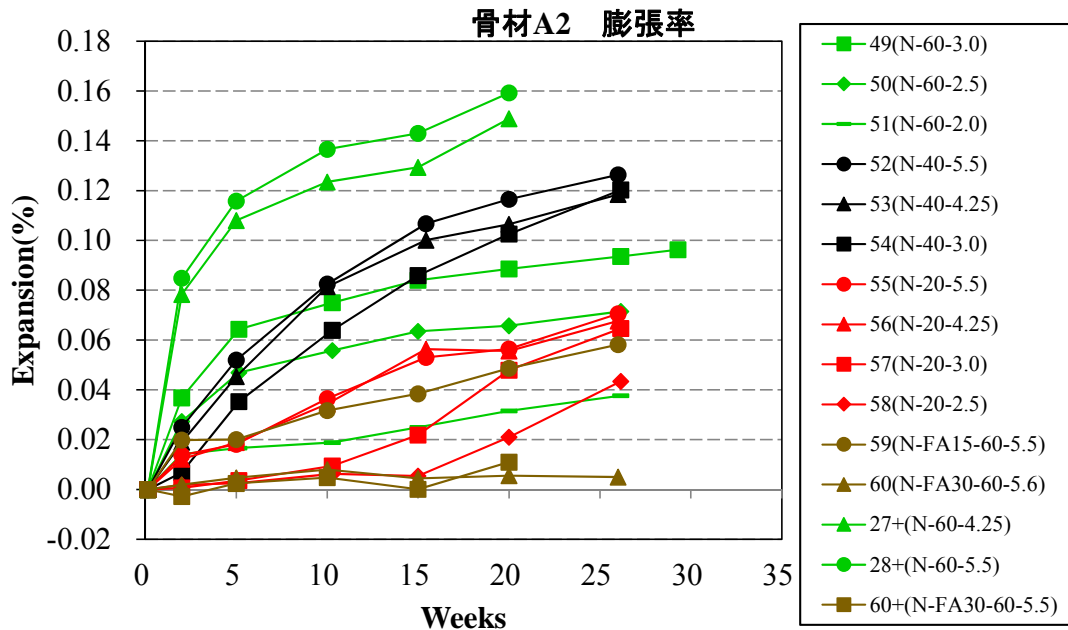


図 1.4-94 AW-CPT 試験での膨張率 (骨材 A2)

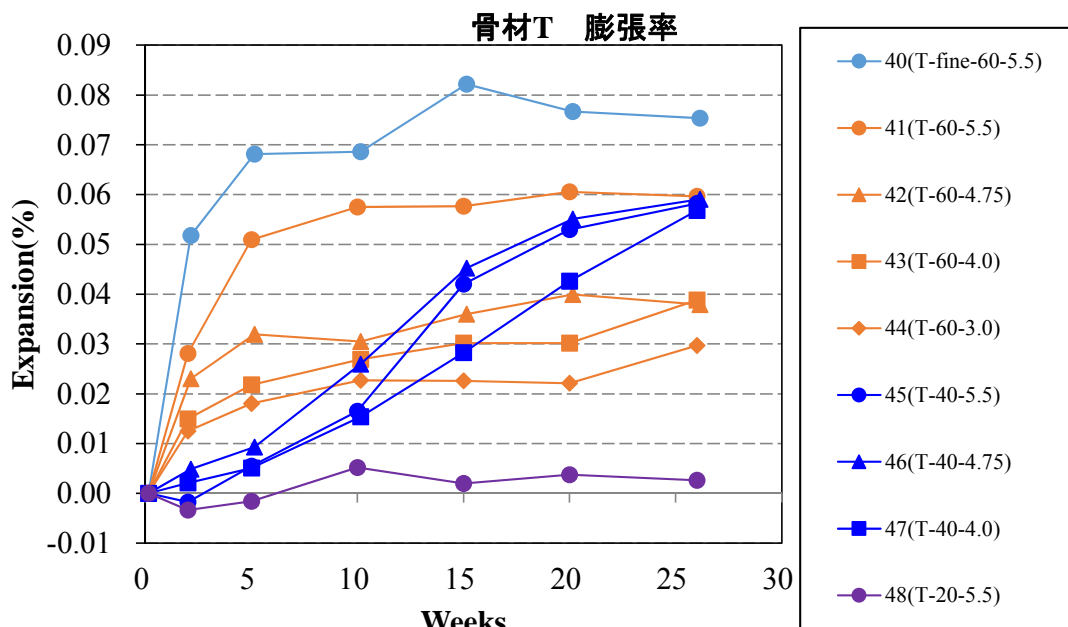


図 1.4-95 AW-CPT 試験での膨張率 (骨材 T)



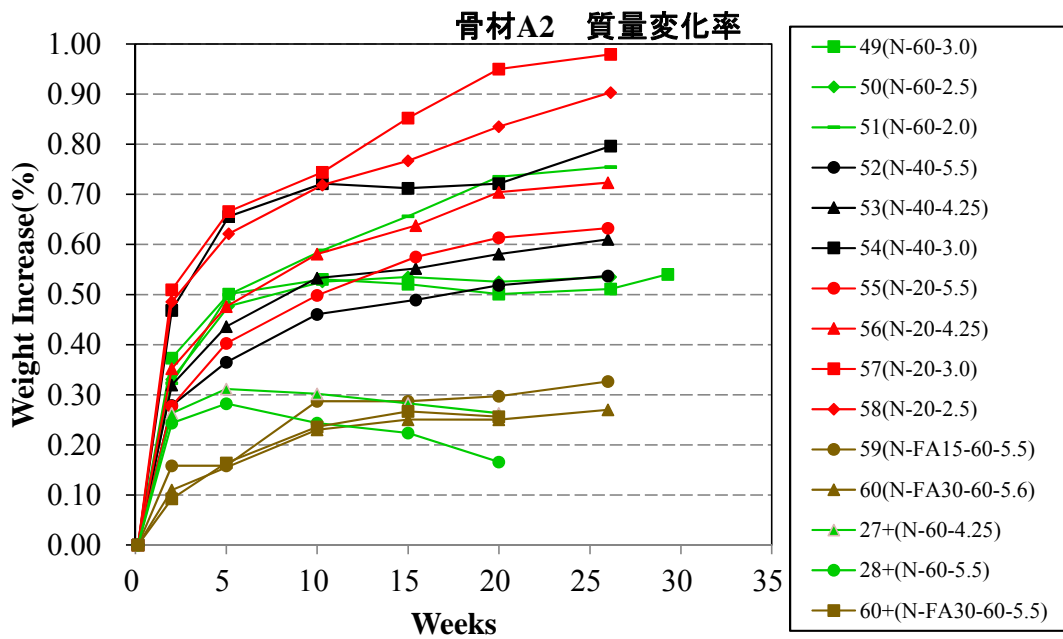


図 1.4-96 AW-CPT 試験での質量変化率（骨材 A2）

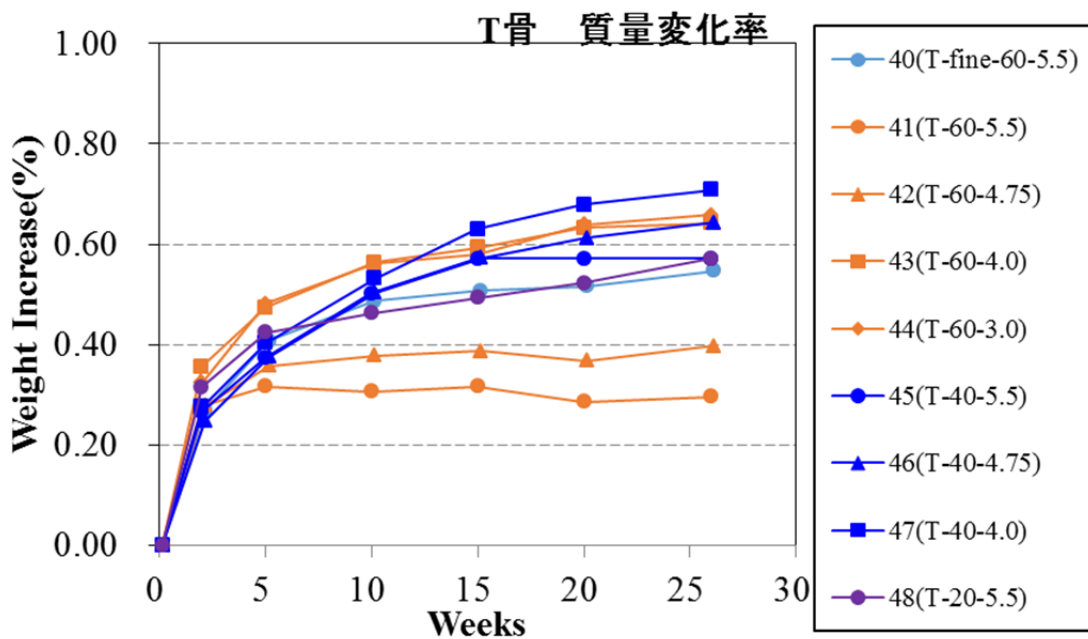


図 1.4-97 AW-CPT 試験での質量変化率（骨材 T）

得られた結果をまとめる。

- ・ 60℃ではより早期に膨張が開始するが、より短期間に収束する傾向を示す。
- ・ 温度が 40℃、20℃と低下すると、膨張開始までの時間は長くなるが、その後、膨張はゆっくりと継続し、より高い温度よりも高い膨張率を最終的には示す。

- ・ 60℃ではアルカリ濃度依存性が顕著であるが、40℃では差がほとんどなくなる。20℃では、膨張開始時間に強い影響を与える。
- ・ フライアッシュは膨張開始時間には影響しないが、膨張速度を低下させる。
- ・ 用いた安山岩とチャートを比べると、膨張量自体には差があるが、温度とアルカリ総量の影響は同様に表れた。
- ・ 質量増加と膨張量の間には直接的相関はない。
- ・ 温度が高いほうが質量増加は少ない。
- ・ アルカリ量が多い方が質量増加は少ない。
- ・ 質量増加は高温では飽和している。
- ・ フライアッシュを添加しても質量増加は認められる。何からの反応は起きているが、膨張にはつながらないと想像できる。
- ・ 20℃にておい膨張が認められない場合も、著しい膨張を示した水準と同程度のレベルで質量増加は起きている。

#### (4) 膨張挙動の予測

##### 1) 概要

放射能汚染した焼却飛灰などの廃棄物を処分する施設において、コンクリートの利用は遮断性能、遮蔽性能の長期間の保持の観点からも有用と考えられる。コンクリートの耐久性は、材料特性、環境等に応じて劣化予測に基づいて設計されるが、アルカリシリカ反応（ASR）による膨張については劣化予測する手法が確立されていないため、環境条件や構造物の重要度に応じた抑制対策や維持管理での対応を困難としている。本研究では、温度およびアルカリ総量を変えた ASR のコンクリートプリズム試験（CPT）によって得られた膨張曲線から実環境にける将来の膨張予測を行い、暴露試験体と比較することで ASR 膨張予測及ばす要因について検討を行った。

検討結果は 2014 年度コンクリート技術大会にて公表し、以下は、そのデータである。

##### 2) 方法

ASR 反応性骨材として、骨材 A および骨材 D を用いた H25 年度取得データを用いた。CPT は、60℃における試験は RILEM AAR-4 に準拠し、成形したコンクリートをステンレス容器に入れ、湿空条件下 60℃養生としたものである。但し、骨材 D については、AAR-4 と同様に 60℃養生であるが、試験体サイズは 10x10x40cm であり不織布による湿布養生としている。ASR 膨張予測法は、既往の文献<sup>[10]</sup>に準拠した。

##### 3) 結果

###### (a) アルカリ総量と最大膨張率 $\epsilon_{\infty}$ との関係

アルカリ総量を変えた CPT の結果から得られた最大膨張率  $\epsilon_{\infty}$  を用い、図 1.4-98 にアルカリ総量との関係として示す。但し、骨材 D については、アルカリ総量を変えた CPT は実施していないため、FA 置換によってアルカリ総量が見かけ上減少したと仮定してプロットした。これは、FA や高炉スラグ微粉末などの混合材種類と置換量に依存せず ASR 膨張率と液相 OH<sup>-</sup>濃度とは比例関係を示し、液相 OH<sup>-</sup>濃度は液相アルカリ量によって定まるとした既往の研究<sup>[11]</sup>に基づいており、

A30FA25 の CPT 配合はアルカリ総量  $5.5\text{kg/m}^3$  であるが、骨材 A のアルカリ総量と  $\epsilon_{\infty}$  との直線回帰式から、FA を 25% 置換することで見かけのアルカリ総量が計算上  $3.23\text{kg/m}^3$  に低下したとみなし、骨材 D を用いた D100FA25 のアルカリ総量は見かけ  $3.23\text{kg/m}^3$  に、さらに FA 置換量とアルカリ減少量は比例関係にあると仮定して D100FA15 のアルカリ総量は見かけ  $4.04\text{kg/m}^3$  になっている。図 1.4-98 より、A 配合（骨材 A 使用率 30%）の限界アルカリ総量（膨張を生じないアルカリ総量、以下  $R_{lim}$ ）は  $1.79\text{kg/m}^3$ 、骨材 D（使用率 100%）の限界アルカリ総量  $R_{lim}$  は  $3.07\text{kg/m}^3$  と算出された。

これらの結果より、骨材 A は、アルカリ総量規制  $3.0\text{kg/m}^3$  でも膨張を生じる可能性があり、骨材 D は JIS 化学法および JIS モルタルバー法で無害ではあるが、アルカリ総量が  $3\text{kg/m}^3$  を越えた場合には膨張を生じる可能性があることが分かる。また、骨材 D は AAR-4 による膨張性の判断基準である 20 週 0.04% を越えたことから、このような遅延膨張性を示す骨材においても  $60^\circ\text{C}$  の加速試験で反応性を検知できると考えられる。

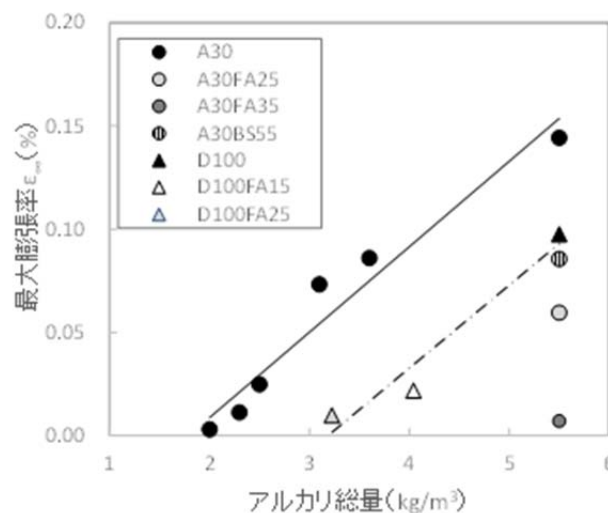
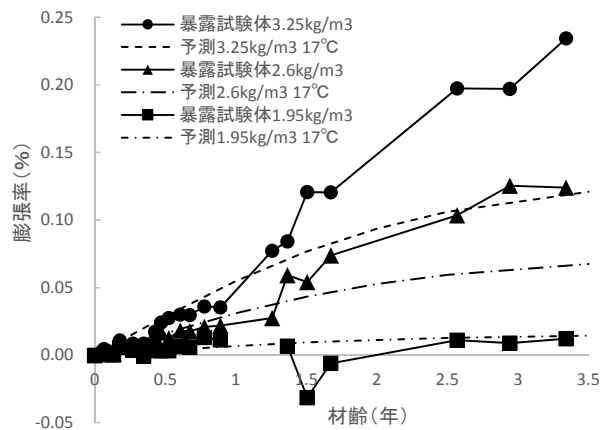


図 1.4-98 CTP におけるアルカリ総量と最大膨張率  $\epsilon_{\infty}$  との関係

### (b) 実環境での膨張予測と暴露試験体との比較

CPT に用いた骨材 A と同じ産地の骨材で作製したコンクリートの暴露試験体の膨張率変化の結果<sup>[12]</sup>を用い、CPT の結果から暴露環境の温度およびアルカリ総量での膨張を予測した結果を図 1.4-99 に示す。ここで、既往の研究<sup>[10]</sup>では、CTP のアルカリ濃度依存性データが無いので、CSA A23.2-27A を参考に高い反応性を持つ骨材の  $R_{lim}$  は  $1.2\text{kg/m}^3$  と仮定して骨材 A に適用しているが、本研究では、前項に従って  $R_{lim}$  を求めたのでこの値を用いた。なお、膨張予測では、環境温度は年間の温度気温変化を考慮せず、暴露環境付近の年平均気温である  $17^\circ\text{C}$  一定条件として計算した。その結果、膨張曲線の傾向は暴露試験体と異なり、材齢初期は予測での膨張率が高く、材齢が進むに従い逆に暴露試験体の膨張率が大きくなった。しかしながら、アルカリ総量に応じて膨張率が低下する傾向は、表現できていると考えられる。



1.4-99 CTP を用いた膨張予測とアルカリ総量の異なる暴露試験体の膨張率測定結果

(c) 暴露試験体と予測との差異に関する考察

① フィッティングの課題

図 1.4-100 に骨材 A を用いアルカリ総量を変えた CTP 試験結果とフィッティング結果を合わせて示す。暴露試験体との比較における膨張予測では、試験期間短縮のためアルカリ総量が多い  $5.5\text{kg/m}^3$  でのフィッティング結果を用いている。図では、アルカリ総量が多くなると、CPT の膨張は続く傾向にあるが、フィッティングでの膨張率は材齢約 0.2 年（10 週）で、ほぼ最大膨張量  $\varepsilon_{\infty}$  に達した。すなわち、予測で用いた  $\varepsilon_{\infty}$  は暴露コンクリートよりも小さく見積もり、結果として、材齢が進んだ場合の暴露試験体の膨張率は予測値より高くなったと考えられる。このように仮定した膨張曲線が CPT の膨張曲線へのフィッティングに追従できないことは、骨材 A のような ASR 反応性の高い骨材特有の課題なのか、今後検証する必要がある。

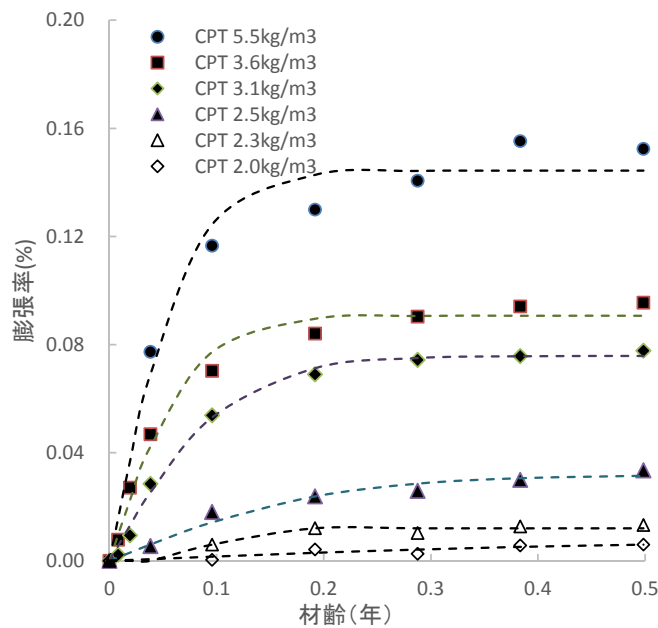


図 1.4-100 骨材 A を用いた配合での CTP 試験結果と膨張曲線へのフィッティング結果

## ②温度の違いが各パラメータに及ぼす影響

仮定した膨張曲線では、最終膨張量  $\varepsilon_{\infty}$  に対し、 $\tau C$ 、および  $\tau L$  は、それぞれ膨張開始の時間および膨張速度（傾き）を決めるパラメータである。前述の検討から、アルカリ総量が少ない場合には CTP 試験結果に比較的良好にフィッティングしたことから、暴露試験体でのアルカリ総量  $3.25\text{kg/m}^3$  と近い CPT A30/アルカリ総量  $3.1\text{kg/m}^3$  から得られた各パラメータを用いて予測を行い図 1.4-101 左に示す。予測膨張曲線は CPT アルカリ総量  $5.5\text{kg/m}^3$  を用いた図 1.4-99 と大きな差異は無く、暴露試験体が膨張を継続する傾向にあるのに対し予測では収束傾向にあり、これは、養生温度が  $60^{\circ}\text{C}$  と高い CTP では膨張が抑制されることを示している。この理由として、CPT における養生温度が高いと生成した ASR ゲルがペースト中に流れ出し特に反応性の高い骨材では十分な膨張が得られない可能性、CPT として用いた AAR-4 では試験期間中におけるアルカリの溶脱が指摘され膨張が抑制された可能性、また、用いた膨張温度依存性を補正する活性化パラメータ  $U_{\infty}$  の値が小さかった可能性が考えられる。各パラメータの温度およびアルカリ総量の補正は、既往の実験結果から導き出されたものであり、ばらつきが大きいことが指摘されている。そこで、先の検討から影響の大きいと考えられる最大膨張量  $\varepsilon_{\infty}$ 、および  $\tau L$  に着目し、暴露試験体の膨張曲線に合わせてこれらの値を任意に設定した場合について膨張曲線を図 1.4-101 右に示す。暴露試験体の膨張はよく表現できている。ここで、予測曲線では  $\tau C$  の補正は文献値 1) を用いているので、CPT 試験結果から適切な  $\varepsilon_{\infty}$  および  $\tau L$  を導き出すことができれば、実環境における ASR 膨張予測の精度を高めることができると考えられ、このためには、温度およびアルカリ総量の両者を変えた CTP のデータ蓄積が必要となる。

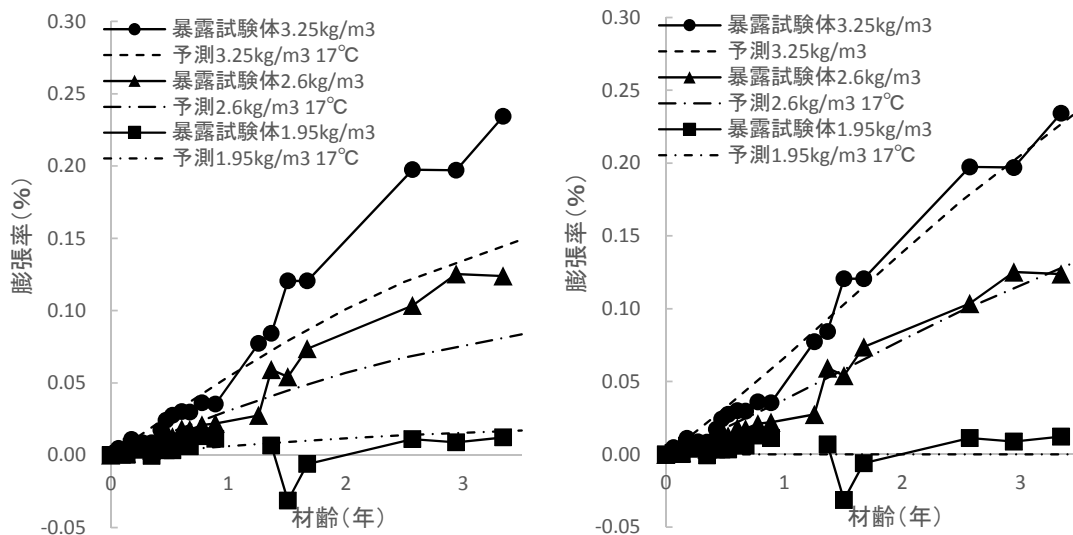


図 1.4-101 CPT A30(アルカリ総量  $3.1\text{kg/m}^3$ ) から得られた各パラメータを用いた膨張予測  
(左：パラメータ補正なし、右：パラメータ補正あり)

### (d) まとめ

ASR 膨張予測に用いるパラメータの影響を検討した結果、CTP における温度およびアルカリ総量の両者を変えたデータは少なく未だ課題は残るが、膨張パラメータの抽出および補正によっ

て膨張挙動を予測できると考えられた。CPT を活用した実環境での膨張挙動予測は耐久性のある構造物設計や、維持管理における JCI DD-2 のような促進膨張試験結果を用いた将来予測に活用可能と期待される。

## (5) まとめ

本項ではアルカリ骨材反応の観点から、焼却飛灰を長期間にわたり処分する際の課題を検討した。まず、本質的問題点を指摘し、現在の JIS の抑制対策の不備、すなわちアルカリ反応性検出の不確実性、抑制対策の有効期間が不明な点、信頼できる試験法の開発の必要性、高濃度塩水による ASR の可能性という新しい問題提起を行った。そして、それぞれの課題について、実験的検討を行った。

高濃度塩水の影響は、反応性の高い骨材では膨張を引き起こす可能性が分かったが、フライアッシュを使用することで抑制できることを示した。

骨材のアルカリ反応性試験に限界があることは 2013 年度の検討でも指摘してきたが、コンクリートの促進膨張試験により、その限界を克服できる可能性があることを示した。促進にはアルカリ量添加と温度増加があり得るが、双方が交互作用を有することを実験的に示した。とくに、アルカリが試験中に溶脱することが分かっており、これを防止できるアルカリラッピングが重要であることを示した。

将来予測については、いまだ不完全であるものの、暴露供試体の膨張挙動を予測できる可能性があることを示した。

## 1.4.5 コンクリートへの Cs 吸着と移動

### (1) 焼却飛灰への吸湿の定式化

焼却飛灰には高い潮解性を有する塩化カルシウムや塩化ナトリウム、塩化カリウムが含まれるため、これを雨水などの侵入防止対策を施した施設に長期保管したとしても、大気中からの吸湿によって放射性セシウムが飛灰から流出し、環境汚染を引き起こす可能性がある。このため焼却飛灰の吸湿速度を長期予測することは安全保管上重要な課題である。これまでの当該研究により、円筒形容器の上端のみが大気に暴露されているような 1 次元系での、一定温度、一定湿度条件下での焼却飛灰の正確な長期吸湿速度算定が明らかになった。しかしながらエアコンなしの環境下に置かれた直方体のフレコンパックに収納された焼却飛灰のような、時々刻々変化する温度、湿度環境下で、上面のみならず側面からも吸湿する 3 次元系複雑問題についての正確な長期吸湿速度算定法は未だ確立されていない。しかしながらこの算定法確立なくしては、実際の長期保管安全性を担保できない。ここでは、高度な専門能力を有する技術者により、時々刻々変化する温度、湿度環境下での 3 次元吸湿問題を実験的、理論的に考察し、その長期吸湿速度算定法を導出した。

### 1) 小型模擬フレコンを用いた 3 次元吸着実験

福島第一原発の事故によって広域に飛散した放射性セシウムの一部は、ごみ焼却飛灰中に濃縮蓄積されるため、放射性セシウムを含む焼却飛灰を長期安定保管することは喫緊の社会的課題となっている。一般のごみ焼却飛灰に含まれる有害無機物質は鉛などの重金属類が主となるが、これらはキレート処理などで不溶化処理できるので、処理後の飛灰を安全に埋めたて処分すること

ができる。しかしながら飛灰に放射性セシウムが含まれる場合、これは水溶性アルカリ金属塩であって通常の方法での不溶化処理が困難だから、その放射線量が基準値以上の場合、そのまま埋め立て処分することはできない。このため、長期にわたって安定保管するための特別な措置が必要となる。

放射性セシウムを不溶化処理しない場合、長期保管の際に問題になるのは飛灰への水の侵入である。一般に考えられる水の侵入経路は、洪水や保管する建屋の破損などに伴う外部からの経路と、大気と対象物の温度差に伴う結露である。しかしながら焼却飛灰には焼却時に発生する塩酸と中和剤である水酸化カルシウムとの反応で生じた、強い潮解性のある塩化カルシウム ( $\text{CaCl}_2$ ) が多量に含まれているため、飛灰を高湿度の大気に長期間曝露した場合、吸湿・潮解によって生じた放射性 Cs を含む水溶液が周囲に漏出し、放射能汚染を引き起こす可能性がある。また、漏出した溶液には多量の塩分が含まれているから、これが飛灰貯蔵施設のコンクリートに侵入し、コンクリートの劣化を引き起こす可能性もある。しかしながら焼却飛灰の吸湿挙動に関する研究例はない。

ごみ焼却にはストーカ式焼却炉と流動床式焼却炉が広く用いられている。そこから生じた焼却飛灰の組成例を表 1.4-26 に示す。いずれの焼却飛灰にも、高温で揮発性が高い塩化ナトリウム ( $\text{NaCl}$ ) や塩化カリウム ( $\text{KCl}$ )、塩酸と水酸化カルシウム ( $\text{Ca(OH)}_2$ ) の中和反応で生じる  $\text{CaCl}_2$  などの水溶性塩類が多量に含まれている。また、中和反応を逃れた  $\text{Ca(OH)}_2$  も多量に存在する。このため焼却飛灰からの漏出液は強いアルカリ性を示すこととなる。Cs は地殻中に 3ppm 程度、海水中に 0.4ppb 程度含まれる元素であって、その化合物の多くは水溶性かつ高温で揮発性が高い。このため焼却飛灰中には比較的少量の Cs が含まれることとなる。流動床炉飛灰には金属アルミニウムが含まれるため、そのアルミニウム含量はストーカ炉よりも高くなる。

焼却飛灰中に多量に存在する  $\text{CaCl}_2$  は市販乾燥剤でもあって、大気中の水分を急速に吸収して潮解し、大気湿度と同じ平衡水蒸気圧の溶液になろうとする。 $\text{NaCl}$  や  $\text{KCl}$  も高湿度の大気中では潮解性を示す。相対湿度と水分吸収量との関係を図 1.4-102 に示す。

表 1.4-26 焼却飛灰の組成例

含有元素	ストーカ炉飛灰 質量% (内、可溶成分)	流動床炉飛灰 質量% (内、可溶成分)
Ca	23.3 (8.5, $\text{CaCl}_2$ として 23.6)	21.3 (1.8, $\text{CaCl}_2$ として 5.0)
K	4.0 (3.6, $\text{KCl}$ として 6.8)	3.1 (1.8, $\text{KCl}$ として 3.4)
Na	3.2 (2.3, $\text{NaCl}$ として 5.8)	4.1 (1.9, $\text{NaCl}$ とし 5.8)
Cs	2.7ppm (1.7ppm)	
Cl	25.2 (19.5)	10.7 (7.0)
Al	2.3	5.5
Si	7.7	9.2

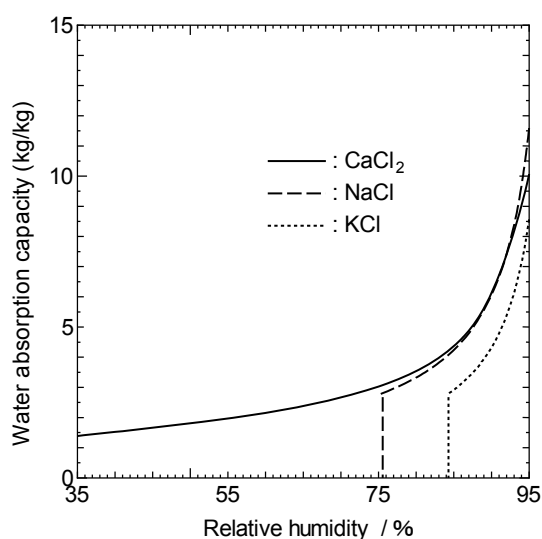


図 1.4-102 塩化カルシウム、塩化ナトリウム及び塩化カリウムの水分吸収量と湿度との関係

CaCl<sub>2</sub>の飽和水分吸収量は湿度 80%で自重の 3.5 倍、90%で自重の 5.7 倍になる。塩化ナトリウムや塩化カリウムは、単独では各々湿度 75%、85%以上でしか潮解性を示さないが、CaCl<sub>2</sub> 溶液に溶解した場合には、これ以下の湿度でも吸湿することになる。焼却飛灰が溶液を支えきれなくなると、飛灰から放射性セシウムが漏出することとなる。なお、これら塩類溶液からの水の蒸発の活性化エネルギーは純水からの蒸発の活性化エネルギーと大差無いため、塩類の飽和水分吸水量は相対湿度で決まってしまう、温度依存性をほとんど持たない。

以上述べたように、焼却飛灰を高湿状態で放置すると、吸湿によって放射性セシウムを含む高濃度塩水溶液が漏出し、これが放射能汚染や保管施設の損傷を引き起こす恐れがある。これを防ぐには、焼却飛灰の吸湿挙動を明らかにすることにより、吸湿量算定法を定式化する必要がある。本研究は上記目的を達成すべく行われた。

#### (a) 使用材料の調整

焼却飛灰本来の成分組成では、吸湿が CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl の 3 成分によって生じるため、吸湿現象の解析が複雑になる。よって以後の吸湿実験では、特に断らない限り、水洗して金属アルミニウムおよび可溶性塩類を取り除いた流動床炉飛灰に、CaCl<sub>2</sub> を 10%、20%、および 30% 添加したものをを用いた。必要に応じ、これにさらに NaCl、KCl を添加した。また、特に断らない限り、これらを断面積 13.4cm<sup>2</sup> のメスシリンダーに充填し、恒温恒湿槽内でメスシリンダーの開口部から吸湿させた。吸湿面とメスシリンダー上端との距離が 1cm 以内となるよう、メスシリンダーの長さを調節した。吸湿後の試料の質量を測定し、吸湿量を決定した。長期間にわたる飛灰の吸湿挙動を知るには、50℃、湿度 90%の加速条件を採用した。

焼却飛灰中の水分含量は 230℃乾燥前後の試料の質量変化から、Ca<sup>2+</sup>イオン含量は BT 指示薬を用いた焼却飛灰洗浄液の EDTA 滴定で、Cl<sup>-</sup>イオン含量はクロム酸カリウム指示薬とした硝酸銀滴定で、K<sup>+</sup>の含量はテトラフェニルホウ酸ナトリウムを沈殿剤とした質量法で求めた。濾液中の Ca<sup>2+</sup>、K<sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、および Cl<sup>-</sup>イオンが CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl の形でのみ存在すると近似すると、これらの値から焼却飛灰中の CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl 含量が定まる。

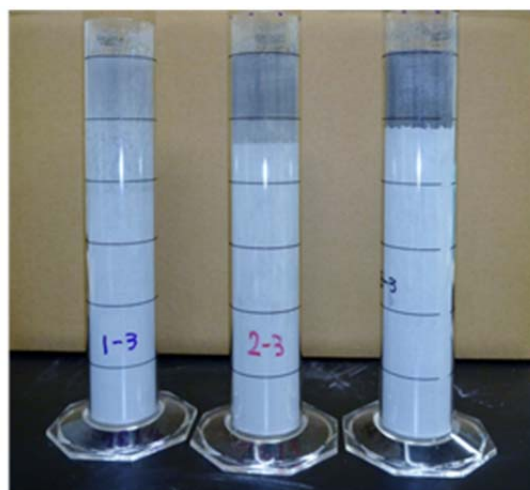
CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl 混合水溶液の平衡水蒸気圧は、1g の CaCl<sub>2</sub> に所定の NaCl、KCl を加えたシ



ヤーレを質量が一定になるまで恒温恒湿槽内に置いて求めた。

### (b) 加速条件下での吸湿挙動

焼却飛灰の安全保管期間は 100 年の長きに及ぶため、その吸湿挙動の全体像を知るため、10%、20%、30%の  $\text{CaCl}_2$  を含む焼却飛灰をかき密度 0.9 でメスシリンダーに 100mL、200mL、300mL 詰め、50℃、90%RH の加速条件下で吸湿させた。その際の試料の状態を図 1.4-103 に示す。焼却飛灰に吸収された水分によって上部に黒色の湿潤帯が生じている。その際の吸湿量の時間変化を図 1.4-104 に示す。吸湿速度は  $\text{CaCl}_2$  濃度に依存するが、吸湿量が飽和に近づかない限り、焼却飛灰の初期充填量には依存せず、吸湿初期を除きほぼ (時間)<sup>1/2</sup> 則に従う。湿潤帯の幅も、その先端が容器の底に接近するまでは、焼却飛灰の充填量には依存せず、ほぼ (時間)<sup>1/2</sup> 則に従って増大する。飛灰の吸湿量、湿潤帯幅が共に (時間)<sup>1/2</sup> 則に従うことより、湿潤帯が飛灰の底に達するまでは、湿潤帯内の単位体積あたり平均水分濃度はほぼ一定に保たれていることが推論される。湿潤帯内での  $\text{CaCl}_2$  溶液の平均濃度を見積もると、 $\text{CaCl}_2$  含量や充填量にかかわらずほぼ 40~50% となるが、これは飽和  $\text{CaCl}_2$  溶液の濃度に近い。湿潤帯が飛灰の底に達したのちは、湿潤帯内の  $\text{CaCl}_2$  濃度は吸湿と共に低下するため、吸湿速度が減じるものと予想されたが、吸湿が飽和に近づいた試料を除き、湿潤帯が容器の底に達した後も、吸湿量は (時間)<sup>1/2</sup> 則に従った。吸湿量の増加によって飛灰中の  $\text{CaCl}_2$  溶液の濃度が低下し、その湿度での  $\text{CaCl}_2$  の平衡濃度に達すると、吸湿は停止する。よって吸湿量が平衡濃度で定まる最大値に近づくにつれ、吸湿速度は低下することとなる。吸湿速度の低下は、10%の  $\text{CaCl}_2$  を含む飛灰 100mL を吸湿させた場合に観測される。この飛灰の湿度 90%での飽和吸水量は  $3.7\text{g}/\text{cm}^2$  ( $\text{CaCl}_2$  溶液の濃度としては 15%) となるが、図から分かるように、吸湿速度は  $2\text{g}/\text{cm}^2$  を過ぎたあたりから低下し始める。吸水量が飽和値の 2/3 に達するのに要する時間  $t$  は、吸湿量が (時間)<sup>1/2</sup> 則に完全に従うとすると  $t^{1/2}=24$  となるが、これは実測値  $t^{1/2}=27.5$  と大差ないので、吸湿量が飽和値の約 2/3 に近づくまでは、吸湿量は (時間)<sup>1/2</sup> 則に従うとして良い。



$\text{CaCl}_2 = 10\% \quad 20\% \quad 30\%$

図 1.4-103 加湿中の焼却飛灰に観測される湿潤帯

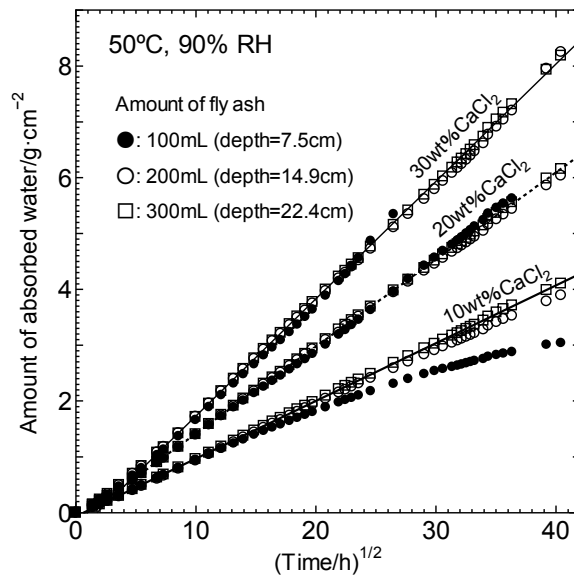
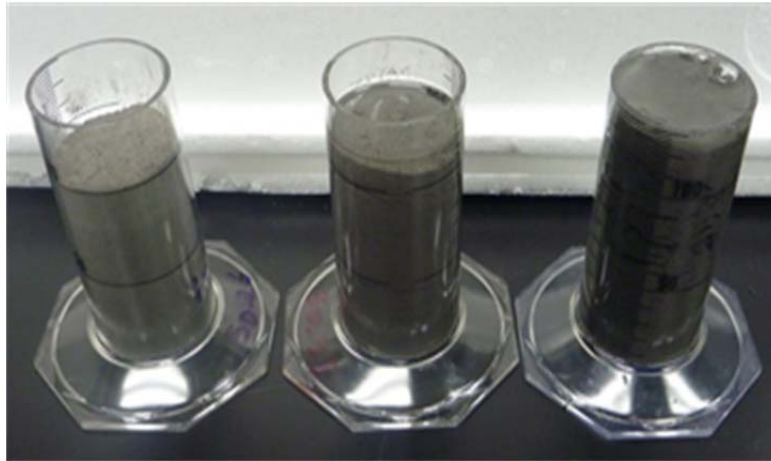


図 1.4-104 焼却飛灰吸湿量の時間依存性

焼却飛灰 100mL 入りの試料では、図 1.4-105 に示すように、 $\text{CaCl}_2=20\%$  試料では 1000 時間後、 $\text{CaCl}_2=30\%$  の試料では 600 時間後に固液分離による焼却飛灰からの溶液の漏出が生じた。吸湿量は、漏出が生じるまで (時間)<sup>1/2</sup> 則に従った。固液分離時の吸湿量と飛灰の空隙率、溶液体積との関係を表 1.4-27 に示す。漏出時の溶液体積が焼却飛灰の不溶性成分が作る空隙の体積に等しいことより、 $\text{CaCl}_2$  水溶液が空隙を完全に満たすと固液分離が生じ、飛灰からの溶液漏出が始まる、すなわち

$$(\text{吸湿で生じた水溶液の体積}) > (\text{飛灰中の非水溶性成分が作る空隙の体積}) \quad (1)$$

の関係が成り立つと、飛灰からの溶液流出が始まることがわかる。例えば空隙率=60%、湿度=80%では、 $\text{CaCl}_2$  含量  $> 0.14\text{g}/\text{cm}^3$  でいつかは溶液漏出が起こるが、同じ条件でも  $\text{CaCl}_2$  含量  $< 0.14\text{g}/\text{cm}^3$  なら、いつまでたっても漏出は生じない。一定湿度において漏出を起こすのに必要な  $\text{CaCl}_2$  量と空隙率との関係を図 1.4-106 に示す。



CaCl<sub>2</sub> 濃度 = 10%                      20%                      30%

図 1.4-105 吸湿による焼却飛灰からの溶液漏出に対する CaCl<sub>2</sub> 濃度の効果  
飛灰容積 = 100mL、50°C、90%RH で 1000 時間後の状態

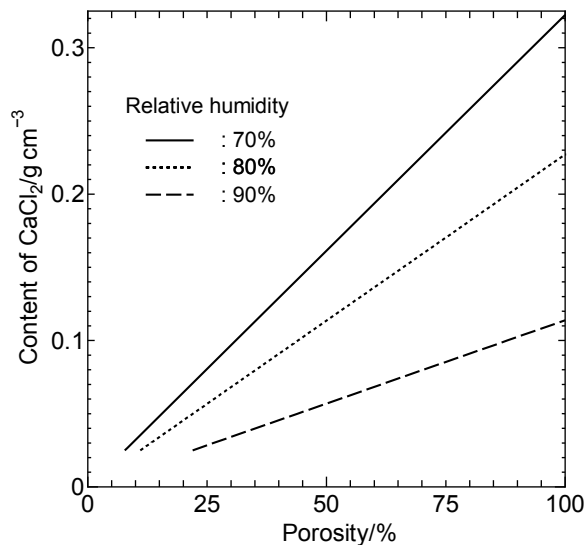


図 1.4-106 焼却飛灰からの Cs 流出が生じるのに必要な CaCl<sub>2</sub> 含量と空隙率の関係

表 1.4-27 体積 100mL の飛灰から固液分離が始まるときの吸湿量と焼却飛灰中の非水溶性成分  
が作る空隙の空隙率との関係

CaCl <sub>2</sub> 含量	かさ密度	空隙率	吸湿量	CaCl <sub>2</sub> 濃度	溶液体積	対空隙比
20%	0.90 g/cm <sup>3</sup>	68%	0.65 g/cm <sup>3</sup>	21.7 %	0.69 cm <sup>3</sup>	1.06
30%	0.90 g/cm <sup>3</sup>	72%	0.72 g/cm <sup>3</sup>	27.3 %	0.78 cm <sup>3</sup>	1.08

吸湿過程を明らかにすべく、2000 時間加湿後の飛灰の吸湿量と CaCl<sub>2</sub> 含量の深さ分布を測定した。図 1.4-107 に示すように、いずれの試料も、吸湿後の CaCl<sub>2</sub> 含量は下に行くほど濃くなることから、上から下への CaCl<sub>2</sub> 溶液の移動が生じていることが分かる。このことは、吸湿で生じた CaCl<sub>2</sub>

溶液が毛管吸引（+重力）で下部に移動することを示している。毛管吸引だけで溶液移動が生じるのなら、飛灰表面の含量は極めて低濃度になるはずだが、200mL 試料で初期値の 1/2、300mL 試料で初期値の 1/3 程度にしか減していない。これは下部への水分移動については、毛管吸引だけでなく溶液からの蒸発移動も寄与していることを示している。以上、吸湿は飛灰表面近傍で起きており、生じた溶液の水分は再蒸発によって飛灰内部に輸送されるとともに、溶液の一部は毛管吸引によっても内部に輸送されるものと結論される。

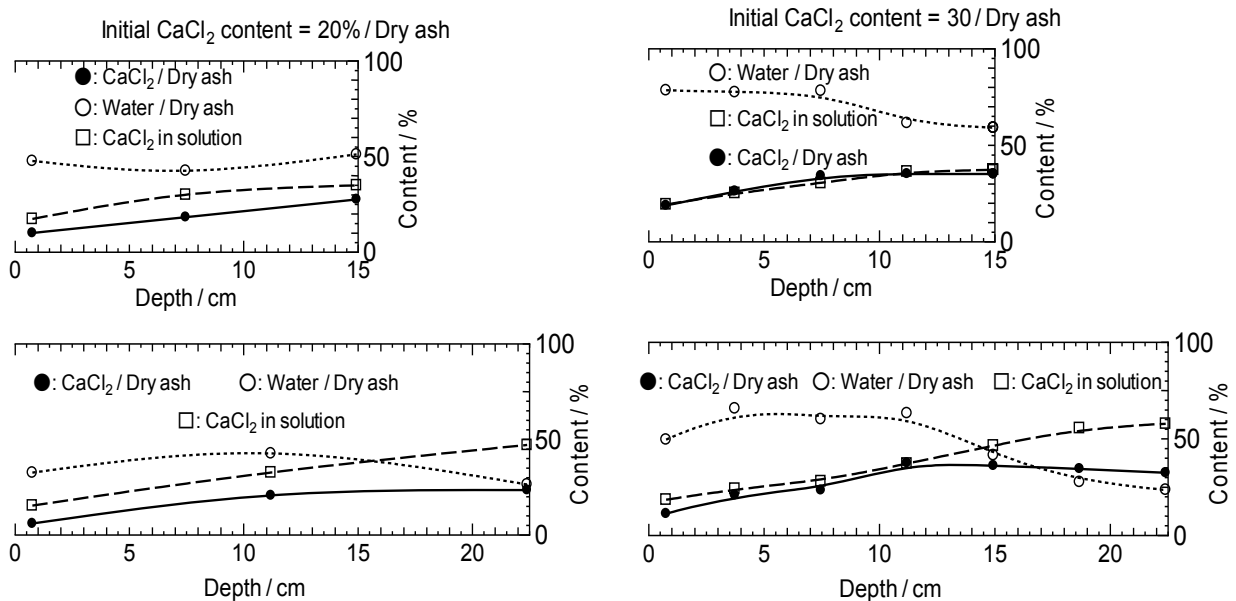


図 1.4-107 2000 時間加湿した焼却飛灰中の  $\text{CaCl}_2$  と水の空間分布

### (c) 種々の高温高湿条件下での吸湿速度

焼却飛灰は様々な温度、湿度条件にさらされるから、焼却飛灰からの流失時期を予測するには、吸湿速度に対する温度および湿度の影響を正確に知る必要がある。そのためには同じ組成を持つ試料について各温度、湿度における吸湿速度を測定することが必要となるが、試料のかさ密度（空隙率）は正確に制御することが困難である。メスシリンダーに入れた  $\text{CaCl}_2$  含量 30% の試料を振盪してかさ密度を 0.9 から 1.14 に変え、その吸湿速度を測定した。しかしながら図 1.4-108 に示すように、その吸湿速度はほとんど変化しなかった。空隙率の低下に伴う水蒸気の実効拡散係数の低下による吸湿減速と、体積あたりの  $\text{CaCl}_2$  濃度の増加による吸湿加速が互いに打ち消し合うため、実験範囲内ではかさ密度が吸湿速度にほとんど影響を与えなかったものと考えられる。

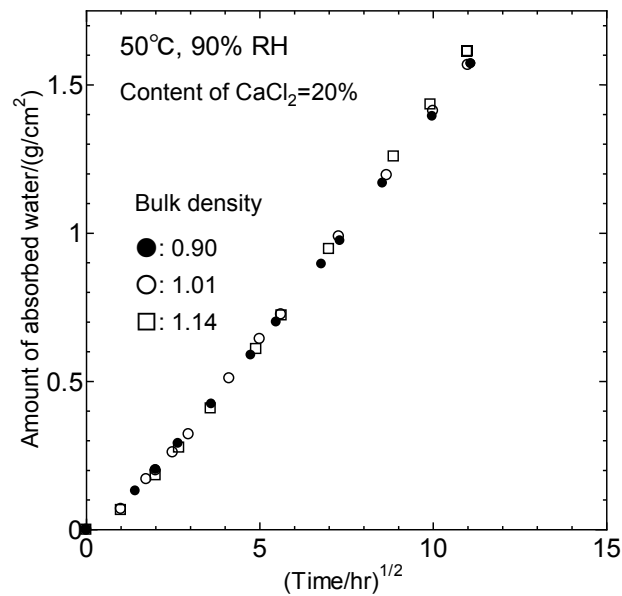


図 1.4-108 吸湿速度に及ぼすかさ密度の影響

吸湿速度に対するかさ密度の影響は重要ではないので、CaCl<sub>2</sub>濃度 10%、20%、30%の試料のかさ密度を 1 前後に調整し、温度 10℃、20℃、30℃、40℃、相対湿度 50%、70%、90%の一定温度、湿度条件下で吸湿速度を測定した。その結果を図 1.4-109～図 1.4-111 に示す。いずれの温度でも、吸湿初期を除き（時間）<sup>1/2</sup> 則すなわち単位断面積あたりの吸湿量を  $w$ 、吸湿速度定数を  $k$ 、吸湿時間を  $t$  とすると、

$$w = (kt)^{1/2} \quad (2)$$

が成立することがわかる。得られた速度定数を表 3 に示す。一定湿度における各温度での速度定数を絶対温度の逆数の関数としてアレニウスプロットすると、図 1.4-112 に示すように、活性化エネルギー項 4880 を有する直線となる。この値は CaCl<sub>2</sub> からの水の蒸発の活性化エネルギー項 5280 に近いことより、飛灰表層で吸収された水分が蒸発によって飛灰内部に移動する過程が吸湿速度を律速していることが結論される。

焼却飛灰の水蒸気吸収速度が吸湿を律速するとすれば、吸湿の速度定数は水蒸気圧に比例することになり、温度一定の場合には相対湿度に比例することになる。しかしながら、図 1.4-113 に示すように、吸湿速度定数は湿度のほぼ 3.4 乗に比例している。これもまた、吸湿の律速過程が大気からの水蒸気吸湿ではないことを示している。図 1.4-112、図 1.4-113 より、焼却飛灰の吸湿速度定数は近似式

$$k \approx C_0 RH^{3.4} \exp(-4880/T) \quad [C_0 \text{ は定数、} RH \text{ は湿度、} T \text{ は絶対温度}] \quad (3)$$

で与えられることが結論される。表 1.4-28 に実測値と(3)式で与えられる近似値を比較した。後述するように、この関係は NaCl や KCl が混入した飛灰でも成立する。

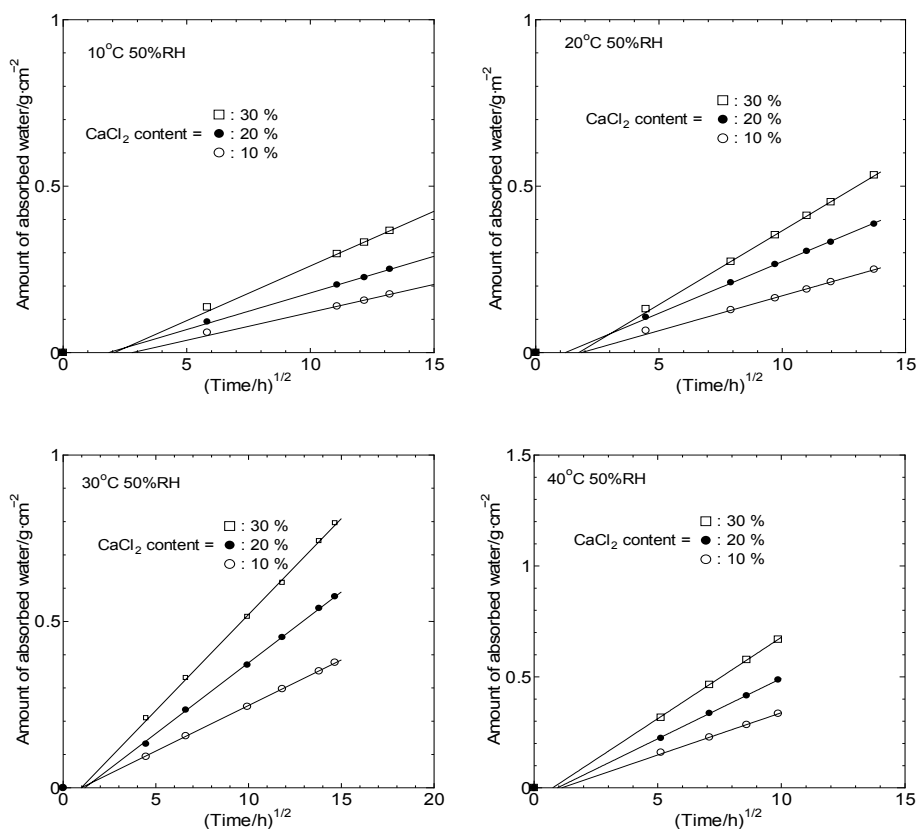


図 1.4-109 相対湿度 50%での焼却飛灰の吸湿速度

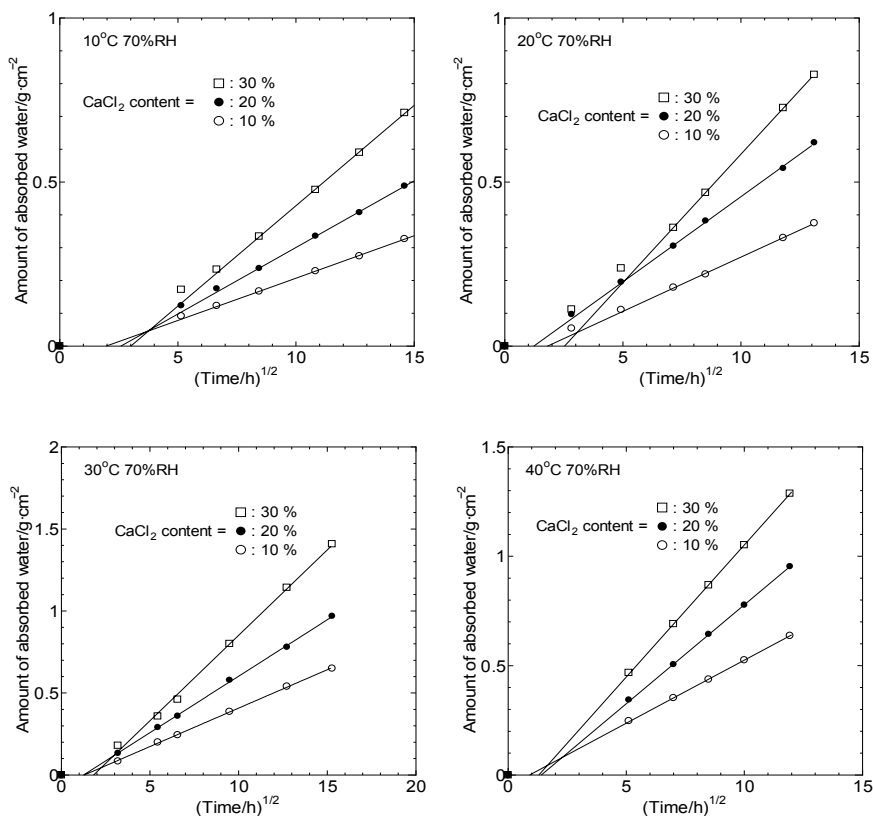


図 1.4-110 相対湿度 70%での焼却飛灰の吸湿速度

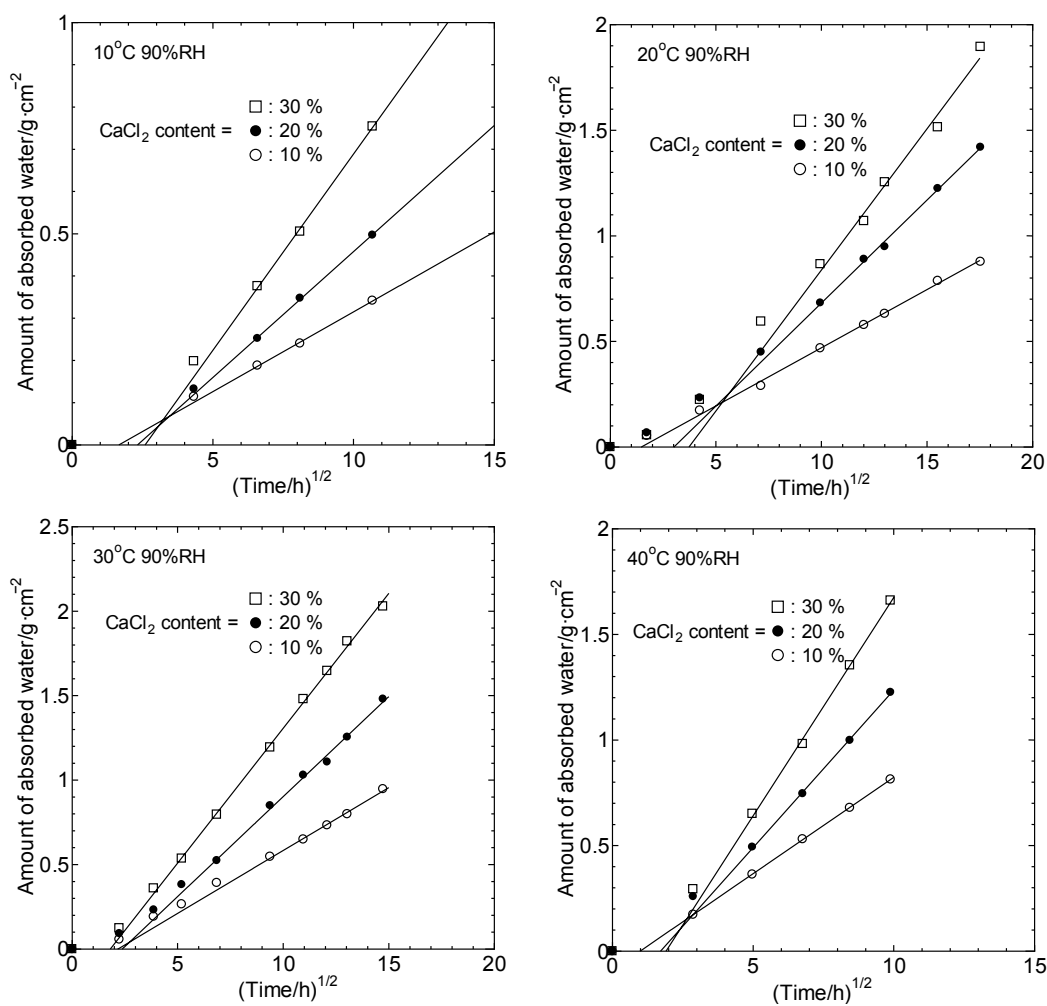


図 1.4-111 相対湿度 90%での焼却飛灰の吸湿速度

表 1.4-28 実測吸湿速度定数および近似式 (3) で得られる速度定数

CaCl <sub>2</sub> content	10wt%		20wt%		30wt%	
	Observed	Approximated	Observed	Approximated	Observed	Approximated
10°C 50%RH	0.00028	0.00022	0.00048	0.00054	0.00108	0.00109
10°C 70%RH	0.00067	0.00070	0.00164	0.00168	0.00374	0.00343
10°C 90%RH	0.00143	0.00016	0.00356	0.00396	0.00865	0.00806
20°C 50%RH	0.00044	0.00040	0.00096	0.00097	0.00196	0.00197
20°C 70%RH	0.00110	0.00126	0.00270	0.00303	0.00613	0.00618
20°C 90%RH	0.00303	0.00296	0.00951	0.00712	0.01788	0.01452
30°C 50%RH	0.00075	0.00069	0.00181	0.00167	0.00326	0.00341
30°C 70%RH	0.00219	0.00218	0.00473	0.00525	0.01084	0.01070
30°C 90%RH	0.00554	0.00512	0.01400	0.01233	0.02460	0.02514
40°C 50%RH	0.00145	0.00116	0.00297	0.00279	0.00538	0.00570
40°C 70%RH	0.00334	0.00364	0.00820	0.00877	0.01463	0.01789
40°C 90%RH	0.00834	0.00856	0.02226	0.02062	0.04284	0.04204

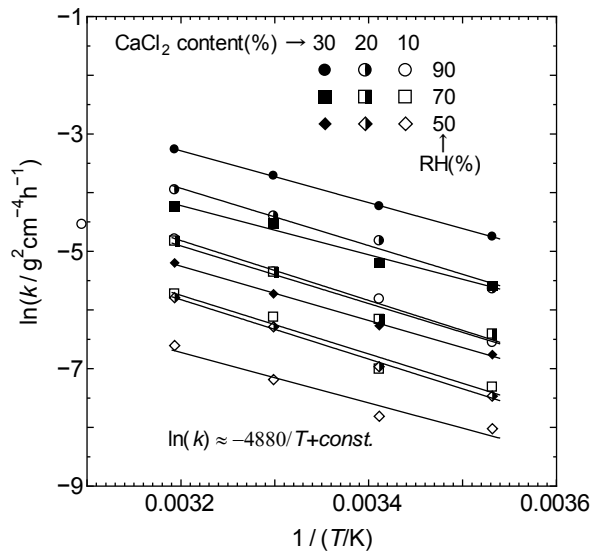


図 1.4-112 吸湿速度定数の温度依存性

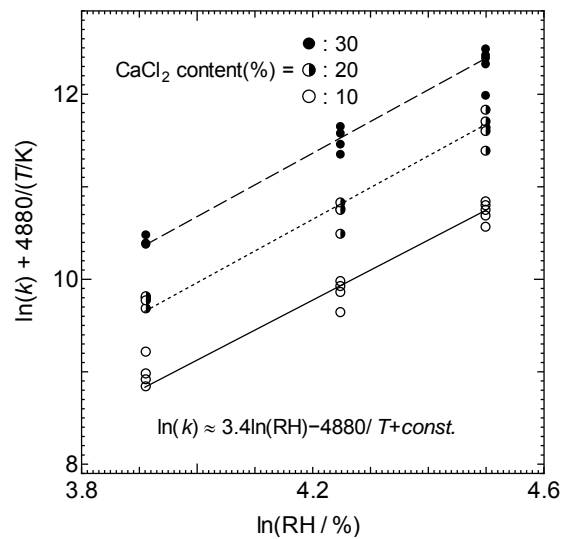


図 1.4-113 吸湿速度定数の湿度依存性

#### (d) 温度、湿度変動時の吸湿挙動

焼却飛灰と接する大気湿度や温度は時と共に変化するため、吸湿速度定数もまた変化する。20%の  $\text{CaCl}_2$  を含む焼却飛灰 200mL の吸湿時の条件を温度  $20^\circ\text{C}$  および  $30^\circ\text{C}$ 、湿度 70% および 90% で変動させた際の吸湿量変化を図 1.4-114 に示す。湿度を下げると焼却飛灰からの水分蒸発により飛灰の質量が減ることより、焼却飛灰表面層の  $\text{CaCl}_2$  溶液濃度は外気湿度との平衡濃度になっていることがわかる。湿度を下げると一部脱水し、平衡濃度に達した後は、表面層から内部の未平衡層への水分移動分だけ表面層が吸湿する結果、質量増加が再開することになる。図の直線部分から求めた各温度湿度での吸湿速度定数は、湿度を下げた場合には一定温度・湿度での値よりも低く、上げた場合には逆に高くなる。この減速効果と加速効果が互いに打ち消しあうため、湿度が変動した場合においても近似的に(3)式が成立することが期待される。すなわち時刻  $t$  における単位断面あたりでの吸湿量を  $w(t)$ 、一定温湿度条件で求めた吸湿速度定数を  $k(t)$ 、湿度を  $RH(t)$ 、絶対温度を  $T(t)$  とすると、

$$w(t) \approx \left[ \int_0^t k(t) dt \right]^{1/2} \approx \left[ \int_0^t C_0 [RH(t)]^{3.4} \exp[-4880/T(t)] dt \right]^{1/2} \quad (4)$$

が成立することが期待される。図 1.4-114 に計算値と実測値の比較を示す。両者はよく一致している。

図 1.4-114 に示すように、吸湿条件を変えた後に吸湿速度が恒温恒湿条件下での値に達するのに要する時間は、吸湿が進むにつれて増加する。このことは、吸湿が進行すると、吸湿速度は温度、湿度の平均値に支配されるようになることを示している。実際、図 1.4-115 に示すように、温度と湿度を 1 日周期で変化させた場合の吸湿量増加は (時間)<sup>1/2</sup> に従うようになり、その吸湿速度定数  $k=0.0372$  は、(4)式から得られる 1 周期当たりの平均値 0.0356 とほぼ一致する。



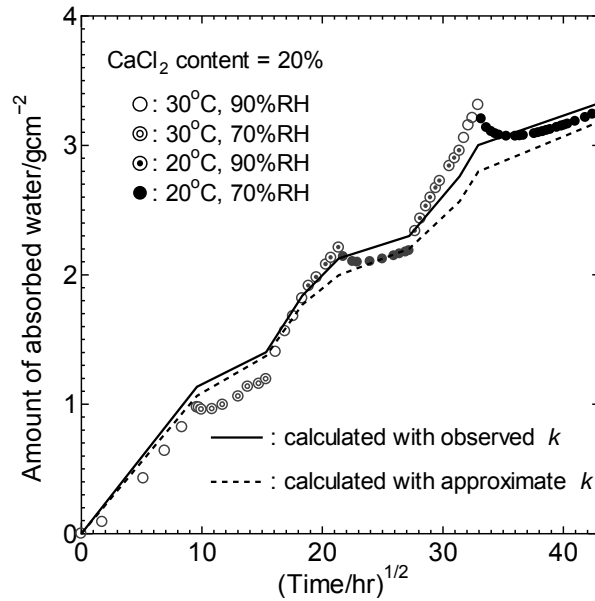


図 1.4-114 温度、湿度が変化した際の吸湿量の実測値と計算値の比較

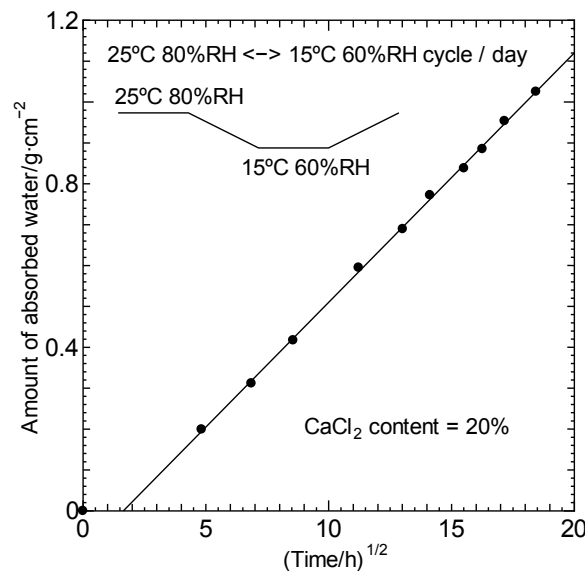


図 1.4-115 温度と湿度を周期的に変えた際の吸湿量の実際値

### (e) 焼却飛灰の吸湿メカニズム

飛灰の吸湿速度には水蒸気の飛灰内部への拡散と凝縮、飛灰内での水の再蒸発と凝縮、及び毛细管現象などによる溶液の飛灰内移動が影響を与えるため、吸湿メカニズムを定量的に明らかにすることは容易でない。しかしながら定性的には図 1.4-116 のようなメカニズムで吸湿が進行すると考えられる。すなわち大気中の水蒸気は、飛灰上部にある湿度と平衡溶液濃度に達している層を拡散して吸湿層まで拡散し、 $\text{CaCl}_2$  あるいはその溶液に吸収され、湿度と平衡濃度の溶液を作る。溶液の水分は再蒸発して飛灰下部の未平衡濃度層に移動する。溶液はまた毛细管吸引（+重力）によって飛灰下部に移動する。飛灰上部の吸湿平衡層や吸湿剤の溶解によって生じた湿潤帯の厚さはこのようにして成長する。湿潤帯が飛灰の底に達した後は、吸収される水分はすべて飛灰内空隙を埋めるのに使われるが、空隙が溶液ですべて埋めつくされると溶液漏出が始まる。

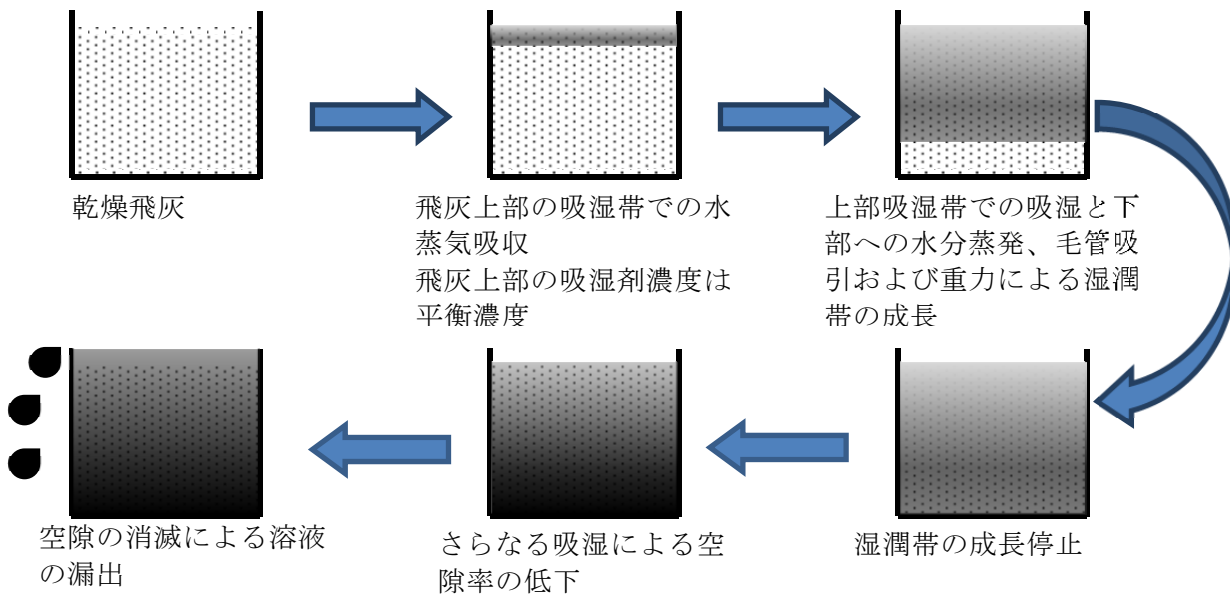


図 1.4-117 焼却飛灰の吸湿メカニズム

(f) 初期吸水の影響

焼却飛灰は微粉末なので、飛散防止のため 20%~30%の水を添加した後に保管する 경우가多いが、この水量は飛灰に含まれる  $\text{CaCl}_2$  と同量程度となる。そこで飛灰に  $\text{CaCl}_2$  に対して 1/2 量および等量の水を加えた焼却飛灰と吸水無しの焼却飛灰の吸湿速度を比較したところ、図 1.4-118 に示すように、吸水試料もまた (時間)<sup>1/2</sup> 則に従い、吸湿速度は吸水無しの場合より僅かに低くなるものの、吸水無しの場合とさほど変わらなかった。 $\text{CaCl}_2$  に等量の水を加えて生じる溶液は  $\text{CaCl}_2$  飽和溶液に近いので、その吸湿能が粉末  $\text{CaCl}_2$  とほとんど変わらないことによるのであろう。

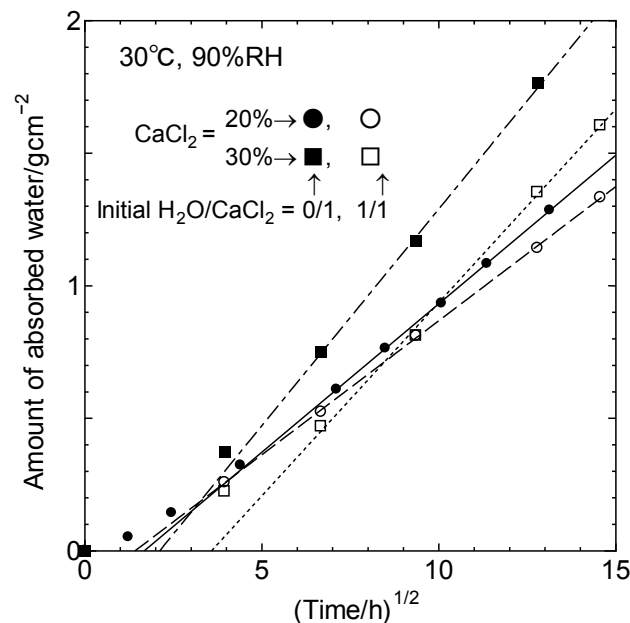


図 1.4-118 吸湿速度に及ぼす初期吸水の影響

**(g) NaCl、KCl の影響**

焼却飛灰に含まれている NaCl や KCl は、その吸湿能力は CaCl<sub>2</sub> よりも低いものの、吸湿による放射性 Cs の漏出に寄与する。CaCl<sub>2</sub>に加えて NaCl と KCl を混入した飛灰の吸湿挙動を図 1.4-120 に示す。NaCl や KCl を多量に含んでいる飛灰においても(3)式が成り立つことがわかる。吸湿速度定数の湿度依存性も、CaCl<sub>2</sub> のみの場合と同様、(湿度)<sup>3.4</sup> で表現されることが分かる。湿度 90% での吸湿速度定数をアレニウスプロットすると、図 1.4-120 に示すように、CaCl<sub>2</sub> のみの場合と同様、活性化エネルギー項として 4880 が求まる。これより、焼却飛灰に NaCl や KCl が混合している場合にも吸湿量の時間変化を与える方程式として(4)式が適用できることが結論される。

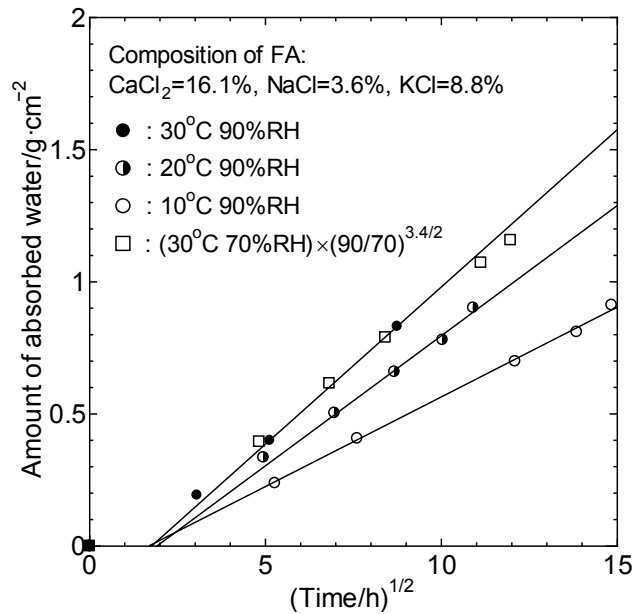


図 1.4-119 CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl を含む焼却飛灰の吸湿速度

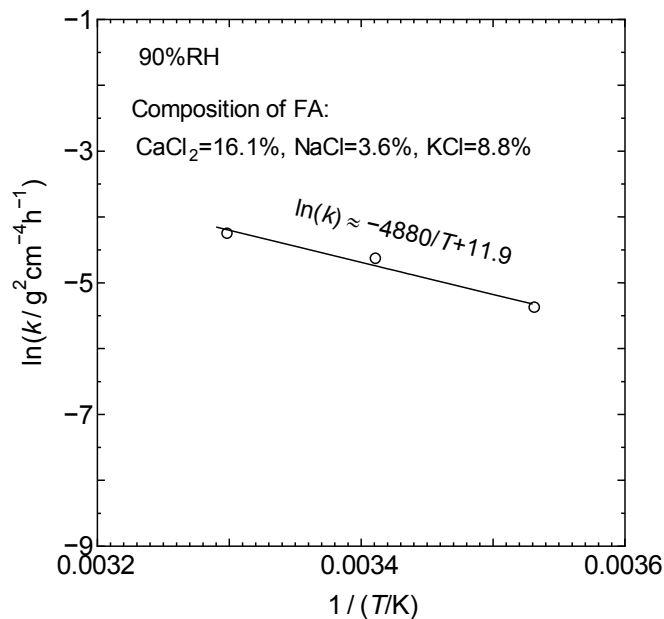


図 1.4-120 CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl を含む焼却飛灰の吸湿速度定数の温度依存性

表 1.4-29 CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl 固体混合物を恒温恒湿条件に置いた際の飽和吸水量

Feed			H <sub>2</sub> O absorbed/g					
CaCl <sub>2</sub> / g	NaCl/g	KCl/g	25°C, 50%	25°C, 60%	25°C, 70%	15°C, 70%	25°C, 80%	25°C, 90%
1.00	0.00	0.00	1.79	2.09	2.62	2.65	3.46	5.59
1.00	0.20	0.00	1.84	2.32	3.20	3.23	4.30	6.46
1.00	0.40	0.00	1.88	2.32	3.66	3.47	4.80	7.58
1.00	0.70	0.00	1.84	2.30	3.96	3.47	5.64	8.96
1.00	0.00	0.20	1.80	2.26	2.94	2.81	3.72	5.78
1.00	0.20	0.20	1.91	2.48	3.30	3.23	4.31	6.44
1.00	0.40	0.20	1.88	2.52	3.82	3.59	5.04	7.52
1.00	0.69	0.20	1.87	2.50	4.33	4.02	5.93	9.26
1.00	0.00	0.40	1.88	2.26	3.06	2.97	4.22	6.20
1.00	0.20	0.40	1.88	2.52	3.64	3.37	4.88	7.18
1.00	0.40	0.40	1.88	2.46	4.06	3.85	5.62	9.10
1.00	0.70	0.40	1.87	2.48	4.69	4.48	6.60	10.48
1.00	0.00	0.70	1.84	2.24	3.06	2.99	4.86	7.42
1.00	0.20	0.70	1.90	2.50	3.86	3.59	5.48	8.72
1.00	0.40	0.72	1.86	2.56	4.26	4.01	6.14	10.30
1.00	0.70	0.70	1.90	2.48	4.92	4.53	6.90	10.82

CaCl<sub>2</sub> 存在下での NaCl、KCl の吸水能を知るため、CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl 混合系での 25°C、湿度 50%、60%、70%、80%、90%、および 15°C 湿度 70%における飽和吸水量を測定した。

その結果を表 1.4-29 に示す。NaCl、KCl は、単独では各々湿度 75%、85%以上でしか吸湿能を示さないが、CaCl<sub>2</sub> が湿度 75%以下でも吸湿するので、この結果生じた CaCl<sub>2</sub> 溶液に NaCl、KCl の一部または全部が溶解することにより溶液の吸湿能が増加する結果、NaCl、KCl は湿度 75%以下でも吸湿可能となる。CaCl<sub>2</sub> 溶液の吸湿能は一般に相対湿度のみで決まり、ほとんど温度依存性を持たない。混合塩系での 15°C の吸湿能が 25°C のそれよりも低下するのは、温度低下により NaCl や KCl の溶解度が低下するためである。

CaCl<sub>2</sub>、NaCl、KCl 混合系において、ある湿度で 1g の NaCl、KCl が CaCl<sub>2</sub> 各々  $ag$ 、 $bg$  に相当するものとすれば、NaCl や KCl の吸湿能を定量的に表現出来る。この場合、CaCl<sub>2</sub> のみが存在する場合の CaCl<sub>2</sub> 1g 当たりの飽和吸水量を  $S_c$ g、CaCl<sub>2</sub> 1g に対する NaCl、KCl の質量を各々  $xg$ 、 $yg$  とすれば、混合系での飽和吸水量  $S$  は

$$S = (1 + ax + by)S_c \quad (5)$$

で与えられることとなる。実際には溶液中に NaCl、KCl の溶け残りが生じる場合があるので、(5) 式の適用範囲には制約があるが、図 1.4-121 に示すように、湿度が 50%から 90%、CaCl<sub>2</sub> に対する NaCl、KCl の割合が 0 から 0.7 の範囲では、(5) 式の関係が近似的に成立していることが分かる。

日本の年間平均湿度は 70%の程度だが、そこでの  $a$ 、 $b$  の値は各々 0.85、0.45 となるから、CaCl<sub>2</sub> の共存下では、NaCl はおよそ CaCl<sub>2</sub> と同程度、KCl は CaCl<sub>2</sub> の半分程度の吸湿能力があると言える。

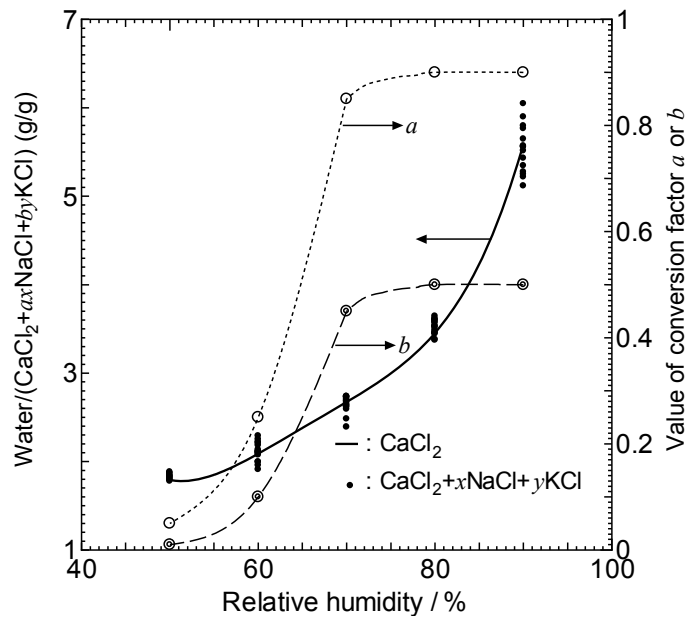


図 1.4-121  $\text{CaCl}_2$ 、 $\text{NaCl}$ 、 $\text{KCl}$  共存系の吸水能と  $\text{NaCl}$ 、 $\text{KCl}$  の  $\text{CaCl}_2$  への換算係数

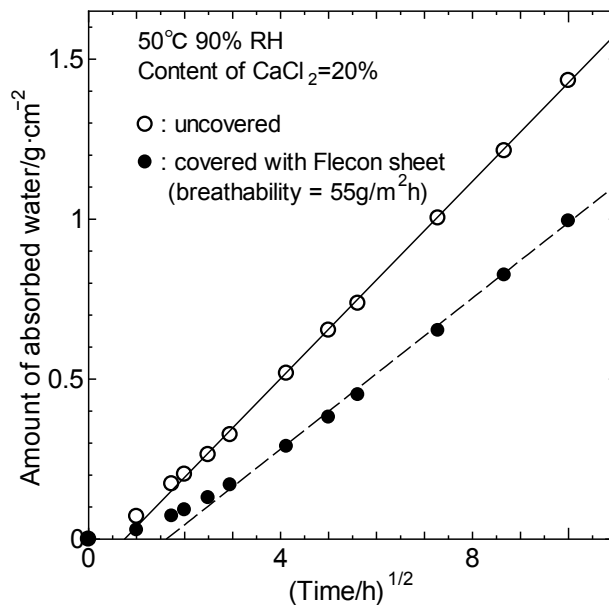


図 1.4-122 吸湿速度に及ぼす表面被覆の効果

#### (h) 表面被覆の影響

焼却飛灰の多くはポリプロレン性のフレキシブルコンテナ（通称フレコン）に入れて保管されている。フレコンは通気阻害性があるため、焼却飛灰の吸湿を妨げる効果がある。焼却飛灰の大気接触面を透湿性  $55\text{g}/\text{m}^2\text{h}$  のフレコンシートで覆って吸湿させた結果を図 1.4-122 に示す。吸湿速度定数は 58% 程度にしか減少しないことが分かる。焼却飛灰の吸湿は、平衡濃度に達した  $\text{CaCl}_2$  溶液を含む通気性の悪い焼却飛灰層を通して水蒸気が未平衡濃度の  $\text{CaCl}_2$  溶液を含む焼却飛灰層に達した時に生じるから、フレコンシートの通気性が少々悪くても吸湿速度はそれほど低下しないものと考えられる。

**(i) 飛灰質量の影響**

吸湿による飛灰からの溶液漏出は、飛灰中の非水溶性成分が作る空隙を吸湿で生じた溶液が埋め尽くした時点から開始する。このため飛灰の溶液保持容量は飛灰からの溶液漏出時期を支配する重要な因子である。飛灰が少量である場合には、溶液保持容量は飛灰の初期空隙率から見積もることができるが、飛灰の質量が増えると、吸湿に伴う質量増加によって飛灰が圧縮され、空隙率が減少することが予想される。そこで水洗乾燥した比重 2.28 の飛灰に比重 1.15 の 17%CaCl<sub>2</sub> 水溶液を当量加えて攪拌し泥状物を作り、これに振動を加えて気泡を除いた後、ルツボ式ガラスろ過器に入れて一定質量になるまで一定圧力で吸引し、単位体積の不溶性飛灰が保持できる水溶液の体積を求めた。CaCl<sub>2</sub> 水溶液を使用したのは、飛灰からの Ca(OH)<sub>2</sub> の溶出を防ぐためである。洗浄飛灰の真比重を  $\rho_F$ 、水溶液の比重を  $\rho_S$ 、泥状飛灰の初期質量を  $x_0$ 、一定質量になった後の質量を  $x$  とすると、単位体積の飛灰が保持できる水溶液の体積  $y$  は以下の式で与えられる。

$$y = \frac{(2x - x_0) / \rho_S}{x_0 / \rho_F} \tag{6}$$

測定結果を図 1.4-123 に示す。フレコンに入っている飛灰の高さは 100cm 程度であり、漏出直前の飛灰の比重は 1.5 の程度だから、飛灰の底には 150g/cm<sup>2</sup> 程度の圧力がかかる。この圧力のもとでは飛灰はその体積の 1.58 倍の体積の溶液を保持できる。飛灰にかかる圧力は上に行くほど低くなるから、飛灰全体として保持できる溶液体積は、これよりも大きいことになる。

上記の実験とは別に、同じ泥状飛灰を下端に 50 メッシュのステンレス製金網を付けた内径 2.99cm、高さ 100cm のアクリルパイプに高さ 90cm 程度になるまで流し込み、下端から出た水溶液の質量を全質量から差し引くことにより、自重による圧力のもとでの飛灰の水溶液保持容量を求めた。その結果も図 1.4-123 に示す。

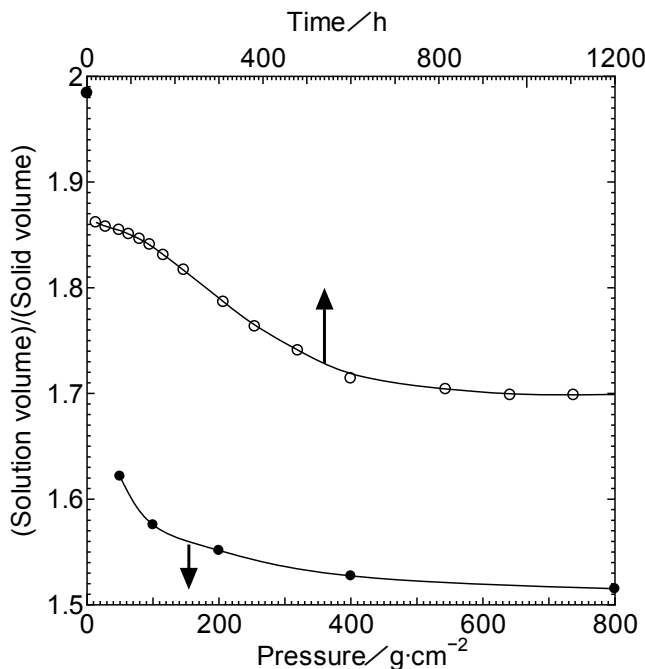


図 1.4-123 加圧下での飛灰の溶液保持容量の時間変化及び圧力依存性

アクリルパイプ底面からの溶液漏出は 1000 時間程度経つと停止し、パイプ内の飛灰の質量は一定となる。この時の水溶液保持容量は 1.70 となる。

以上の実験事実より、安全側に見積もれば、飛灰からの水溶液漏出は、飛灰不溶成分の全体積の 1.6 倍の水溶液が飛灰内に生じた時に発生するとするのが適当であろう。

### (j) 容器形状の影響

これまでの論議では、底面と側面が外気から遮断された円筒に収納された焼却飛灰の吸湿のみを取り扱ってきた。この場合吸湿面は上面だけになり、高さ方向の断面積の変化もないから、1次元系吸湿過程としての取り扱いが可能となる。放射能汚染焼却飛灰の多くはフレコンに入れて保管している。フレコンが防水シートで作られている場合には、吸湿面が上面だけとなり、1次元問題になるから、吸湿速度定数  $k$  を測定しさえすれば、飛灰の吸湿量は (時間)<sup>1/2</sup> 則を使って算出できる。しかしながらフレコンに防水処置が施されていない場合には、フレコンシートを通しての側面からの吸湿も生じるため、単純な 1 次元系的取り扱いは出来なくなり、3 次元系飛灰形状を考慮した数学的取り扱いが必要となる。ここでは 1 次元系で実測した吸湿速度定数と適当な数式モデルを使って、3 次元系で実測された吸湿量を算出することを試みる。作業仮説として、上面からのみ吸湿させた場合の吸湿量変化を再現できる数式表現は側面吸湿の場合にも適用できると仮定する。

外壁が吸湿阻害性のない 50 メッシュのステンレス製金網で出来ている、内径 7.7cm の円筒に 20wt% の  $\text{CaCl}_2$  を含む焼却飛灰を入れ、上面をプラスチックシートで覆って、側面からのみ吸湿させた場合、および外壁を空気を遮断するプラスチックシートに替え、上面を 50 メッシュのステンレス製金網で覆って、上面からのみ吸湿させた場合の吸湿挙動を図 1.4-124 に示す。吸湿温度は 40°C、湿度は 80% である。上面からのみ吸湿させた場合の吸湿量変化は (時間)<sup>1/2</sup> 則に従うが、これを再現できる最も単純な数式表現は、以下の擬似拡散方程式で与えられる。

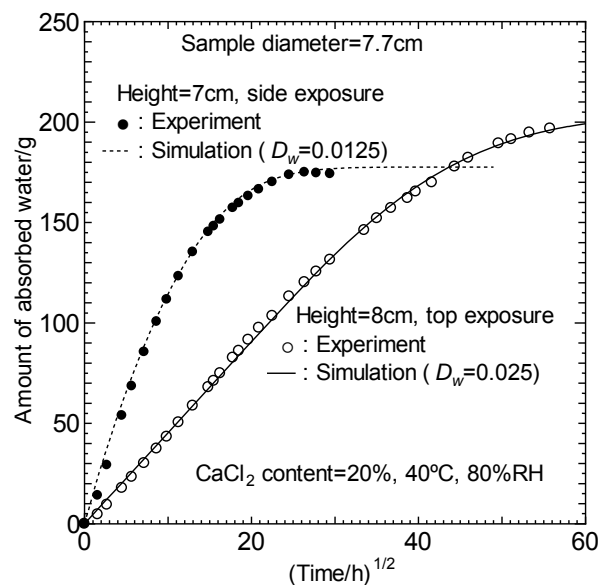


図 1.4-124 円筒容器の上面あるいは側面から吸湿させた際の飛灰の吸湿量変化

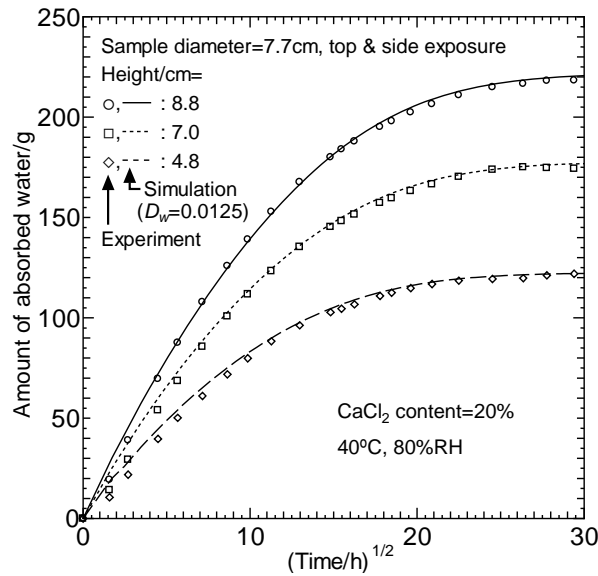


図 1.4-125 円筒容器の上面と側面から吸湿させた際の飛灰の吸湿量変化

$$\frac{\partial W}{\partial t} = D_w \nabla^2 W \quad (7)$$

ここでは  $W$  は飛灰単位体積当たりの吸湿量、 $t$  は時間、 $D_w$  は水の擬似拡散係数である。この方程式は (e) 焼却飛灰の吸湿メカニズム (P149) で示した飛灰の吸湿モデルに従っていないが、全吸湿量だけは再現できる可能性がある。単位体積当たりの初期加水量を  $W_0$  とすると、(7) 式の初期条件は、

$$W = W_0 \quad (8)$$

時間無限大での飽和吸湿量を  $W_{\max}$  とすると、境界条件は、大気との接触面で

$$W = W_{\max} \quad (9)$$

底面およびプラスチックシートとの接触面の法線方向に対して

$$\frac{\partial W}{\partial n} = 0$$

(10)

となる。

飛灰の高さを  $z_0$ 、半径を  $r_0$  とし、飛灰の上面からのみ吸湿させた場合を最初に取り扱う。上記の条件のもとでの (7) 式の解は、

$$W = W_{\max} - (W_{\max} - W_0) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n 2}{(n+1/2)\pi} \cos[(n+1/2)\pi z / z_0] \exp[-(n+1/2)^2 \pi^2 (D_w t / z_0^2)]$$

(11)

となるが、(11) 式で与えられる吸湿量分布は図 1.4-107 に示す吸湿量分布の実測値を再現しない。



しかしながら、(11)式を空間積分して得られる全吸湿量  $W_T$ 、すなわち

$$W_T = \pi r_0^2 z_0 \left\{ W_{\max} - (W_{\max} - W_0) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2}{(n+1/2)^2 \pi^2} \exp\left[-(n+1/2)^2 \pi^2 (D_w t / z_0^2)\right] \right\} \quad (12)$$

は、擬似拡散係数として  $D_w=0.025$  を採用すると、図 1.4-5-1-22 の実線で示すように、実測値を非常に良く再現することが出来る。単位断面積当たりの吸湿量  $w$  は

$$\begin{aligned} w &\equiv (W_T - \pi r_0^2 W_0) / (\pi r_0^2) \\ &= z_0 (W_{\max} - W_0) \left\{ 1 - \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2}{(n+1/2)^2 \pi^2} \exp\left[-(n+1/2)^2 \pi^2 D_w t / z_0^2\right] \right\} \end{aligned} \quad (13)$$

となるが、 $D_w t / z_0^2 \ll 1$  のとき、

$$1 - \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2}{(n+1/2)^2 \pi^2} \exp\left[-(n+1/2)^2 \pi^2 (D_w t / z_0^2)\right] \approx (4D_w t / \pi)^{1/2} / z_0 \quad (14)$$

の関係を使うと、

$$w = (W_{\max} - W_0) (4D_w t / \pi)^{1/2} \quad (15)$$

を得る。(2)式と(15)式との比較より、実測吸湿速度定数と擬似拡散係数は以下の関係で結ばれていることがわかる。

$$k = (W_{\max} - W_0)^2 4D_w / \pi \quad (16)$$

次に側面のみから吸湿させた場合を取り扱う。この場合の(7)式の解は

$$W_T = \pi r_0^2 z_0 \left\{ W_{\max} - (W_{\max} - W_0) \sum_{i=1}^{\infty} \frac{4}{x_i^2} \exp[-(x_i / r_0)^2 D_w t] \right\} \quad (17)$$

となる。ここで  $x_i$  はゼロ次のベッセル関数  $J_0(x)$  の値をゼロとする  $i$  番目の解で、

$$s_i = \pi(4i-1) \quad (18)$$

と置くと、

$$x_i \approx (s_i / 4) \left[ \begin{array}{l} 1 + 2/s_i^2 - (62/3) / s_i^4 + (15116/15) / s_i^6 \\ -(12554474/105) / s_i^8 + (8368654292/315) / s_i^{10} \end{array} \right] \quad (19)$$

で与えられる。擬似拡散係数として上面からの吸湿の際に使われた  $D_w=0.025$  を(17)式に代入して得た結果は実測値を再現できない。しかしながら  $D_w=0.0125$  を採用すると、図 1.4-124 の点線で示すように、実測値を非常に良く再現することができる。上面吸湿の場合の擬似拡散係数の値が側面吸湿のその2倍になるのは、おそらく上面からの水の移動に重力が寄与しているためであろう。

上面のプラスチックシートをステンレス性金網に替え、上面と側面から吸湿させた場合についての吸湿量の実測値を図 1.4-125 に示す。この場合の(7)式の解は

$$W_T = \pi r_0^2 z_0 \left\{ W_{\max} - (W_{\max} - W_0) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2 \exp[-(n+1/2)^2 \pi^2 D_w t / z_0^2]}{(n+1/2)^2 \pi^2 x_i^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{4}{x_i^2} \exp[-(x_i / r_0)^2 D_w t] \right\} \quad (20)$$

となる。側面のみからの吸湿で得た擬似拡散係数  $D_w=0.0125$  を使って得た計算値を図 1.4-125 の実線、点線、破線で示す。飛灰の高さにかかわらず、実測値を良く再現することがわかる。図 1.4-125 中の高さ 7cm の飛灰の吸湿速度は、図 1.4-124 中の、飛灰上面からの吸湿を遮断した高さ 7cm の飛灰の吸湿速度とほとんど変わらない。これより、高さと同程度の飛灰の吸湿量は、側面からの吸湿でほとんど決まってしまうことがわかる。

飛灰の上面及び側面から吸湿させた際の擬似拡散係数の値が上面からの場合のその 1/2 になるという関係は、図 1.4-126 に示すように、温度や湿度を変えても成立する。

以上、側面からの吸湿がある飛灰の吸湿量を見積もるには、飛灰上面のみからの吸湿で実測した吸湿速度定数から得られる擬似拡散係数の 1/2 の値を使って(7)式の拡散方程式を解けば良いことが判明した。

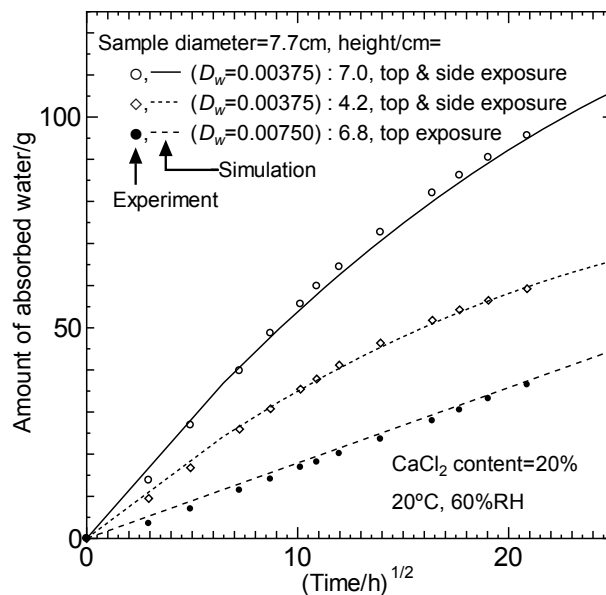


図 1.4-126 円筒容器の上面あるいは上面と側面から吸湿させた際の飛灰の吸湿量変化

## 2) 実験結果の理論解析と長期吸湿速度算定方法の導出 (焼却飛灰からの溶液漏出時期の算出)

ここまでに述べた研究成果を基に、吸湿による焼却飛灰からの  $C_s$  を含む水溶液漏出時期予測法について、以下に具体的に述べる。

### (a) 加重平均湿度及び温度の算出

飛灰の吸湿速度は温度と湿度の関数だから、保管飛灰から溶液が漏出するかどうかを判断するには、吸湿速度で重みを付けた、飛灰保管場所での年平均湿度と温度を知る必要がある。重み付き年平均湿度  $RH_{av}$  および年平均温度  $T_{av}$  は、報告されている日平均湿度  $RH$  および日平均温度  $T$  から以下の式によって算出される。

$$K_{av} = \int_0^{365} RH^{3.4} \exp(-4880/T) dt \quad (21)$$

$$RH_{av} = \int_0^{365} RH [RH^{3.4} \exp(-4880/T)] dt / K_{av} \quad (22)$$

$$T_{av} = \int_0^{365} T [RH^{3.4} \exp(-4880/T)] dt / K_{av} \quad (23)$$

### (b) 漏出可能性の判定

加重平均湿度および温度が決まると、対象とする焼却飛灰から溶液が漏出するかどうかの判定が出来る。以下にその手順を列挙する。

- ① 初期吸水量の測定： 対象とする焼却飛灰試料（数百グラム）の一部（数十グラム程度）の質量  $X_0$  を測定した後、これを 230°C で 1 昼夜乾燥させてからその質量  $X_D$  を測り、乾燥飛灰単位質量あたりの初期加水率  $(X_0 - X_D) / X_D$  を求める。初期加水率は一般に 20%~30% 程度である。この値よりも著しく大きい場合には、保管中に飛灰表面が著しく吸水した可能性があるため、吸湿速度定数測定用に用いる試料は、乾燥飛灰に水を添加して初期加水率 25% としたものをを用いることにする。
- ② 飽和吸湿量の測定： 乾燥した試料をシャーレに入れ、12-1 で算出した温度と湿度に設定した恒温槽中に置いて、吸湿量が飽和に達した状態での質量  $X_S$  を測定し、飽和吸湿量算定に供する。なお、試料中の  $\text{CaCl}_2$ 、 $\text{NaCl}$ 、 $\text{KCl}$  の含有量が測定されている場合には、吸湿実験をせずに、図 1.4-102 から飽和吸湿量を読み取ることが出来る。
- ③ 不溶飛灰成分の比重測定： 吸湿した試料に乾燥質量の 2 倍程度の水を加えて 1 時間程度静かに攪拌した後、これをガラス濾過器に入れて減圧濾過する。飛灰中の水溶性成分の分析が必要な場合には、濾液を保存する。

濾過器に残った飛灰に減圧下で少量の水を加えて 2 回程度洗浄した後、これを 230°C で 1 昼夜乾燥させ、不溶性成分の質量  $X_S$  を測定する。次にこれの一定量  $X_g$ （例えば 20g）を適当な大きさのメスシリンダー（例えば 50cc メスシリンダー）に入れ、これに約 20% の  $\text{CaCl}_2$  水溶液を一定量（例えば 20cc）加えて攪拌静置し、メスシリンダーの示す体積増加量  $Y_{cc}$  を不溶性飛灰の真体積とする。 $X/Y = \rho_S$  が不溶成分の真比重となる。真比重は 2.2~2.3 程度となる。

- ④ 溶液漏出の可能性判定： 乾燥飛灰の質量を  $X_D$ 、吸湿飽和状態の飛灰の質量を  $X_{max}$ 、洗浄乾燥飛灰の質量を  $X_S$ 、その真比重を  $\rho_S$  とすると、

$$(X_{max} - X_D) \rho_S / X_W > 1.6 \quad (24)$$

なら、吸湿によって溶液漏出が生じる可能性がある。

### (c) 吸湿速度定数の測定

溶液漏出の可能性のある飛灰について、以下の手順で吸湿速度定数を算出する。

- ① 吸湿速度定数測定用試料の作成： 200～250cc 用プラスチックメスシリンダーを 110cc 目盛近辺から切断し、飛灰の充填率ができるだけ高くなるよう、これに飛灰を少しづつ入れては上から押し付けることを繰り返しながら、未乾燥の焼却飛灰を 100cc 程度メスシリンダーに充填する。
- ② 吸湿速度定数の測定： 上記の試料を 12-1 で算出した温度及び湿度に設定した恒温恒湿槽に入れ、単位断面積あたりの吸湿量を吸湿時間の平方根に対してプロットする。吸湿量が（時間）<sup>1/2</sup> 則に充分従う期間まで測定を行った後、グラフから吸湿速度定数  $k$  を求める。

#### (d) 漏出時期の計算に必要なパラメータの算出

擬似拡散方程式から溶液の漏出時期を求めるのに必要なパラメータは、擬似拡散係数  $D_w$  および飛灰単位体積あたりの初期加水量  $W_0$  と飽和吸湿量  $W_{\max}$  である。これらの値は以下のように算出される。

- ① 吸湿速度定数の決定： 単位体積吸湿速度定数  $k$  と吸湿温度、湿度、および(3)式から得られる関係

$$C_0 = k \exp(-4880 / T) / RH^{3.4} \quad (25)$$

を使って定数  $C_0$  を算出する。(21)式を使うと、年平均吸湿速度定数  $k_{av}$  は

$$k_{av} = C_0 K_{av} \quad (26)$$

と求まる。

- ② 保管飛灰のかさ体積算出： 飛灰からの溶液漏出時期を算出するためには、擬似拡散係数を知る必要があるが、これは吸湿速度定数に加えて飛灰単位体積あたりの初期加水量および飽和吸湿量に依存する。これらの値は飛灰のかさ密度に依存するが、保管されている焼却飛灰の質量は吸湿速度定数の測定に使用した飛灰の質量よりもはるかに大きいため、その値は吸湿速度定数測定時のそれとは異なる。しかしながら、吸湿速度定数の値はかさ密度にほとんど依存しないから、かさ密度を仮定すれば、そのかさ密度での擬似拡散係数を算出することが出来る。飛灰中の不溶成分はその体積の 1.6 倍程度の溶液を保持することが可能だから、飛灰のかさ密度としては、その不溶成分が体積の 1/2.6 を占める値とするのが適当であろう。このように仮定すると、溶液漏出の可能性判定のために使用した飛灰のかさ体積が  $2.6X_S/\rho_S$  と求まる。
- ③  $W_0$ 、 $W_{\max}$ 、 $D_w$  の算出： 上記のように決定されたかさ体積を使うと、これらの値は以下のように与えられる。

$$W_0 = (X_0 - X_D)\rho_S / (2.6X_S) \quad (27)$$

$$W_{\max} = (X_{\max} - X_D)\rho_S / (2.6X_S) \quad (28)$$

$$D_w = \pi k_{av} / [4(W_{\max} - W_0)^2] \quad (29)$$

### (e) 漏出時期の算出

上記の手順によって定まったパラメータを使って、飛灰保管容器の形状に応じた擬似拡散方程式の数値解を求め、全吸湿量が  $W_c \times$  飛灰体積になるのに要する時間、すなわち漏出時期を決定する。東北地方で採取したストーカ炉焼却飛灰を例にとってその算出法を示す。加湿実験は 30°C 90%RH で行ったため、その算出法は先に述べた方法とは若干異なる。

福島県小名浜地区の年間気象データを使うと、加重年平均湿度は 83%、加重年平均温度は 292.5K、 $K_{av}=0.128$  となる。

採取焼却飛灰の成分値を表 1.4-30 に、また飛灰中で不溶成分が占める体積の割合を 1/1.26、湿度を 83%とした時の、表 1.4-30 から計算される各種吸水量を、飛灰 1cc あたりの体積に換算した値を表 1.4-31 に示す。

表 1.4-30 東北地方で採取した焼却飛灰の組成（乾燥飛灰に対する質量比）

飛灰記号	初期含水量	不溶成分 (比重)	CaCl <sub>2</sub>	NaCl	KCl	実効 CaCl <sub>2</sub>	飽和吸湿量
●	24.1%	38.0% (2.21)	20.0%	6.9%	11%	31.7%	126%
■	22.9%	53.8% (2.22)	13.7%	5.0%	4.6%	20.5%	82%
○	19.9%	51.6% (2.22)	15.5%	4.5%	8.5%	23.8%	95%

表 1.4-31 試験飛灰を仮想かさ密度、湿度 83%で保管した時の、各種吸水量の体積割合

飛灰記号	仮想かさ密度	$W_0$	$W_{max}$
●	1.61 g/cc	0.31 g/cc	1.65 g/cc
■	1.36 g/cc	0.25 g/cc	0.91 g/cc
○	1.40 g/cc	0.23 g/cc	1.11 g/cc

この飛灰をかさ密度 1.3 程度でメスシリンダーに詰め、温度 30°C、湿度 90%で吸湿試験を行った際の吸湿量変化の様子を図 1.4-127 に示す。これで得られた吸湿速度定数と表 1.4-31 の各種数値を使うと、表 1.4-32 に示す、飛灰からの溶液漏出時期を計算するのに必要な各種パラメーターの値が求まる。断面積 1m<sup>2</sup>、高さ 100cm のフレコンに入った当該飛灰が上面のみから吸湿した場合、あるいは上面に加えてフレコンシートを通して側面からも吸湿した場合の溶出時期を表 1.4-32 に示す。また、表 1.4-32 のパラメーターを使い、フレコンシートを通しての吸湿速度は上面吸湿の場合の 58%に低下するとして得た計算結果を図 1.4-128 に示す。大気中に晒された孤立フレコンシートに入った 1 立方メートルの飛灰から放射性セシウムを含む溶液が漏出する時期は、フレコンが非通気性のシートで作られている場合には数十年から百年程度、通気性のフレコンシートの場合には十年から 30 年程度と見積もられる。

以上、本研究により、様々な組成や形状を有する焼却飛灰が様々な気象条件下に置かれた場合での、吸湿により放射性セシウムを含む水溶液が飛灰から漏出する時期の算出法が確立した。

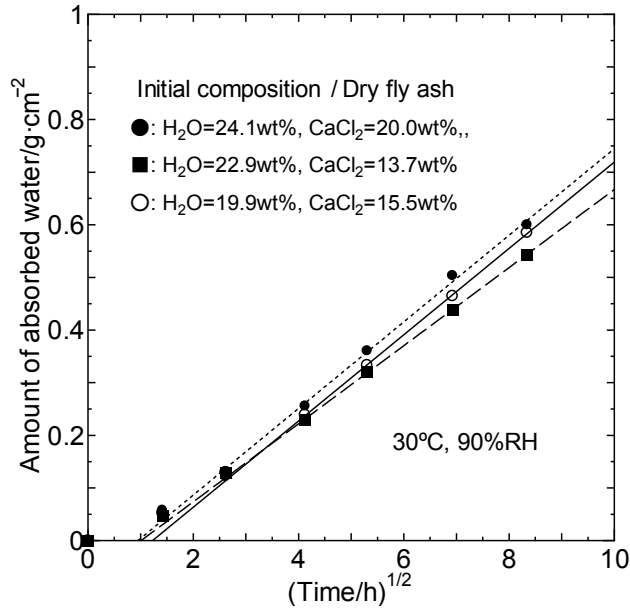


図 1.4-127 採取した焼却飛灰の吸湿挙動

表 1.4-32 試験飛灰に対する計算パラメータ

飛灰記号	$k$	$C_0$	$k_{av}$	$D_w$	溶出時期 1)	溶出時期 2)
●	0.00574	0.0128	0.00163	0.00072	63 年	12 年
■	0.00454	0.0101	0.00129	0.00235	116 年	29 年
○	0.00518	0.0115	0.00147	0.00151	114 年	25 年

- 1) 飛灰上面のみから吸湿した場合
- 2) 上面に加えてフレコンシートを通して側面からも吸湿した場合

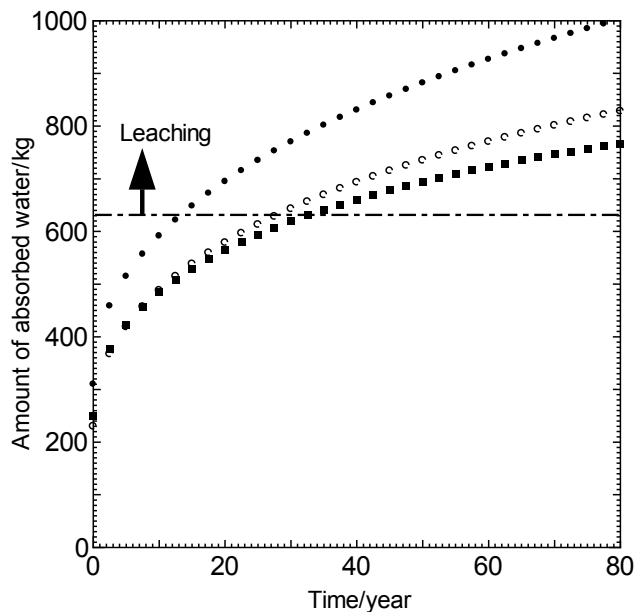


図 1.4-128 断面積 1 m<sup>2</sup>、高さ 1m の透湿性フレコン容器に入った採取飛灰の吸湿量予測値

## (2) フェロシアン化ニッケルによる Cs 不溶化の耐久性

福島第一原発の事故によって広域に飛散した放射性セシウムの一部は、ごみ焼却飛灰中に濃縮蓄積されているため、放射性 Cs を含む焼却飛灰を長期安定保管することは喫緊の社会的課題となっている。焼却飛灰中の Cs のほとんどは水溶性なので、これを長期保管する場合、雨水・流水や吸湿・結露によって飛灰内に水が侵入すると、周囲の放射能汚染を引き起こすことになる。従って飛灰を長期保管する場合には、これらの起因により水が侵入することを防ぐ、特別な手立てが必要となる。

Cs を不溶化処理できれば、吸湿等、水の浸入による Cs の漏出は阻止できる。Cs 固定化剤としてはゼオライトやベントナイト、プルシアンブルーなど、様々な化合物が知られている。しかしながら飛灰中には、Cs に比べてはるかに多量のカリウムイオンやナトリウムイオンが存在するので、ゼオライトやベントナイトなどのイオン交換体では、これらイオン種が Cs イオンの吸着を阻害し、固定化を阻止する。プルシアンブルーは他のアルカリ金属イオン共存下で特異的に Cs イオンを吸着することが知られているが、焼却飛灰には、排気ガス中の塩酸を中和するために投入された水酸化カルシウムが多量に含まれており、Cs 固定化のために加える水はアルカリ性となるため、アルカリ性になると分解してしまうプルシアンブルーは飛灰中の Cs 固定化剤とはなり得ない。

高アルカリ性溶液中で安定で、かつ高濃度のアルカリイオンやアルカリ土類イオン共存下で選択的に Cs イオンを吸着できる安価かつ少量で有効なイオン交換体があれば、焼却飛灰に直接イオン交換体の懸濁液を加えるだけで、放射性 Cs の不溶化が達成される。また不溶化処理した焼却飛灰をセメント固化し、地中に埋没することも可能となる。そのようなイオン交換体としてプルシアンブルーの  $\text{Fe}^{3+}$  イオンを  $\text{Ni}^{2+}$  イオンに置き換えたフェロシアン化ニッケル (NiFeCN、以後 NiFeCN と略記) が見出されているが、その長期安定性については未知である。ここでは様々な手法で合成した NiFeCN のアルカリ環境下での耐久性を試験し、放射性 Cs の長期保管に適した NiFeCN の合成法と、その特性を明らかにする。

### 1) 合成

使用した NiFeCN は、フェロシア化カリウム ( $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ ) 水溶液と塩化ニッケル ( $\text{NiCl}_2$ ) 水溶液を混合して作成した。生じた NiFeCN 懸濁液の上澄み液を 0.2 ミクロンのフィルターを通して吸引し、この溶液中の残存  $\text{Fe}(\text{CN})_6^{4-}$  イオンを過マンガン酸カリウムで、あるいは残存  $\text{Ni}^{2+}$  イオンを BT 指示薬を用いた EDTA 滴定で定量することにより、生じた NiFeCN 中の  $\text{Ni}/\text{Fe}(\text{CN})_6$  モル比を決定した。また必要に応じ、生じた懸濁液に NiFeCN の 4 倍質量程度の水酸化カルシウム ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) 粉末を加えて混合し、これを 40°C 湿度 30% で一昼夜乾燥して、水酸化カルシウム担持 NiFeCN を作成した。

アルカリ水溶液中での NiFeCN の分解速度は、100cc の NaOH 水溶液または  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  飽和水溶液に NiFeCN を加えて攪拌放置後、上積み溶液 50cc を採取し、分解で生じた溶液中の  $\text{Fe}(\text{CN})_6^{4-}$  イオンを過マンガン酸カリウムで滴定することにより求めた。

焼却飛灰には、水溶性塩類として 0.1mmol/kg 以下の CsCl と、各々 2mol/kg、1mol/kg、1mol/kg 程度の  $\text{CaCl}_2$ 、NaCl、KCl、および難溶性の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  が含まれている。よって焼却飛灰からの浸出溶液のモル比は、CsCl : NaCl : KCl :  $\text{CaCl}_2 = 1 : 10^4 : 10^4 : 2 \times 10^4$  とし、これを  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  飽和溶液に溶解させたものを飛灰の模擬溶液とした。また、Cs 捕捉効率に対するアルカリ性の影響を知る

ため、CaCl<sub>2</sub>を加えない模擬溶液も用いた。この模擬溶液の懸濁液を加えて攪拌混合後、1 昼夜静置し、0.2 ミクロンフィルターを通して上澄み液を吸引濾過したのち、濾液の放射線量を NaI シンチレーターによる Cs-137 のガンマー線測定により求め、NiFeCN への Cs 吸着能を算出した。

セメント固化体中での NiFeCN の分解速度測定用には、15g の普通ポルトランドセメント (OPC) 15g あるいは OPC7.5g と焼却飛灰 7.5g の混合物に、約  $1 \times 10^{-4}$  モル等量および 0.8 モル等量の Cs を吸着した、NiFeCN あるいは Ca(OH)<sub>2</sub> 担持 NiFeCN 約 0.5mmol と、6mmolCaCl<sub>2</sub>、3mmol の NaCl および 3mmol の KCl を含む懸濁液 6cc を加えて作ったセメントペーストを、内径 34mm、厚さ 10mm のプラスチックシャーレに入れて 40℃ で 2 週間養生して作成した円盤状固化体を用いた。これを一定温度の Ca(OH)<sub>2</sub> 飽和溶液 400cc に浸漬し、その放射能減少量から NiFeCN の分解速度を求めた。固化体からの溶出物の影響を避けるため、固化体浸漬用 Ca(OH)<sub>2</sub> 飽和溶液は、測定毎に新しいものと交換した。

## 2) フェロシアン化ニッケルの安定性評価試験

### (a) フェロシアン化ニッケルの製法と耐アルカリ性

NiFeCN はフェロシアン化アルカリとニッケル塩の水溶液を混合させて生じる不溶性の化合物であって、その化学組成、例えば Fe(CN)<sub>6</sub><sup>4-</sup> イオンと Ni<sup>2+</sup> イオンのモル比は反応条件によって大きく異なる<sup>[13]</sup>。よって反応条件が異なれば NiFeCN の耐アルカリ性も異なることが推察される。実際三村らは NiFeCN が pH=13 まで安定であると報告しているのに対し<sup>[14]</sup>、Milyutin らは pH=10 以上では Cs 吸着能が著しく低下することを報告している<sup>[15]</sup>。そこでアルカリ耐性に対する NiFeCN 作成時の K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub> 溶液と NiCl<sub>2</sub> 溶液の濃度と混合法の効果を調べた。混合法としては、A：一方の溶液を攪拌し続けながら、これに他方の溶液を少量づつ滴下する。B：一方の溶液に他方の溶液を混合しないように静かに加え、攪拌せずに 1 昼夜放置する、C：一方の溶液に他方の結晶を加えて 1 週間放置する、の 3 手法を採用した。手法 A、B で生じた NiFeCN の組成を表 1.4-33 に、またその形状を図 1.4-128 に示す。

K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub> 溶液への NiCl<sub>2</sub> 溶液の攪拌滴下攪拌によって NiFeCN を作成した場合、使用した原料溶液の Ni/Fe(CN)<sub>6</sub> モル比が 1 以下の場合には、図 1.4-128 の左上に示すように、青緑色の NiFeCN が生じ、その Ni/Fe(CN)<sub>6</sub> モル比は 1.1 程度となる。さらに NiCl<sub>2</sub> 溶液を滴下すると、NiFeCN の色調は、図 1.4-33 の右上に示すような、黄色味を帯びたものになり、Ni/Fe(CN)<sub>6</sub> モル比は原料溶液のモル比と等しくなる。このことは、既に生じていた青緑色の NiFeCN が Ni を吸収して黄色味を帯びた NiFeCN に変化したことを示している。原料溶液のモル比が 1.35 を超えると、NiFeCN はそれ以上 Ni イオンを吸収できなくなるため、モル比は 1.35 で停止し、懸濁溶液中の遊離 Ni イオンが含まれるようになる。

表 1.4-33 NiCl<sub>2</sub> 溶液と K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub> 溶液から生じる NiFeCN 中の Ni/Fe(CN)<sub>6</sub> モル比

原料溶液モル比 $x$	$x < 1$	$1 < x < 1.35$	$x > 1.35$
滴下攪拌 <sup>1)</sup>	~ 1.1	~ $x$	~ 1.35
接触静置 <sup>2)</sup>	1 ~ 1.1	1 ~ 1.1	1 ~ 1.1

1) K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub> = 0.1M ~ 0.4M, NiCl<sub>2</sub> = 0.15M ~ 1.2M

2) K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub> = 0.4M ~ 0.6M, NiCl<sub>2</sub> = 0.6M ~ 1.2M



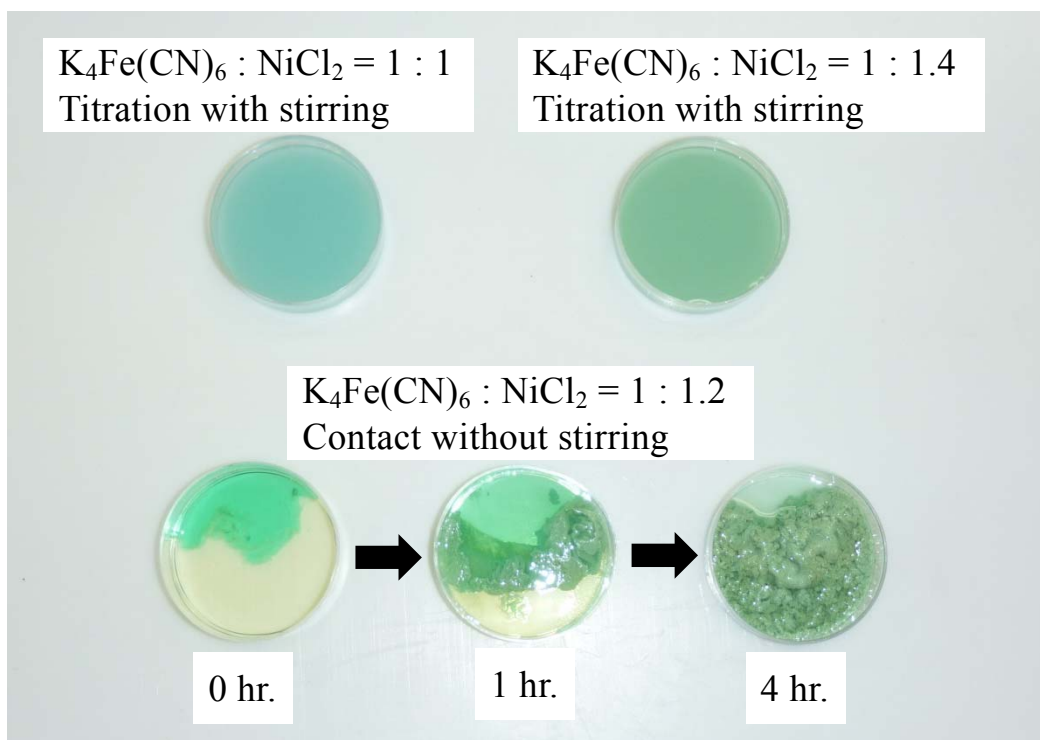


図 1.4-128  $K_4Fe(CN)_6$  溶液と  $NiCl_2$  溶液の攪拌滴下及び接触静置で生じる  $NiFeCN$  の形状

$K_4Fe(CN)_6$  溶液と  $NiCl_2$  溶液を混合させることなく静かに接触させると、図1.4-128の下図に示すように、両液の境界面生じた  $NiFeCN$  生成帯が次第に発達し、黄緑色の塊状  $NiFeCN$  が液全体を覆うようになる。またその組成比は、原料溶液中の  $Ni^{2+}$  や  $Fe(CN)_6^{4-}$  の量にかかわらずほぼ1となる。

$K_4Fe(CN)_6$  溶液に  $NiCl_2$  結晶を加えた場合には、先ず  $NiCl_2$  結晶の溶解で生じた濃厚  $NiCl_2$  溶液が  $K_4Fe(CN)_6$  溶液底部に発生する。その後の  $NiFeCN$  生成過程は2液を接触静置した場合と同じである。

$NiCl_2$  溶液に  $K_4Fe(CN)_6$  結晶を加えた場合には、 $K_4Fe(CN)_6$  溶液が生成することなく、 $K_4Fe(CN)_6$  結晶の表面から  $NiFeCN$  が生成する。

滴下攪拌法および接触静置法で作った  $NiFeCN$  1mmol を 0.5M の 20°C NaOH 溶液 100cc 中に 1 日放置した場合の  $NiFeCN$  の残存率を図1.4-129に示す。滴下攪拌で生成した  $NiFeCN$  のアルカリ耐性は接触静置の場合よりも低くなる。また、作成に用いた溶液の濃度が低いほどアルカリ耐性も低くなる。

0.4M の  $K_4Fe(CN)_6$  溶液と 0.6M の  $NiCl_2$  溶液を等量混合させて作った  $NiFeCN$  懸濁液 1mmol を 20°C NaOH 溶液 100cc 中に 1 日放置した後の  $NiFeCN$  の残存率を図1.4-130に示す。攪拌せずに作成したものの方が安定性が高いが、pH が 13 を超えると一部分解することがわかる。焼却飛灰がアルカリ性を示すのは、含まれている  $Ca(OH)_2$  が水に溶解するためであるが、水溶液の pH は 12.6 以下なので、短期的には  $NiFeCN$  は飛灰の Cs 溶出防止剤として十分なアルカリ耐性を有していると言える。

攪拌滴下で作成した  $NiFeCN$  の耐アルカリ性が接触静置して作成したものよりも低くなり、原料溶液が薄くなるほど低くなるのは、このような作成条件下では  $NiFeCN$  の結晶成長が進まないことによるためであると考えられる。溶液を攪拌滴下すると、たとえ滴下溶液の濃度が高くても、滴下後の濃度は低くなってしまふ。  $NiFeCN$  は不溶性だから、希薄溶液の攪拌によって広い範囲で新たな  $NiFeCN$  粒子が発生することになり、微細な  $NiFeCN$  粒子が多数生じることになる。これに対

して濃厚溶液を接触静置した場合には、両液の境界面で生じたNiFeCN粒子はNi<sup>2+</sup>イオンおよびFe(CN)<sub>6</sub><sup>4-</sup>イオンを逐次吸収して結晶成長することになる。このような大きな結晶が高い耐アルカリ性を示すと考えれば、実験結果を説明できる。実際接触静置で生じるNiFeCNは孔径5ミクロンのフィルターをほとんど通過しなかったが、滴下混合で作成したNiFeCNのほとんどはフィルターを通過してしまった。なお、両者の顕微鏡像にはほとんど違いが見られず、共に板状結晶を示した。滴下混合で作成した板状結晶は非常に薄いため、懸濁液を吸引する際に壊れてしまい、フィルターを通過したのであろう。

各種合成法で作成したNiFeCNの組成と耐アルカリ性、及びアルカリ溶液中で残存した、耐アルカリ性の高いNiFeCNの組成を表1.4-34に示す。アルカリ性の高いNiFeCNはNi : Fe(CN)<sub>6</sub> = 1 : 1に近い組成を持つことがわかる。しかしながら組成比が1:1であっても、滴下混合で作成したNiFeCNの耐アルカリ性は極めて低い。

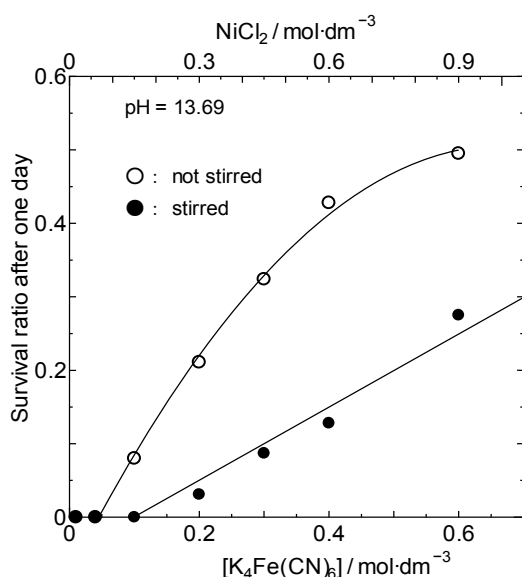


図 1.4-129 NiFeCN のアルカリ耐性に対する溶液濃度と生成法の効果

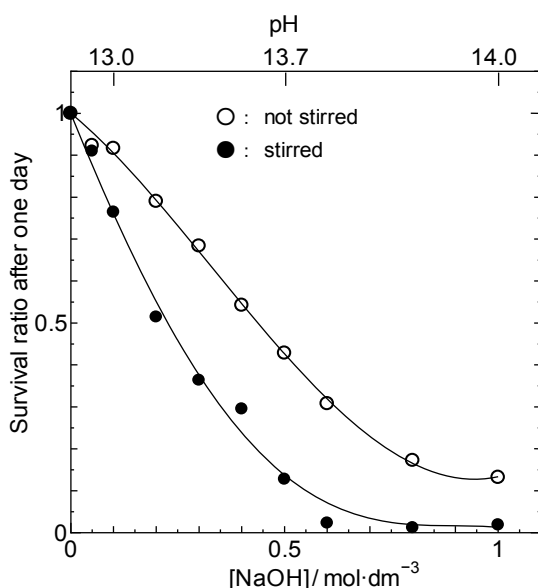


図 1.4-130 0.4M の K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>4</sub> と 0.6M の NiCl<sub>2</sub> から作った NiFeCN のアルカリ耐性

表 1.4-34 各種合成法で作成した NiFeCN の組成と耐アルカリ性

NiFeCN合成法	NiFeCN中の Ni/Fe(CN) <sub>6</sub> モル比	0.5MNaOH溶液中 1日後の残存率	残存 NiFeCN 中の Ni/Fe(CN) <sub>6</sub> モル比
0.1Mの K <sub>4</sub> Fe(CN) <sub>6</sub> を攪拌しながら 0.15MのNiCl <sub>2</sub> を1モル等量滴下	1.0	0	
0.1Mの K <sub>4</sub> Fe(CN) <sub>6</sub> にの0.15M NiCl <sub>2</sub> を1.5モル等量添加後ゆっくり攪拌	1.25	0.08	1.02 : 1
0.5Mの K <sub>4</sub> Fe(CN) <sub>6</sub> に1.2MのNiCl <sub>2</sub> 溶 液を1.2モル等量を加えて1日放置	1.10	0.78	1.10
0.5Mの K <sub>4</sub> Fe(CN) <sub>6</sub> に1.2モル当量の NiCl <sub>2</sub> 結晶を加えて1日放置	1.08	0.82	1.08
0.6Mの NiCl <sub>2</sub> に0.1モル等量の K <sub>4</sub> Fe(CN) <sub>6</sub> 結晶を加えて1週間放置	1.12	0.64	1.10

LOOS-NESKOVIC らは Ni 塩の水溶液中にフェロシアン化アルカリの結晶を加えて放置すると、カラムクロマトグラムに使用可能な、非常に大きな NiFeCN が生じることを報告しているが<sup>[16]</sup>、表 1.4-34 に示すように、その耐アルカリ性は濃厚溶液を接触させて作ったものより劣る。またその粒子は圧力を加えると容易に壊れるので、各々の結晶の大きさは、溶液の接触静置で作ったものと同程度か、それ以下なのであろう。

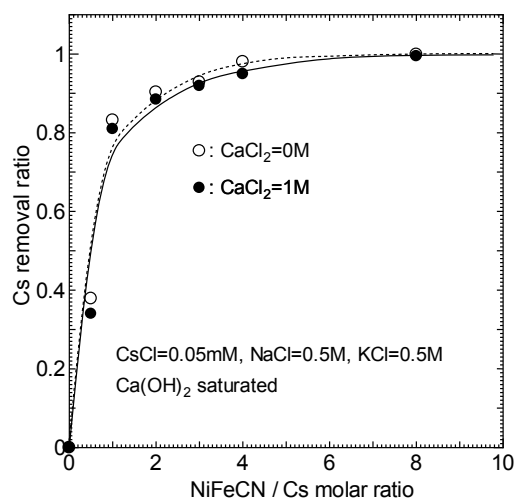


図 1.4-131 0.5M の K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub> 溶液に 1.2M の NiCl<sub>2</sub> 溶液 1.2 モル等量を接触静置させて作った NiFeCN の Cs 除去能

#### (b) フェロシアン化ニッケルの Cs 吸着能

接触静置で作製した NiFeCN に対して 4 モル等量程度の CsCl 溶液を加えた時の Cs の吸着量は 1 モル当量となるから、Cs を最大限吸着した時の NiFeCN の組成式は CsKNiFe(CN)<sub>6</sub> であると推定される。共存する K や Na イオンの濃度が Cs イオンの 10000 倍ある溶液中での、接触静置で作成した NiFeCN の Cs 除去能を図 1.4-131 に示す。Cs に対する NiFeCN のモル比が 1 で除去率 80% 以上となり、3 で 90%、8 でほぼ 100% となる。焼却飛灰には 0.1mmol 程度の Cs が含まれている

から、放射性セシウム<sup>137</sup>の溶出を90%程度防ぐのに必要なNiFeCNは、飛灰1トン当たりK<sub>2</sub>NiFe(CN)<sub>6</sub>質量換算で35g程度、ほぼ100%防ぐには280g程度あればよいことになる。NiFeCNは焼却飛灰からの放射性Csの溶出防止に極めて効果的な吸着剤であることがわかる。

### (c) アルカリ性水溶液中でのフェロシアン化ニッケルのアルカリ耐性

Cs-137の半減期は30年なので、焼却飛灰中でのNiFeCNの寿命は30年以上あることが望ましい。0.65mmolのNiFeCNを0.1MのNaOH溶液100ccに添加した際の、各温度でのNiFeCNの分解挙動を図1.4-132に示す。20℃では1000時間で約40%が分解するが、昇温するにつれて分解速度は急激に増す。

焼却飛灰中のアルカリ源は溶解度の低いCa(OH)<sub>2</sub>である上に、飛灰中にはCa(OH)<sub>2</sub>の溶解を妨げるCaCl<sub>2</sub>が多量に含まれているから、飛灰中の水溶液のpHは高々12程度であり、最も高くてもpH=12.6である。そこでNaOHに対するNiFeCNのモル比を0.065に保ったままで、0.032Mおよび0.064M NaOH溶液100cc中でのNiFeCNの分解挙動を温度60℃及び80℃で測定した。その結果を図1.4-133に示す。NaOH濃度が低く、従ってpHが低いほどNiFeCNの分解は遅いはずであるが、予測とは異なり、NaOH濃度が低いほど分解が速くなった。pH7やpH8の溶液中ではNiFeCNは全く分解しないから、pHが低下したことが分解速度が速まった主たる原因ではないことが分かる。分解が速まったのは、添加したNiFeCNに対する100cc NaOH溶液中へのNiFeCNの溶解量が相対的に高まったことによるものと考えられる。アルカリ性水溶液中ではNiFeCNの溶解が早まり、その溶解速度がpHにそれほど強くは依存しないと仮定すると、体積一定の溶液に加えるNiFeCNの量を半分にするれば、溶出するNiFeCNの相対量は2倍となる。このため見かけ上分解が速まったものと考えられる。

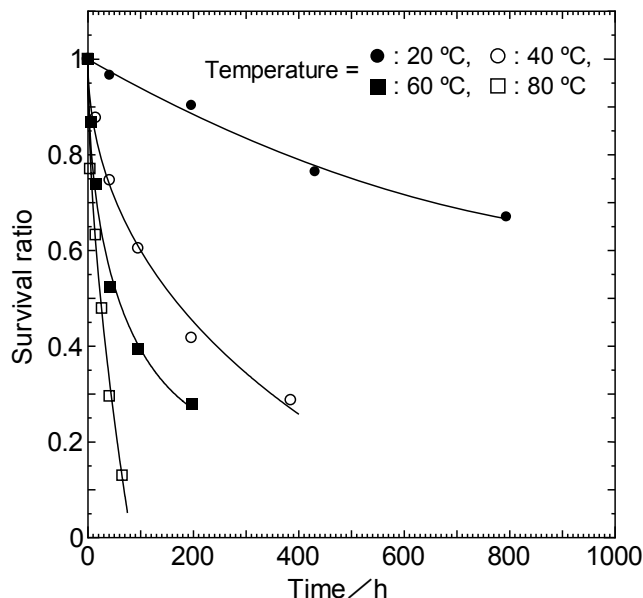


図 1.4-132 一定温度の0.1MのNaOH溶液100cc中のNiFeCN0.65mmolの分解曲線

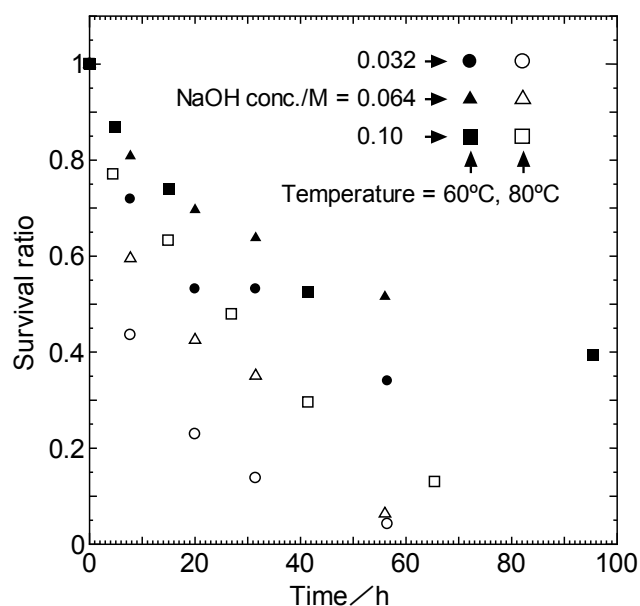


図 1.4-133 NaOH 溶液 100cc 中での NiFeCN の分解挙動  
NaOH に対する NiFeCN のモル比は 0.065

焼却飛灰中の NiFeCN に作用するアルカリ成分は  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  だから、NiFeCN の有効寿命を知るには  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液中での NiFeCN の分解速度を知る必要がある。そこで 2mmol の NiFeCN を 100cc の飽和  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液に加えた場合の分解速度を測定した。その結果を図 1.4-134 に示す。飽和  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液の  $\text{OH}^-$  イオンの濃度は約 0.05M だが、その中の NiFeCN の分解速度は、図 1.4-133 に示す  $\text{OH}^-$  イオンが 0.032M あるいは 0.064M の NaOH 水溶液中での分解速度に比べて明らかに遅い。その原因の 1 つは 100cc の飽和  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液に加えた NiFeCN の量が NaOH 水溶液の場合よりも多いことにあるが、Ca イオンが分解を防止している可能性も否定できない。

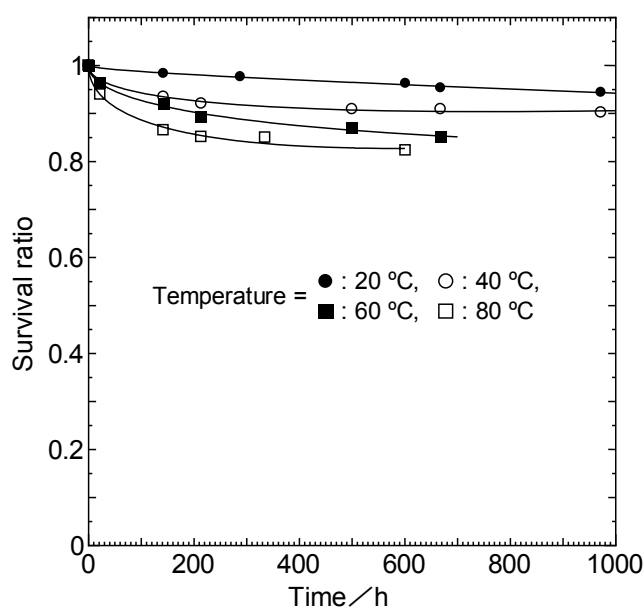


図 1.4-134 一定温度の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  飽和溶液 100cc 中での NiFeCN 2mmol の分解挙動

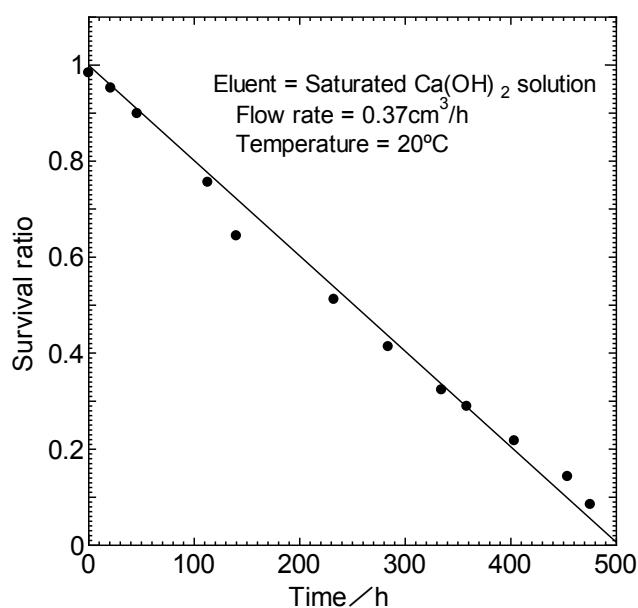


図 1.4-135 0.53mmol の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  担持 NiFeCN に  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  飽和溶液を流し続けた際の分解挙動

NiFeCN の分解速度に及ぼす分解生成物の影響を避けるため、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$  に担持した NiFeCN 0.53mmol を内径 9mm のカラムに詰め、 $20^\circ\text{C}$  流速 0.37cc/h (0.58cm/h) で飽和  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液を流した場合の分解挙動を図 1.4-135 に示す。分解曲線が残存 NiFeCN の量に依存せず直線になる、すなわち単位時間あたりの NiFeCN 溶出量が一定であることは、溶出 NiFeCN の濃度が飽和濃度に達していることを示唆している。飽和  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液中での NiFeCN の分解は、NiFeCN の溶解によって支配されていると結論される。

#### (d) セメント固化体中での NiFeCN のアルカリ耐性

NiFeCN の耐アルカリ性は NiFeCN の溶解速度に支配されているため、NiFeCN が置かれた環境で異なってくる。よって実用上有効な NiFeCN の寿命を知るには、NiFeCN を含む焼却飛灰固化体と類似した環境で寿命測定をする必要がある。そこで 15g の普通ポルトランドセメント (OPC) 15g あるいは OPC7.5g と焼却飛灰 7.5g の混合物に、約  $3 \times 10^{-5}$  モル等量および 0.8 モル等量の Cs を吸着した、NiFeCN あるいは  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  担持 NiFeCN 約 0.5mmol と、6mmol  $\text{CaCl}_2$ 、3mmol の NaCl および 3mmol の KCl を含む懸濁液 6cc を加えて作ったセメントペーストを、内径 34mm、厚さ 10mm のプラスチックシャーレに入れて  $40^\circ\text{C}$  で 2 週間養生して作成した円盤状固化体を用いた。これを一定温度の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  飽和溶液 400cc に浸漬し、その放射能減少量から NiFeCN の分解速度を求めた。固化体と  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  飽和溶液との接触面は上面 1 面のみである。

図 1.4-136 に NiFeCN を含まず水溶性放射性 Cs のみを含む固化体、セメントに懸濁状態の NiFeCN を加えて作った固化体、セメントと飛灰の 1:1 混合物に懸濁状態の NiFeCN を加えて作った固化体、およびセメントと飛灰の 1:1 混合物に  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  に担持した NiFeCN を加えて作った固化体の Cs 保持率を示す。NiFeCN を含まない固化体からは Cs が速やかに溶出するが、セメントに懸濁状態の NiFeCN を加えて作った固化体では、Cs の溶出が抑制される。しかしながらセメントと飛灰の 1:1 混合物に懸濁状態の NiFeCN を加えて作った固化体では NiFeCN の抑制効果がほとんどな

い。これは可用性塩類を含む飛灰の添加によって固化体が多孔質化したため、NiFeCN 微粒子が固化体から外に出てしまったことによる。NiFeCN を  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  に担持させて粒径を大きくすると、固化体の孔からの NiFeCN が抑制されるため、飛灰を加えたセメント固化体でもセメントのみの固化体と同程度の Cs 保持能を示す。

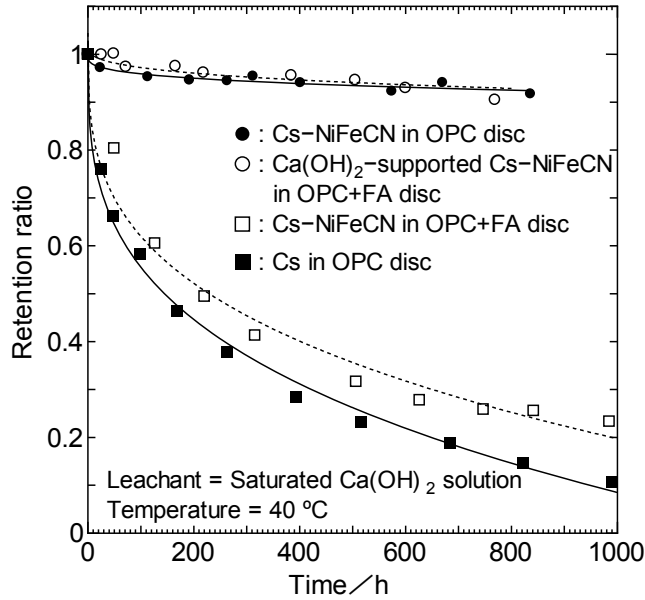


図 1.4-136 10mm×34mmφの各種セメント固化体の Cs 保持能  
 固化体の NiFeCN 含有量=0.53mmol NiFeCN の Cs 含有率=80mol%

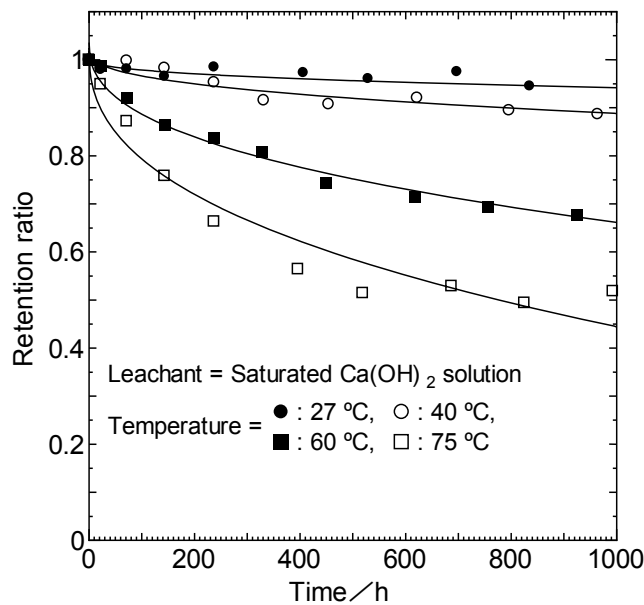


図 1.4-137 0.53mmol の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  担持 NiFeCN を含む 10mm×34mmφセメント固化体の Cs 保持能  
 (NiFeCN の Cs 含有率= $3 \times 10^{-3}$ mol%)

飽和  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液中での 0.53mmol の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  担持 NiFeCN を含むセメント固化体の Cs 保持能を図 1.4-137 に示す。Cs を吸着していない NiFeCN の寿命を知るため、NiFeCN の Cs 含有率は

$3 \times 10^{-3} \text{ mol\%}$ と非常に低くしてある。溶液温度が上昇すると NiFeCN の分解が早まるため保持能は低下するが、各温度での減衰率 50%以上での減衰曲線は、経過時間を  $t$  とすると  $1 - mt^{0.4}$  で近似できる。温度 27°C での値である  $m = 3.85 \times 10^{-3}$  を使って NiFeCN の半減期を計算すると 22 年となり、Cs-137 の半減期に近くなる。75°C での減衰曲線では、50%程度減衰した後の減衰は非常に緩やかになるから、実際の半減期は 22 年以上であろう。

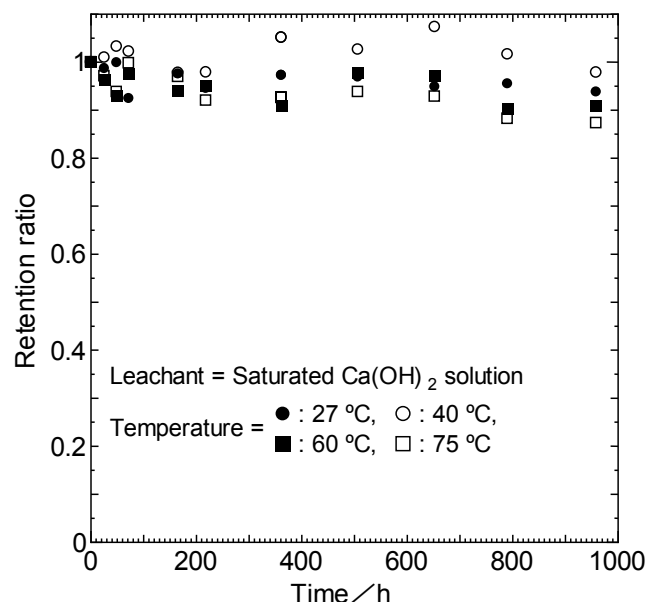


図 1.4-138 0.53mmol の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  担持 NiFeCN を含む  $10\text{mm} \times 34\text{mm} \phi$  セメント固化体の Cs 保持能 (NiFeCN の Cs 含有率 = 80mol%)

NiFeCN は Cs を吸着することによって安定化するから、Cs を吸着した NiFeCN はより高い耐アルカリ性を示すことが期待される。実際 Cs を 80%程度吸着した  $\text{Cs}_{0.8}\text{K}_{1.2}\text{NiFe}(\text{CN})_6$  は、図 1.4-138 に示すように、Cs をほとんど吸着していない NiFeCN よりもはるかに高いアルカリ耐性を持つようになる。このことより、接触静置で作成した NiFeCN に Cs を部分吸着させれば、Cs 吸着能と、より高いアルカリ耐性とを兼ね備えた NiFeCN を得ることができると推察される。

### 3) まとめ

本研究で明らかになった事実を以下に列挙する。

- ①濃厚  $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$  溶液と濃厚  $\text{NiCl}_2$  溶液を接触静置するか、あるいは一方の濃厚溶液に他方の結晶を加えて静置することにより、時間をかけて作成・成長させた NiFeCN 粒子は高いアルカリ耐性を持った選択的 Cs 吸着剤となる。
- ②このようにして作成した NiFeCN 粒子は、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$  水溶液中で高い耐アルカリ性を示すので、焼却飛灰中の Cs 固定化剤に適している。
- ③アルカリ水溶液中での NiFeCN の分解は、NiFeCN 粒子が直接  $\text{OH}^-$  イオンと反応して  $\text{Ni}(\text{OH})_2$  と  $\text{Fe}(\text{CN})_6^{4-}$  イオンになる単純な反応ではなく、 $\text{OH}^-$  イオンの攻撃により低分子量化した NiFeCN が溶液中に溶け出す反応と、低分子量化した NiFeCN が高分子量化する逆反応が入り混じった複雑な反応である。



④NiFeCN が Cs を吸着すると構造の安定化が生じ、アルカリ耐性が高まる。

これらの事実は、NiFeCN が実用的放射性 Cs 固定化剤としての十分な性能を持つことを示している。しかしながらアルカリ溶液中での NiFeCN の分解挙動には不明な点が多いので、長期 Cs 固定化剤としての NiFeCN の信頼性をより高めるには、分解機構に関するさらなる研究が必要であろう。

### (3) Cs 移動解析

#### 1) アルカリの収着挙動

##### (a) モデル化に必要な骨材とカチオンの相互作用測定

コンクリート中の Cs 移動解析には、粘土鉱物への Cs、K、Ca の吸着挙動が重要である。そこで、それらの割合を変化させた溶液を使用したヴァーミキュライトへの収着挙動を測定する予定だったが、コンクリートに対する Cs の浸透に関する検討を精査した結果、Cs の浸透に関しては骨材の影響は小さく、まずはセメント水和物に対する他のアルカリ成分 (Na、K) の影響を検討し、移行計算に反映させることが必要だと判断された。Cs の収着はセメント間隙水中に存在する K イオンによって阻害されることが知られており、Cs の収着に対する Na、K の影響を考慮した解析が必要である。本研究では C-S-H に対する Na と K の収着平衡定数を最適化し、相平衡計算モジュールと物質移行計算モジュールとを連成したコードを使用してコンクリート中の Cs の移動挙動を計算する。

##### (b) Na、K の C-S-H への収着の測定

#### ① 実験条件

合成 C-S-H を使用して NaCl、KCl の収着等温線データを取得した。試験水準を表 1.4-34 に示す。

表 1.4-34 収着試験条件と測定元素

固相試料	液相組成(mmol/L)					
	NaCl			KCl		
	1	10	100	1	10	100
CSH0.8	Na, Cl	Na, Cl	Na, Cl	K, Cl	K, Cl	K, Cl
CSH1.0	Na, Cl	Na, Cl, Ca	Na, Cl	K, Cl	K, Cl	K, Cl
CSH1.2	Na, Cl	Na, Cl	Na, Cl	K, Cl	K, Cl	K, Cl

水酸化カルシウム試薬と非晶質シリカ（商品名：アエロジル）を用いて、所定の C/S にて計量を行い、計量したこれらの粉末をイオン交換水中にて攪拌合成する。この際、合成温度を 70℃、液固比を 20 とした。XRD 測定により、未反応の水酸化カルシウムが残存しないことを確認後、固液分離（ろ過：5C ろ紙）して、真空乾燥した。

試験溶液は各固相の平衡溶液を使用した。合成水和物の場合は作製したときの液相を使用し、セメント水和物の場合は液固比 10 で平衡液を別途作製した。

CsCl と CrCl<sub>2</sub> の濃度はそれぞれ、10mM とした。

試験環境は、室温、固相と液相を容器にセットするときは炭酸化の影響を防ぐために不活性ガス雰囲気グローブボックスで実施した。分析試料は開封後すぐに酸性溶液に調整し炭酸化の影響は排除できることから、分析は大気中で実施した。

固液比は 10 とし、乾燥粉末 3g に溶液 30ml を加えた。試験期間は 7 日で、1 日 1 回手で振り混ぜた。繰り返し数は 2 とした。固液分離は 0.45 $\mu$ m メンブレンフィルターろ過とした。分析は、Na と K は原子吸光、Cl はイオンクロマトグラフによった。

表 1.4-35 C-S-H への NaCl 収着試験結果と分配比

固相	液相	Na			Cl				
	NaCl (mmol/l)	液相 ( mg/L )	固相 ( mg/kg )	Rd ( L/kg )	液相 ( mg/L )	固相 ( mg/kg )	Rd ( L/kg )		
CSH0.8	1	10	147	15.4	15.4	36	-19	-0.529	-0.755
		9	147	15.5		38	-37	-0.981	
	10	129	981	7.59	7.59	346	-56	-0.163	-0.095
		129	980	7.59		341	-9	-0.027	
	100	1826	4838	2.65	2.60	3424	647	0.189	0.236
		1840	4692	2.55		3393	958	0.282	
CSH1.0	1	14	91	6.26	6.69	36	-35	-0.963	-1.30
		14	98	7.12		39	-65	-1.64	
	10	163	638	3.92	3.92	345	0	0.001	0.021
		163	637	3.91		344	14	0.041	
	100	1881	3577	1.90	1.93	3417	208	0.061	0.077
		1873	3650	1.95		3406	315	0.092	
CSH1.2	1	18	39	2.20	2.13	32	26	0.816	0.696
		18	37	2.06		32	19	0.577	
	10	194	236	1.22	1.23	338	30	0.088	0.041
		194	242	1.25		341	-2	-0.006	
	100	2006	1965	0.979	0.955	3371	572	0.170	0.121
		2015	1874	0.930		3404	250	0.073	

## ②結果

測定結果を表 1.4-35 表 1.4-36 に示す。Na、K は、液相濃度が低いほど、C-S-H の C/S 比が低いほど、収着量が大きかったが、Cl は C-S-H に全く吸着しなかった。

10mmol/L の NaCl 溶液に C/S 比 1.0 の C-S-H を浸漬した時の液相の Ca 濃度を表 1.4-37 に示した。Na が収着することで Ca が液相に溶出した。Na の収着量は 2.6mmol/L であり、Ca の溶出量は 2.5mmol/L とほぼ一致していた。

Glasser らが NaOH、KOH を使用して Na、K の収着量を測定した結果を表 1.4-38 に示す。本試験結果と Glasser らの試験結果について、初期液相の濃度で分配比を整理した結果を図 1.4-139 に示す。Glasser らの Na、K の分配比は液相濃度の影響をあまり受けなかったが、NaCl、KCl で実施した時の Na、K の分配比は液相濃度による影響が大きく、液相濃度が小さいほど分配比は大き

くなった。特に低 C/S 比の C-S-H は、NaCl、KCl を使用した条件では収着量が大きく、Glasser  
らが実施した NaOH、KOH の結果と大きく異なっていた。

C-S-H の C/S 比で分配比を整理した結果を図 1.4-140 に示す。C/S 比が小さいほど Na、K の分  
配比は大きくなり、これは初期液相が塩化物、水酸化物ともに同じ傾向だった。Na の収着量は、  
NaOH、NaCl のいずれを使用した時も両者の差が小さかった。しかし、KCl で実施した低 C/S 比  
の C-S-H に対する K の収着量は極めて大きく、KOH の結果とは大きく異なった。初期の液性で  
C-S-H に対する収着が異なる理由は不明であるが、飛灰からの浸出液には塩素が多く含まれるこ  
とから、KCl、NaCl を使用した試験結果から、C-S-H への K と Na の収着平衡定数を求めて、相  
平衡物質移行計算に使用することとした。

表 1.4-36 C-S-H への KCl 収着試験結果と分配比

固相	液相 KCl (mmol/l)	K			Cl				
		液相	固相	Rd	液相	固相	Rd		
		(mg/L)	(mg/kg)	(L/kg)	(mg/L)	(mg/kg)	(L/kg)		
CSH0.8	1	4	404	104	104	40	-2	-0.053	-0.022
		4	404	105		40	0	0.010	
	10	137	2683	19.5	19.3	368	-31	-0.083	0.095
		140	2657	19.0		355	97	0.274	
	100	2827	11850	4.19	4.11	3489	74	0.021	-0.010
		2861	11510	4.02		3511	-148	-0.042	
CSH1.0	1	13	257	19.6	19.9	36	-6	-0.178	-0.645
		13	260	20.2		40	-45	-1.113	
	10	239	1633	6.83	6.80	349	-10	-0.030	-0.009
		240	1624	6.76		348	4	0.012	
	100	3291	6885	2.09	2.26	3680	-578	-0.157	-0.031
		3202	7780	2.43		3589	341	0.095	
CSH1.2	1	31	88	2.85	2.88	37	9	0.245	0.194
		31	90	2.91		38	5	0.142	
	10	338	588	1.74	1.60	343	97	0.283	0.149
		346	503	1.45		352	6	0.016	
	100	3625	2480	0.68	0.72	3446	1490	0.432	0.336
		3599	2740	0.76		3511	844	0.240	

表 1.4-37 NaCl 収着した時の Ca 濃度 C-S-H への KCl 収着試験結果と分配比

固相	NaCl (mmol/l)	状態*	液相濃度(mg/L)	
			Na	Ca
CSH1.0	10	ブランク	220	130
		収着試験後	160	230
Naの収着量		(mg/L)	60	
		(mmol/L)	2.6	
Caの溶出量		(mg/L)	100	
		(mmol/L)	2.5	

\* 液相にはCSH平衡液を使用。ここではブランクは固相を入れない溶液を示す。

表 1.4-38 Glasser らの C-S-H への NaOH、KOH 収着試験結果と分配比

固相	液相	K			液相	Na		
	KOH (mmol/l)	液相 ( mg/L )	固相 ( mg/kg )	Rd ( L/kg)	NaOH (mmol/l)	液相 ( mg/L )	固相 ( mg/kg )	Rd ( L/kg)
C/S0.85	1	32	2	2.50	1	30.4	2.4	3.16
	5	148.8	12.8	3.44	5	146	13.5	3.70
	15	440	40	3.64	15	448	38	3.39
	50	1572	107	2.72	50	1440	140	3.89
	100	3128	218	2.79	100	3160	210	2.66
	300	9884	529	2.14	300	9456	636	2.69
C/S1.2	1	34.4	1.4	1.63	1	33.6	1.6	1.90
	5	174.4	6.4	1.47	5	175.2	6.2	1.42
	15	544	14	1.03	15	524	19	1.45
	50	1820	45	0.99	50	1724	69	1.60
	100	3180	205	2.58	100	3480	130	1.49
	300	11048	238	0.86	300	10660	335	1.26
C/S1.5	1	37.2	0.7	0.75	1	37.6	0.6	0.638
	5	184	4	0.87	5	185.2	3.7	0.799
	15	552	12	0.87	15	564	9	0.638
	50	1884	29	0.62	50	1892	27	0.571
	100	3760	60	0.64	100	3812	47	0.493
	300	11624	94	0.32	300	11296	176	0.623
C/S1.8	1	39.2	0.2	0.20	1	38.4	0.4	0.417
	5	192.8	1.8	0.37	5	191.2	2.2	0.460
	15	584	4	0.27	15	576	6	0.417
	50	1956	11	0.22	50	1928	18	0.373
	100	3928	18	0.18	100	3876	31	0.320
	300	11868	33	0.11	300	11524	119	0.413

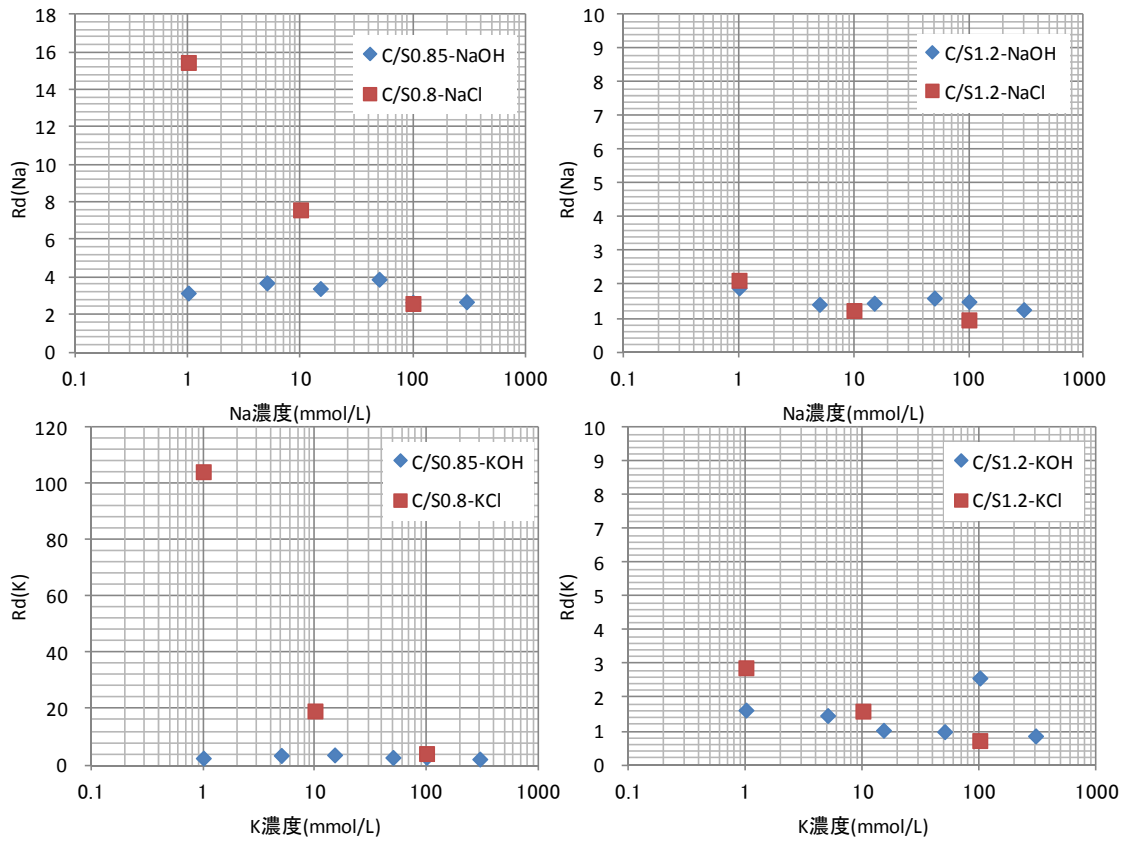


図 1.4-139 初期液相濃度と分配比の関係

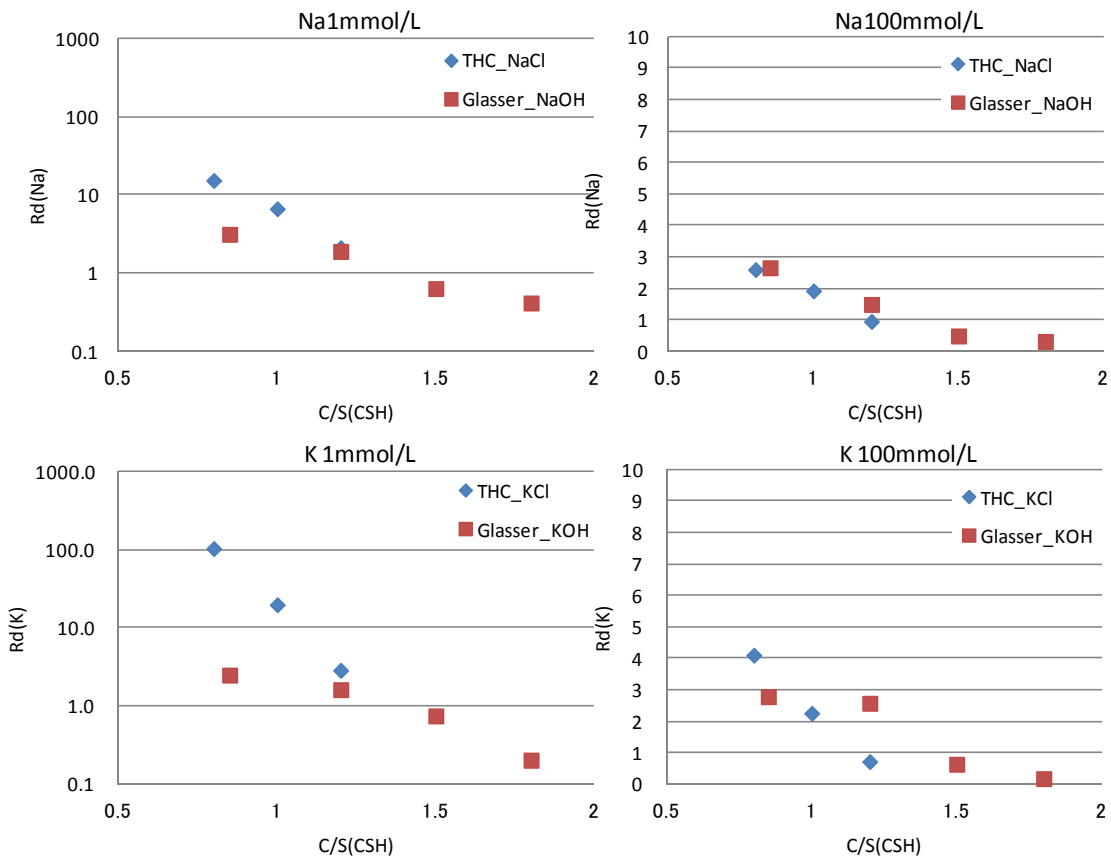


図 1.4-140 C-S-H の C/S 比と分配比の関係

## 2) Na、K との相互作用を考慮した Cs 浸透解析

### (a) はじめに

本項では、相平衡計算モジュールと物質移行計算モジュールを連成させた解析コード（相平衡物質移行シミュレーション）を使用し、Cs のモルタルへの浸透を解析した。

2013 年度は、Cs の浸透解析を行うにあたり、C-S-H と Cs との相互作用に関する相平衡パラメータについて検討を行った。一方、Na や K と C-S-H との相互作用（C-S-H による Na、K の収着）については、既往の文献値を使用するのみで、これまで具体的な検討を行ってこなかった。本研究において Cs 浸透の環境条件としている飛灰抽出液には、Na および K が高濃度で存在し、C-S-H との相互作用において Na や K が Cs と競合的な作用を生じさせることが考えられる。そこで、本研究では、C-S-H と Na、K との相互作用に関する相平衡パラメータの最適化を行い、その値を用いて、Na、K 共存下での Cs の浸透解析を行った。

### (b) 相平衡モデルの概要

ここでは、Nonat ら<sup>[17]</sup>の C-S-H 溶解平衡モデルを Phreeqc 上に実装し、相平衡論に基づいてセメント硬化体の相組成を計算するモデルを用いた。Nonat らの C-S-H 溶解平衡モデルは、C-S-H 内の層状ケイ酸塩構造を構成するシリケート 2 量体の溶解平衡と、層状ケイ酸塩のシラノール基 -SiOH の反応に関する複数の反応式で構成され、各反応式に対し熱力学的平衡定数が与えられている。C-S-H 表面はシラノール基の解離によって帯電し EDL を形成する。C-S-H の表面電位  $\psi_0$  と EDL 内の電荷分布は Poisson – Boltzmann 方程式によって支配され、これを解くことにより EDL の組成が求められる。一方、EDL を除く液相の組成、および生成する固相の種類とその量は相平衡論に基づき算定される。本モデルで用いた水和物の反応式とその  $\log K_p$  を表 1.4-39 に示す。これ以外に用いる液相化学種や固相の反応式と平衡定数については、Phreeqc に付属のもの (Wateq4f) と、セメント水和物について整備された Lothenbach ら<sup>[18]</sup>のものを併用して用いた。

表 1.4-39 各水和物の反応式とその熱力学的平衡定数 (25°C) [18]

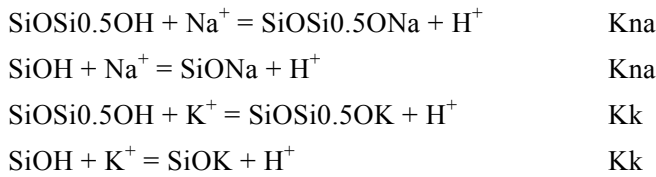
Phase	Reaction equation	$\log K_{sp}$
Portlandite	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	22.8 <sup>a</sup>
Calcite	$\text{CaCO}_3 + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.849 <sup>b</sup>
Brucite	$\text{Mg}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Mg}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	16.84 <sup>b</sup>
Ettringite	$\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O} = 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 6\text{Ca}^{2+} + 26\text{H}_2\text{O} + 4\text{OH}^- + 3\text{SO}_4^{2-}$	-45.09 <sup>b</sup>
Monosulfate	$\text{C}_3\text{ACaSO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O} + 12\text{H}^+ = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}^{3+} + \text{SO}_4^{2-} + 18\text{H}_2\text{O}$	71.01 <sup>c</sup>
Friedel's salt	$\text{C}_3\text{ACaCl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 2\text{Cl}^- + 4\text{OH}^-$	-27.1 <sup>d</sup>
C <sub>4</sub> AH <sub>13</sub>	$\text{C}_4\text{A} \cdot 13\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 6\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-25.56 <sup>b</sup>
Monocarbonate	$\text{C}_3\text{ACaCO}_3 \cdot 11\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + \text{CO}_3^{2-} + 4\text{OH}^- + 5\text{H}_2\text{O}$	-31.47 <sup>b</sup>
C <sub>4</sub> FH <sub>13</sub>	$\text{C}_4\text{F} \cdot 13\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Fe}(\text{OH})_4^- + 6\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-29.4 <sup>b</sup>
C-S-H particle	$\text{Ca}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_2 + 4\text{H}^+ + \text{H}_2\text{O} = 2\text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_4\text{SiO}_4$	29.6 <sup>e</sup>
C-S-H internal and external surface sites	$-\text{SiOH} = -\text{SiO}^- + \text{H}^+$	-11.8 <sup>e</sup>
	$-\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} = -\text{SiOCa}^+ + \text{H}^+$	-9.0 <sup>e</sup>
	$-\text{SiOH} + -\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} = -\text{SiOCaOSi-} + 2\text{H}^+$	-20.4 <sup>e</sup>
	$-\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{O} = -\text{SiOCaOH} + 2\text{H}^+$	-24.85 <sup>e</sup>
	$-\text{SiOH} + -\text{SiOH} + \text{H}_4\text{SiO}_4 = -\text{SiOSi}(\text{OH})_2\text{OSi-} + 2\text{H}_2\text{O}$	7.0 <sup>e</sup>

a: WATEQ4F    b: Lothenbach et al.    c: Reardon    d: Birnin-Yauri and Glasser    e: Benard et al

**(c) C-S-HによるNa、Kの収着機構のモデル化**

本研究では、C-S-HによるNa、Kの収着機構のモデル化として、C-S-H上のシラノール基(-SiOH)と液相中のNa、Kが結合する表面錯体反応をPhreeqC上で再現するモデルの構築を行った。

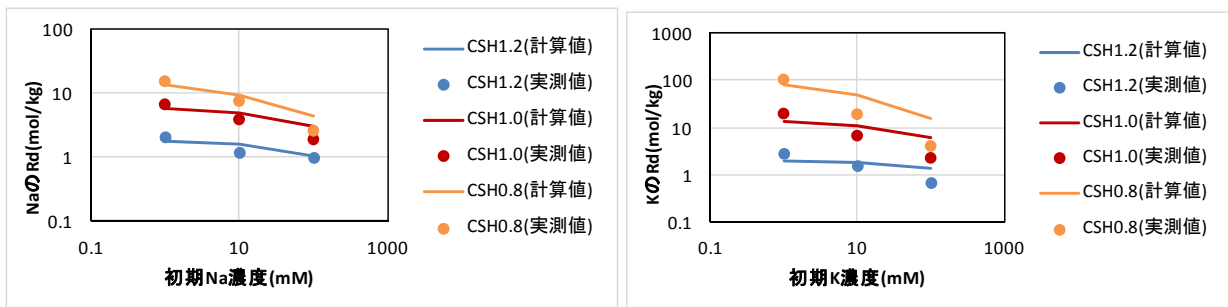
シラノール基-SiOHとNa、Kとの反応を下式のように定義し、これらをNonatらのC-S-H溶解平衡モデルに加えることでシラノール基とNa、Kとの反応をPhreeqC上に実装した。各反応式の熱力学的平衡定数Kna、Kkは、4.3.1の合成C-S-HによるNa、Kの収着試験結果を使用して、上述のPhreeqCによりフィッティングして求めた。このとき、C-S-H表面上の電気二重層(EDL)の厚さを決定する比例定数 $\chi$ の厚 $s_0$ の $^{-1}$ ( $\chi$ は比例定数、 $t_s$ はEDL厚さ、 $\kappa^{-1}$ はデバイ長)は1.0とした。



フィッティングによって得られたKnaおよびKkの値を表1.4-40に示す。C-S-HのCa/Siが小さいほど、KnaとKkとの差が大きくなった。これは、Ca/Siが小さいほど、NaとKの分配係数(Rd)の差が大きくなる実験結果を反映したものである。

**表 1.4-40 フィッティングによって得られた熱力学的平衡定数 log Kna および log Kk**

C-S-H の Ca/Si	Log Kna	Log Kk
0.8	-10.8	-9.9
1.0	-11.4	-10.9
1.2	-12.1	-11.9



**図 1.4-140 分配係数の実験値と計算値 (左：Naの分配係数、右：Kの分配係数)**

図1.4-140に、得られたKnaおよびKkを用いて、相平衡モデルで再現したNaおよびKのRdを示す(同図には実験で得られた分配比(Rd)も併せて示す)。

NaのRdについてみると、相平衡モデルの計算値は概ね実測値と整合しているが、初期Na濃度が高くCa/Siが低い場合に、実測値との乖離が認められた。KのRdについては、初期濃度が高くCa/Siが低いほど生じる実測値との乖離が、Naの場合よりも顕著になった。

**(d) 相平衡物質移行シミュレーションによる Cs 浸透解析**

本項では、物質移行（拡散モデル）と化学反応（相平衡モデル）を連成した相平衡物質移行計算コードを使用し、セメント硬化体中の放射性セシウムの移行解析を行う。拡散モデルは、Poisson-Nernst-Planck 式を支配方程式とし、有限要素法を用いて数値的に支配方程式を解き物質移行を算定する。物質移行と相平衡の連成コードは太平洋セメント（株）のオリジナルコードを使用した。

**①シミュレーションの概要**

本連成コードの概要を図 1.4-141 に示す。この連成コードは、複数の劣化因子がコンクリート内部に浸透する現象、ならびに浸透した劣化因子がセメント成分に化学的に作用し劣化を引き起こす現象を、有限要素法と熱力学的相平衡を組み合わせることによって計算する。すなわち、時間の経過に伴い変化する硬化体中の液相・固相の組成の定量化、換言すれば、液相中の各種液相化学種の移動や水和物による液相化学種の固定、それら水和物の生成・溶解など、劣化現象に関与する多様な化学的因子の挙動を総合的に解析することが可能である。

本連成コードでは、液相化学種は図 1.4-141 のとおり液相中を 1 次元の物質移動モデルに従って移動するものとした。一方、固相中の水和物は、溶解、析出、表面吸着により液相中の液相化学種との間で物質の授受が生じる。その挙動については熱力学的相平衡モデルに従うものとした。

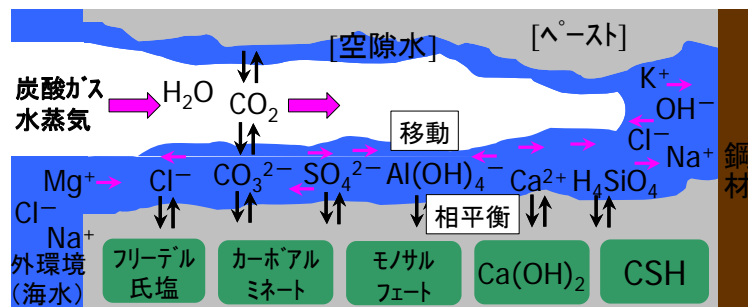


図 1.4-141 セメント硬化体中での物質移動と相平衡の概念図

**②液相の物質移行モデル**

物質移動モデルにおける各種液相化学種の液相中での移動は、Nernst-Planck 式に基づく質量保存則の式(1)、ならびに、液相化学種の移動に伴い生じる静電ポテンシャルφに関する Poisson 方程式(2)に従うものとした。

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = \frac{\delta_i D_i^0}{\tau^2} \cdot \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} + \frac{\delta_i B_i^0}{\tau^2} c_i z_i \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + q_i \tag{1}$$

ここに、*i* : 液相化学種、*t* : 時刻、*x* : 深さ、*c<sub>i</sub>* : 濃度、*D<sub>i</sub><sup>0</sup>* : 自己拡散係数、*B<sub>i</sub><sup>0</sup>* : 絶対移動度、*τ* : 空隙の屈曲度(tortuosity)、*δ<sub>i</sub>* : 空隙の収斂度、*z<sub>i</sub>* : 価数、*q<sub>i</sub>* : 生成・消滅項、

$$\epsilon_w \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = \varphi \sum_i z_i c_i \tag{2}$$

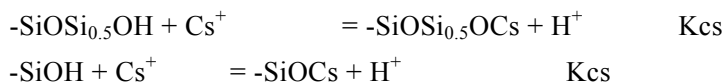
ここに *ε<sub>w</sub>* : 水の誘電率、*φ* : Faraday 定数、である。



### ③相平衡モデル

Cs の固定モデルは、2013 年度の検討で構築したモデルを用いた。2013 年度に構築した Cs の固定モデルは、液相中の Cs 濃度領域を低濃度側と高濃度側とに区分し、それぞれの濃度領域に対して、Cs とシラノール基との反応式の熱力学的平衡定数を与えている。

Cs とシラノール基との反応式は以下の通りである。



また、Cs の低濃度側および高濃度側に与えられた  $K_{\text{Cs}}$  は表 8 の通りである。

表 1.4-41 Cs とシラノール基との反応式の log  $K_{\text{Cs}}$

C-S-H		比例定数 $x$	平衡定数 log $K_{\text{Cs}}$	
			対象Cs濃度(mol/L)	
			0.0001-0.01	0.01-1.0
Ca/Si	1.2	1.2	-	-
	1.0		-11.08	-11.97
	0.8		-9.79	-11.09

### ④CsCl 水溶液（高濃度）に浸せきしたモルタル中の物質移行解析

#### (ア)解析水準

セメントの種類 : 2 水準

- ・ OPC モルタル
- ・ FAC モルタル(FA 置換率 30%)

浸せき水溶液の種類 : 3 水準

- ・ 0.5M CsCl 水溶液
- ・ 0.25M CsCl + 0.25 KCl 水溶液
- ・ 0.25M CsCl + 0.25 NaCl 水溶液

上記セメント種類 2 水準×浸せき水溶液 3 水準=6 水準の解析を実施した。

#### (イ)解析条件

- ・ C-S-H とイオンの相互作用に関わる相平衡パラメータ
  - OPC モルタル : 電気二重層(EDL)パラメータ  $x = 1.0$ 
    - シラノール基と Na との反応の平衡定数  $\log(K_{\text{Na}}) = -12.1$
    - シラノール基と K との反応の平衡定数  $\log(K_{\text{Na}}) = -11.9$
  - FAC モルタル : 電気二重層(EDL)パラメータ  $x = 1.0$ 
    - シラノール基と Cs との反応の平衡定数  $\log(K_{\text{Cs}}) = -11.97$
    - シラノール基と Na との反応の平衡定数  $\log(K_{\text{Na}}) = -11.4$
    - シラノール基と K との反応の平衡定数  $\log(K_{\text{Na}}) = -10.9$

※ Cs の濃度範囲が主に 0.01~1.0mol/L であること、FAC 中の C-S-H の Ca/Si が約 1.0 であるとの想定に基づき  $\log(K_{\text{Cs}})$ を設定

※ なお、本シミュレーションの相平衡計算では、FAC の水準においても C-S-H の Ca/Si

は 1.3 程度で 1.0 にはならないが、シラノール基と Cs との反応に影響を及ぼすのは C-S-H の Ca/Si ではなくシラノール基の数、すなわち Si の含有量であり、本解析では FAC モルタル中の Si 量を化学組成や水和率に基づいて適切に設定していることから、FAC モルタルの相平衡パラメータとしては上記の設定で問題ないとする。

- 単位セメント量、W/C、S/C
  - OPC モルタル：単位セメント量=513 kg/m<sup>3</sup>、W/C = 50%
  - FAC モルタル：単位セメント量=508 kg/m<sup>3</sup>、W/C = 50%
- 空隙率（水銀圧入式ポロシメータによる実測値）
  - OPC モルタル：15.31 vol%
  - FAC モルタル：17.89 vol%

• Tortuosity

W/C = 50%のコンクリートへの Cl の浸透について、これまでに本シミュレーションにて tortuosity の感度解析を行い、得られた値 = 0.0039<sup>[19]</sup>を OPC モルタルの tortuosity とした。また FAC モルタルについては、フライアッシュセメントを用いたコンクリートの電気泳動試験で得られた実効拡散係数の実測値<sup>[20]</sup>において、フライアッシュセメント（B 種および C 種）の tortuosity がおおむね OPC の 1/3~1/4 であったことから、本研究では OPC の 1/3 の値である 0.0013 を FAC モルタルの tortuosity として設定した。

- OPC モルタル：0.0039
- FAC モルタル：0.0013

- 境界条件 上記浸せき水溶液の濃度に応じて設定
- 初期固相組成

初期固相組成は、使用材料の鉱物組成、浸せき前の OPC モルタル、FAC モルタルのペースト部分の構成鉱物の水和率から与えられる。本研究では、上記モルタルのペースト部分のみを別途練り混ぜてペースト硬化体のサンプルを作製し、モルタルと同様な養生条件で 28 日間養生後、XRD/リートベルト法によりセメント鉱物の反応率、選択溶解法によりフライアッシュ中のガラス相の反応率を測定した。

OPC の鉱物組成を表 1.4-42 に、フライアッシュの鉱物組成を表 1.4-43 に、セメント鉱物ならびにフライアッシュ中のガラス相の反応率を表 1.4-44 に示す。なお、セメント 4 鉱物以外の OPC の構成鉱物の反応率は全て 1.0 とし、フライアッシュ中の 3 つの結晶相 (Mullite、Quartz、Magnetite) の反応率は全て 0.0（すなわちフライアッシュ中の結晶相は水和しない）とした。

表 1.4-42 OPC の鉱物組成 (mass%)

C <sub>3</sub> S	C <sub>2</sub> S	C <sub>3</sub> A	C <sub>4</sub> AF	Periclase	Lime	Gypsum	Bassanite	Calcite	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O
57.160	17.050	8.180	10.190	0.160	0.010	0.830	1.360	5.060	0.340	0.360

表 1.4-43 フライアッシュの鉱物組成 (mass%)

Mullite	Quartz	Magnetite	Glass
19.979	8.760	0.702	70.533

表 1.4-44 セメント鉱物およびフライアッシュ中のガラス相の反応率

	C <sub>3</sub> S	C <sub>2</sub> S	C <sub>3</sub> A	C <sub>4</sub> AF	Glass
OPC ペースト硬化体	0.880	0.592	0.921	0.617	
FAC ペースト硬化体	0.924	0.565	0.801	0.485	0.568

以下の条件は共通とした。

- ・ 解析対象期間（時間領域）：28 日まで
- ・ 解析のタイムステップ  $dt$ ：24 時間
- ・ 解析対象空間領域：20mm（コンクリート表面から深さ 20mm）
- ・ 空間分割数：30
- ・ 解析対象とした化学種の種類とその拡散係数  $D_i^0$  (m<sup>2</sup>/s)：表 1.4-45 に記載のとおり

表 1.4-45 解析対象とした化学種とその拡散係数 (m/s × 10<sup>-9</sup>) [21]

Cl <sup>-</sup> 2.03	Na <sup>+</sup> 1.33	Ca <sup>2+</sup> 0.791	CaOH <sup>+</sup> 0.791	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 1.07	K <sup>+</sup> 1.96	OH <sup>-</sup> 5.27	H <sub>3</sub> SiO <sub>4</sub> <sup>-</sup> 1.10	Cs <sup>+</sup> 2.06
Al(OH) <sub>4</sub> <sup>-</sup> 1.04	Fe(OH) <sub>4</sub> <sup>-</sup> 0.719	CaCO <sub>3</sub> 0.446	NaCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 0.585	H <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 1.10	CaSO <sub>4</sub> 0.471	NaSO <sub>4</sub> <sup>-</sup> 0.618	KSO <sub>4</sub> <sup>-</sup> 0.746	

※Cs<sup>+</sup>の拡散係数は PhreeqC に同梱のデータベースファイル'Phreeqd.dat'に記載の値を用いた。

## (ウ) 解析結果

### ア) 概要

全水準の移行解析結果について、液相組成の分布を図 1.4-142、ペースト部の固相組成の分布を図 1.4-143、C-S-H の電気二重層 (EDL) の組成の分布を図 1.4-144 に、Cs が付加したシラノール基の分布を図 1.4-145 に、元素の総量の分布を図 1.4-146 に示す。また、元素の総量の分布については、解析結果と測定結果 (EPMA) を比較して図 1.4-147 (OPC モルタル) および図 1.4-148 (FAC モルタル) に示す。

なお、各図に示された略号の意味は以下のとおり。

#### (A) ペースト部分の固相組成の分布

AFm(Cl):フリーデル氏塩                      Ett:エトリンガイト    Mc:モノカーボネート  
 CC:カルサイト    CH:ポルトランダイト  
 AFm(S):モノサルフェート    C<sub>4</sub>FH<sub>13</sub>:カルシウムフェライト水和物  
 C<sub>4</sub>AH<sub>13</sub>:カルシウムアルミネート水和物                      Bru:ブルサイト  
 Un<sub>react</sub>FA    未水和の FA    Un<sub>react</sub>OPC    未水和のセメント

#### (B) 電気二重層(EDL)の組成の分布

EDL(x): 電気二重層中に存在する化学種 X の物質質量

#### (C) 硬化体中の各元素の総量の分布

Tot<sub>X</sub>: 硬化体中の各相（液相、固相、電気二重層）に存在する化学種 X の総量

## イ) 液相組成の分布の解析結果

Na および K と C-S-H 上のシラノール基との反応をモデルに加えたことから、Na および K の浸

透挙動は、シラノール基との反応がないモデルの結果に比べ、シラノール基が Na、K を消費するため、液相中の Na および K の濃度が低下した。それにより、表層付近に生じる Na、K の濃度勾配が顕著になった。C-S-H の Ca/Si が小さいほどシラノール基のアルカリイオンの結合量が増えるため、OPC よりも FAC のほうが、Na および K と C-S-H 上のシラノール基との反応をモデルに加えたことによる差異が大きくなった。また、Na および K と C-S-H 上のシラノール基との結合反応をモデルに加えたことにより、Cs の浸透深さは 2013 年度より浅くなった。特に、FAC の場合に顕著である。

#### ウ)ペースト部の固相組成の分布の解析結果

Cl の浸透深さが浅くなり、AFm(Cl)相の生成深さが、OPC および FAC のいずれにおいても浅くなった。それ以外の挙動については、Na および K と C-S-H 上のシラノール基との反応をモデルに加えなかった時と同様な結果であった。

#### エ)C-S-H の電気二重層 (EDL) の組成分布の解析結果

Na および K と C-S-H 上のシラノール基との結合反応をモデルに加えたことにより、シラノール基に固定された Na、K の量が増えたため、EDL 中の Na、K の濃度は、2013 年度の解析に比べ大きく低下した。特に、OPC に対して C-S-H の Ca/Si を低く設定した FAC における Na、K の濃度低下は OPC よりも顕著となった。Na、K の濃度が低下したため、対イオンとなる OH の濃度も低下した。Cs および Cl の挙動は、Na および K と C-S-H 上のシラノール基との反応をモデルに加えなかった時と同様な結果であった。

#### オ)Cs、Na および K と結合したシラノール基の分布の解析結果

シラノール基と Na、K との反応モデルは、C-S-H の Ca/Si が低いほど Rd が高くなるという実験結果をフィッティングして構築しているため、OPC よりも FAC のほうが、Na、K と結合しているシラノール基の量が多い解析結果となった。また、Na の Rd よりも K の Rd の方が大きいため、FAC における表層付近の K の濃度勾配が最も急になる結果となった。Cs および Cl の挙動は Na および K と C-S-H 上のシラノール基との反応をモデルに加えなかった時と同様であり、シラノール基と Na、K との反応モデルを組み込んだ影響は認められない。

#### カ)元素の総量の分布の解析結果

今回、シラノール基と Na、K との反応モデルを導入したことにより、0.5M CsCl 水溶液の水準では、Na、K の溶出深さが 2013 年度の解析結果よりも浅くなった。また、KCl、NaCl が共存する水溶液 (0.25M CsCl+0.25M KCl および 0.25M CsCl + 0.25M NaCl) では、表層付近において、K および Na の浸透により生じる濃度勾配が解析結果に表れることとなった。とくに、Rd が最も大きくなる条件 (C-S-H の Ca/Si がより低くなる FAC セメントと、浸せき溶液に KCl が共存する組合せ) では、K の濃度勾配が最も急になる結果となった。

一方、2013 年度実施した試験 (本解析と同一条件によるモルタルの浸せき試験) で得られた各元素の濃度分布の測定値と本解析の濃度分布を比較すると、2013 年度に比べ、Na および K の濃度分布において測定値と解析値との整合性が向上したことが認められた。

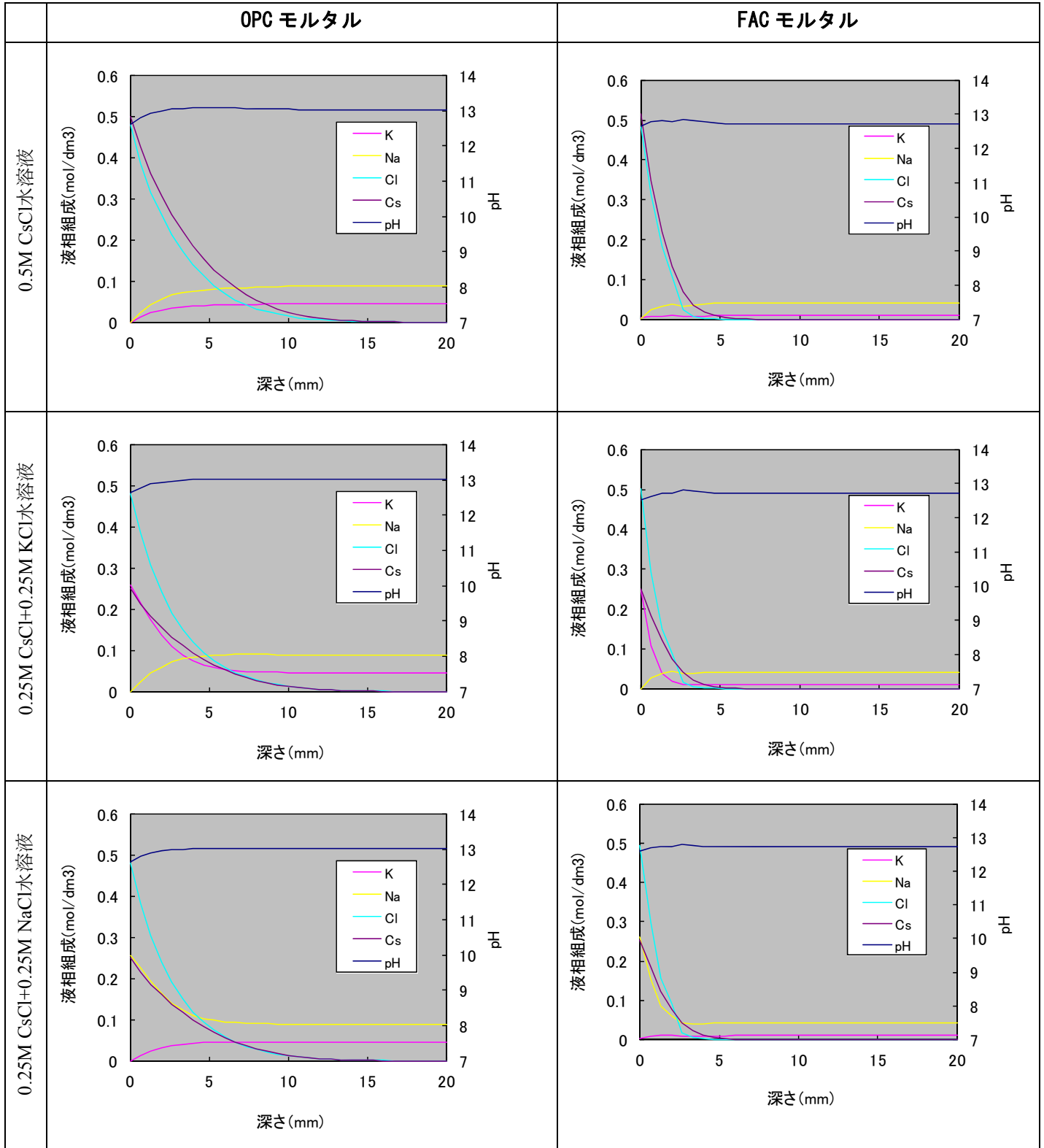


図 1.4-142 液相組成の分布 (高濃度 CsCl 水溶液)

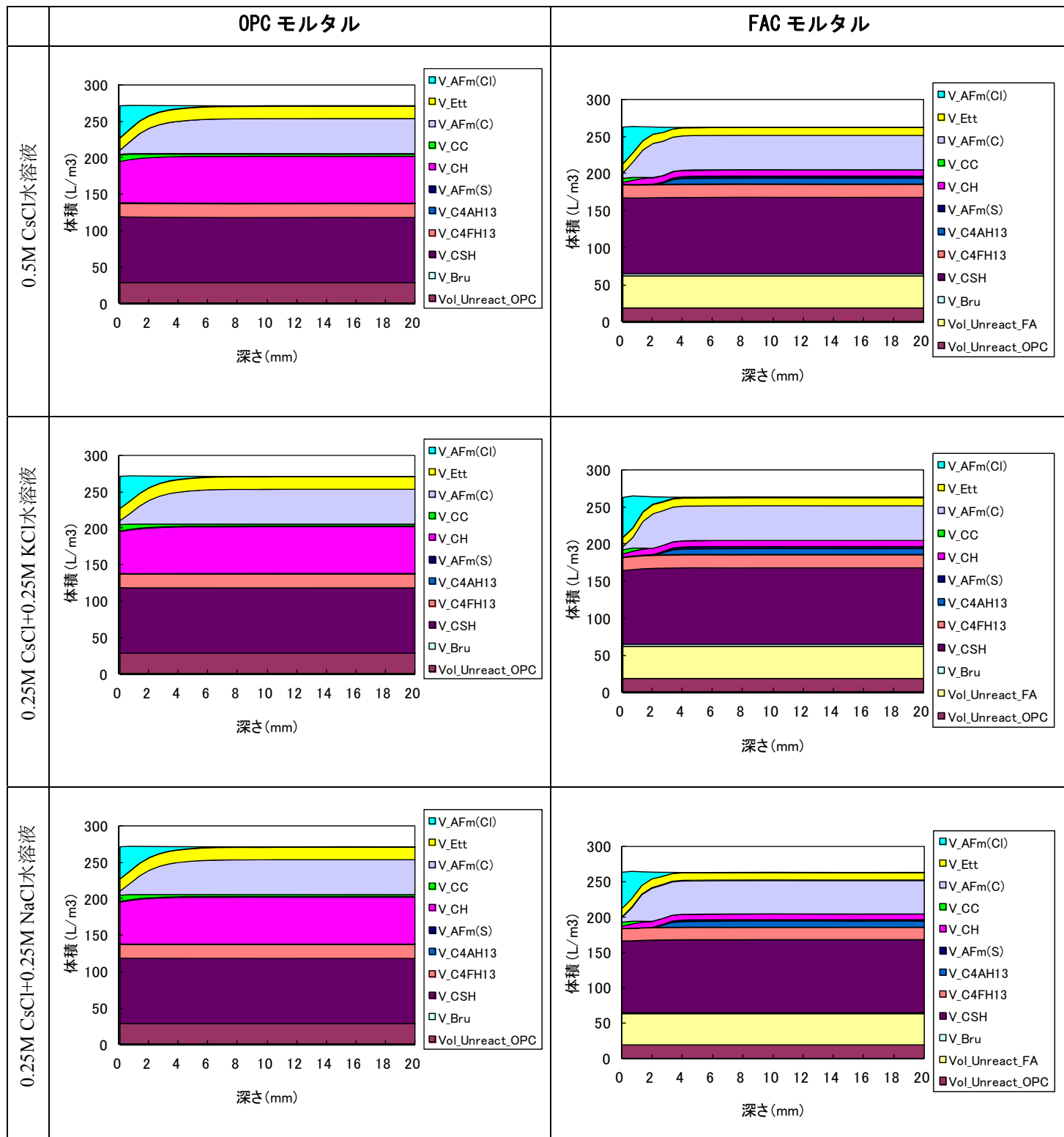


図 1.4-143 ペースト部分の固相組成の分布 (高濃度 CsCl 水溶液)

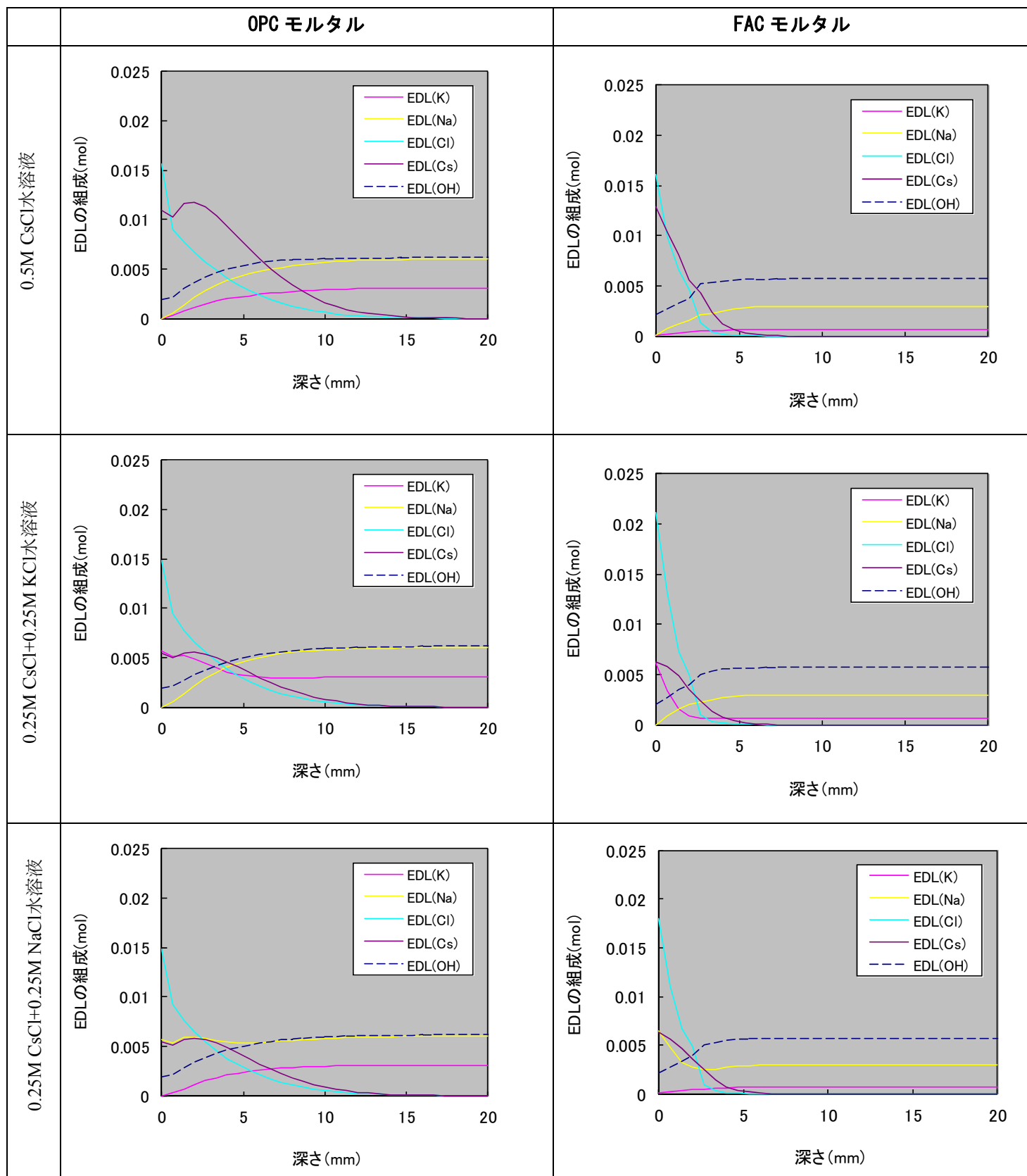


図 1.4-144 C-S-H の電気二重層 (EDL) の組成の分布 (高濃度 CsCl 水溶液)

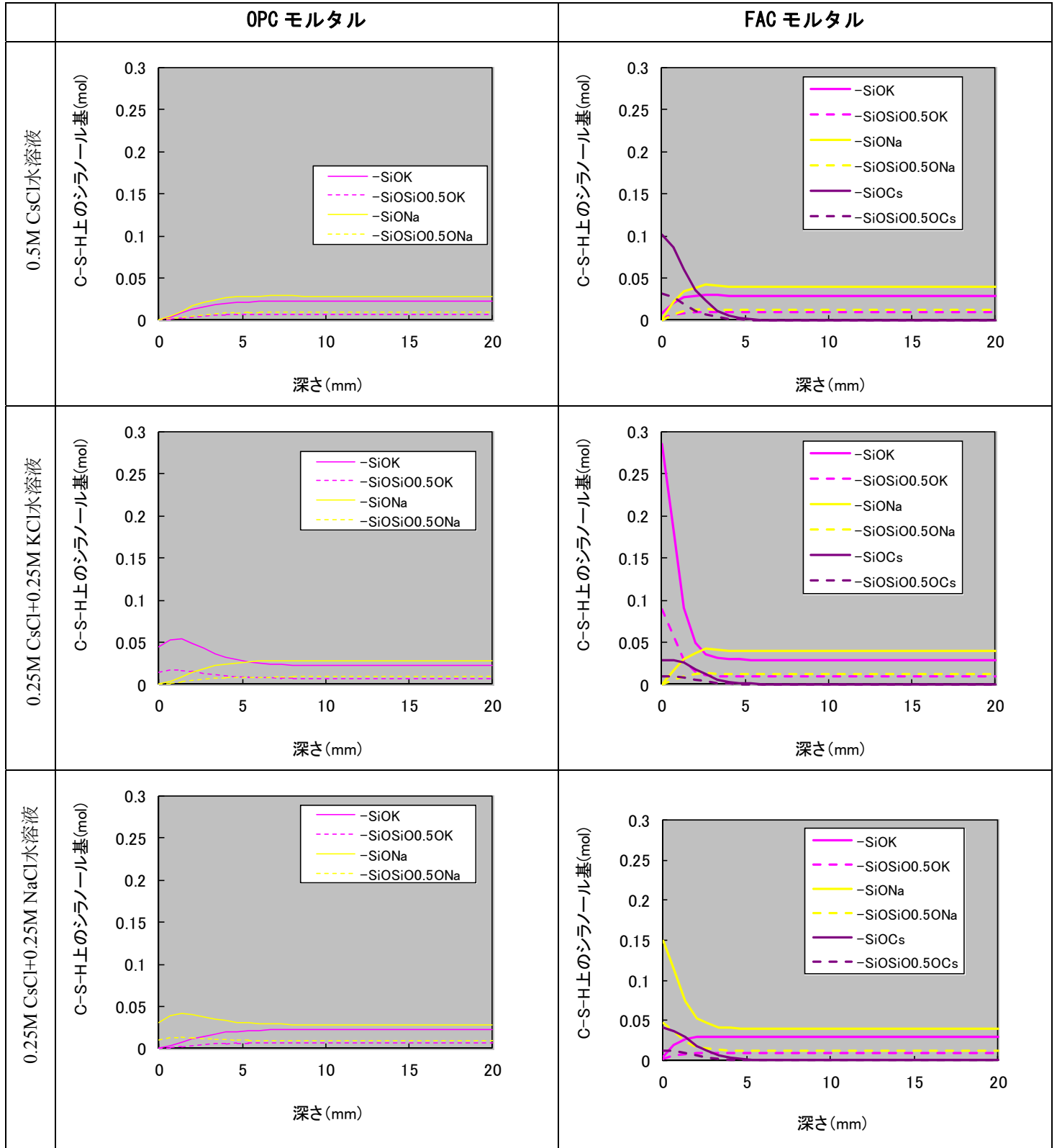


図 1.4-145 Cs が結合したシラノール基の分布 (高濃度 CsCl 水溶液)



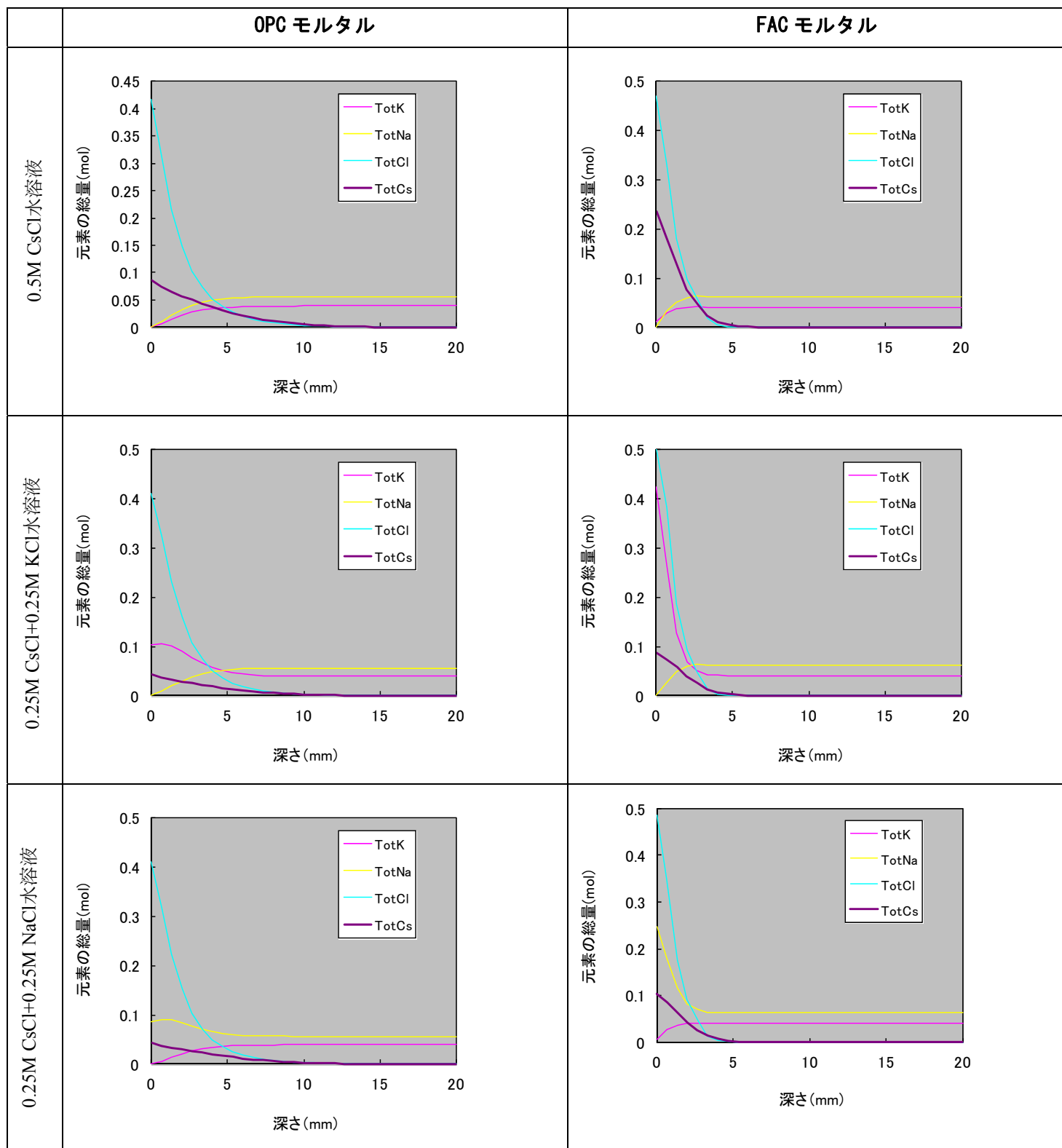


図 1.4-146 元素の総量の分布（高濃度 CsCl 水溶液）

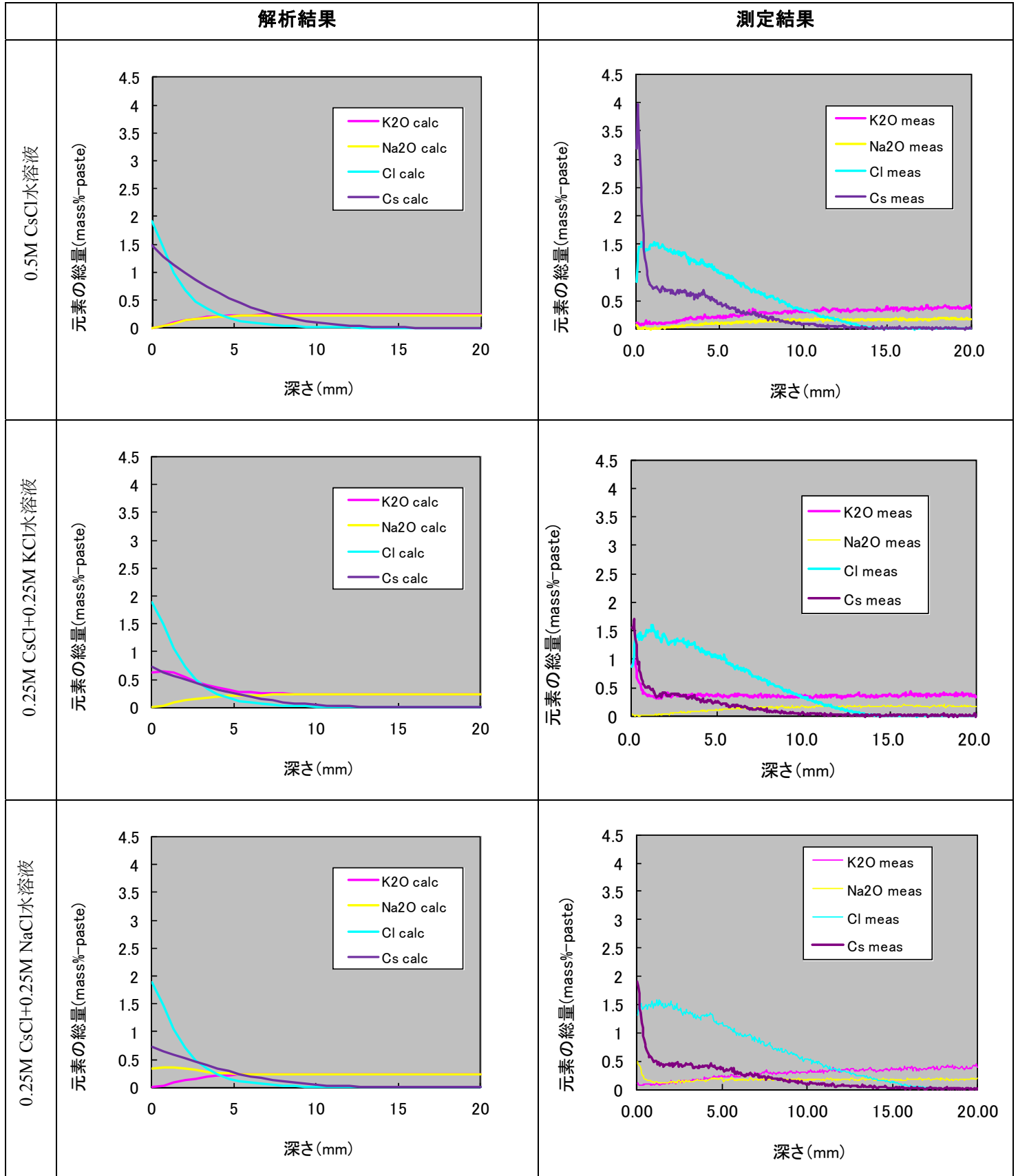


図 1.4-147 OPC モルタルの元素総量の分布と測定結果 (EPMA) の比較 (高濃度 CsCl 水溶液)

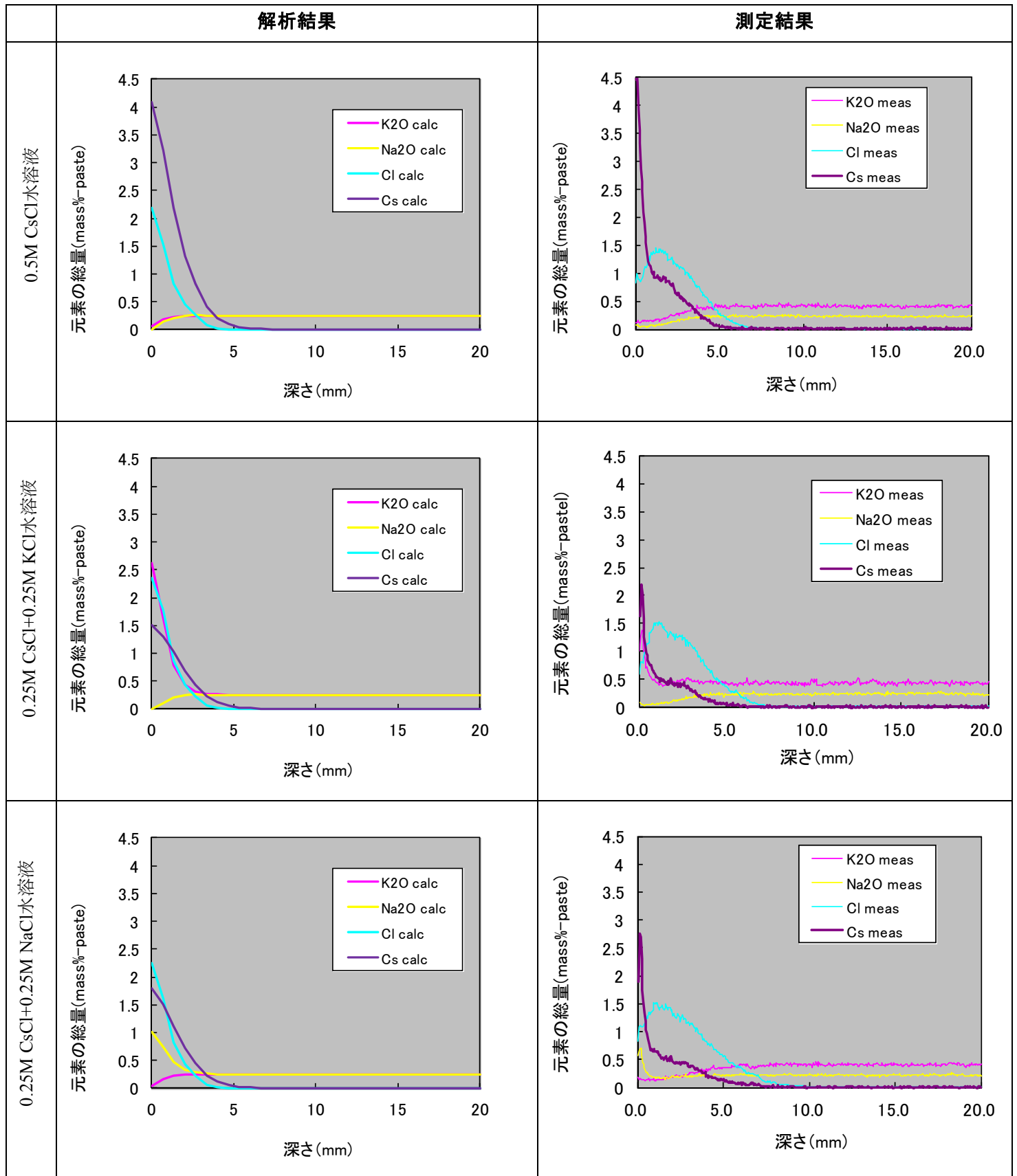


図 1.4-148 FAC モルタルの元素の総量の分布と測定結果 (EPMA) の比較 (高濃度 CsCl 水溶液)

## ⑤CsCl 水溶液（低濃度）に浸せきしたモルタル中の物質移行解析

### (ア)解析水準

- セメントの種類 : 2 水準
  - ・ OPC モルタル
  - ・ FAC モルタル (FA 置換率 30%)
- 浸せき水溶液の種類 : 3 水準
  - ・ 3mM CsCl 水溶液 (Cs 濃度 400ppm に相当)
  - ・ 1.5M CsCl + 1.5 KCl 水溶液

上記セメント種類 2 水準×浸せき水溶液 2 水準=4 水準の解析を実施した。

### (イ)解析条件

- ・ C-S-H とイオンの相互作用に関わる相平衡パラメータ
  - OPC モルタル : 電気二重層(EDL)パラメータ  $x = 1.0$ 
    - シラノール基と Na との反応の平衡定数  $\log(K_{Na}) = -12.1$
    - シラノール基と K との反応の平衡定数  $\log(K_{K}) = -11.9$
  - FAC モルタル : 電気二重層(EDL)パラメータ  $x = 1.0$ 
    - シラノール基と Cs との反応の平衡定数  $\log(K_{Cs}) = -11.08$
    - シラノール基と Na との反応の平衡定数  $\log(K_{Na}) = -11.4$
    - シラノール基と K との反応の平衡定数  $\log(K_{K}) = -10.9$
- ※ Cs の濃度範囲が主に 0.1mmol/L~0.01mol/L であること (Cs400ppm = 約 3mmol/L)、FAC 中の C-S-H の Ca/Si が約 1.0 であるとの想定に基づき  $\log(K_{Cs})$ を設定
- ※ なお、本シミュレーションの相平衡計算では、FAC の水準においても C-S-H の Ca/Si は 1.3 程度で 1.0 にはならないが、シラノール基と Cs との反応に影響を及ぼすのは C-S-H の Ca/Si ではなくシラノール基の数、すなわち Si の含有量であり、本解析では FAC モルタル中の Si 量を化学組成や水和率に基づいて適切に設定していることから、FAC モルタルの相平衡パラメータとしては上記の設定で問題ないとする

そのほかの解析条件は 4.3.2(4)に記載の条件と同一とした。主な数値をここに再掲する。

- ・ 単位セメント量、W/C、S/C
  - OPC モルタル : 単位セメント量=513 kg/m<sup>3</sup>、W/C = 50%
  - FAC モルタル : 単位セメント量=508 kg/m<sup>3</sup>、W/C = 50%
- ・ 空隙率 (水銀圧入式ポロシメータによる実測値)
  - OPC モルタル : 15.31 vol%
  - FAC モルタル : 17.89 vol%
- ・ Tortuosity
  - OPC モルタル : 0.0039
  - FAC モルタル : 0.0013
- ・ 境界条件 上記浸せき水溶液の濃度に応じて設定
- ・ 初期固相組成

初期固相条件、共通条件は前項の条件と同一とした。

**(ウ) 解析結果**

全水準の移行解析結果について、液相組成の分布を図 1.4-149 に、ペースト部の固相組成の分布を図 1.4-150 に、C-S-H の電気二重層 (EDL) の組成の分布を図 1.4-151 に、Cs が結合したシラノール基の分布を図 1.4-152 に、元素の総量の分布を図 1.4-153 に示す。

液相組成、固相組成、EDL の組成およびシラノール基の分布については、高濃度の水溶液の条件で得られた解析結果とほぼ同様な挙動であり、ここではこれらの結果に対する記述は割愛する。

全元素の濃度分布において、OPC と FAC との相違に着目すると、OPC の Cs および Cl の浸透深さが、FAC の浸透深さよりも抑制される結果となった。これは、一般的に FAC の物質浸透抵抗性が OPC より高く、そのことを鑑みて FAC の tortuosity を OPC よりも小さく設定したこと、Cs の Rd が C-S-H の Ca/Si が小さいほど高くなるモデルであること (シラノール基と Cs との反応平衡定数が、C-S-H の Ca/Si が小さいほど小さくなるモデルとなっている)、FAC の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の含有率が OPC より多く、OPC よりも AFm(Cl) の生成量が増えること、以上のことに起因して生じたと考えられる。FAC の Cs の Rd が高く、また AFm(Cl) の生成量が増えているため、表層付近における Cs および Cl の濃度は OPC の場合よりも高い。

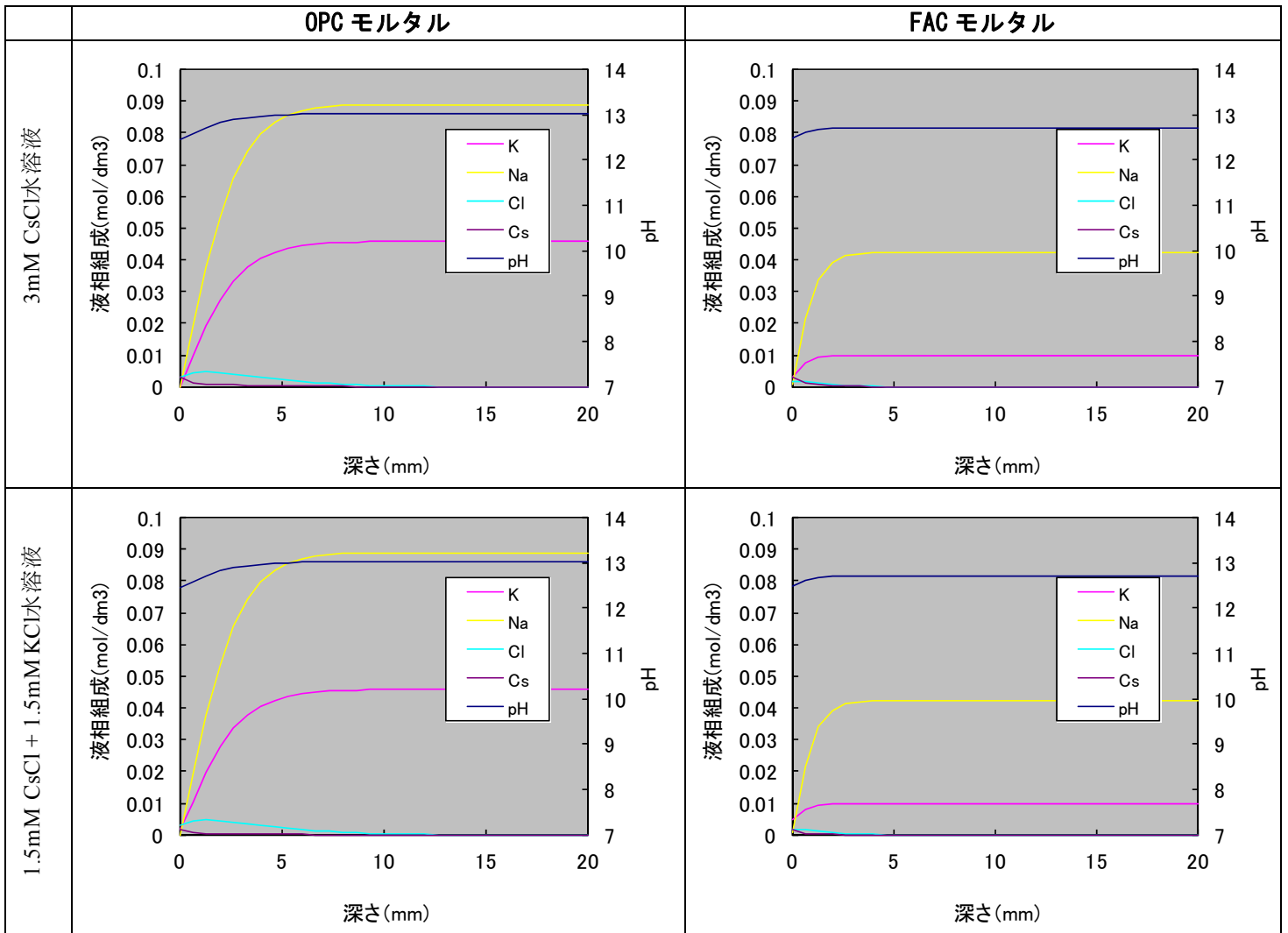


図 1.4-149 液相組成の分布 (低濃度 CsCl 水溶液)

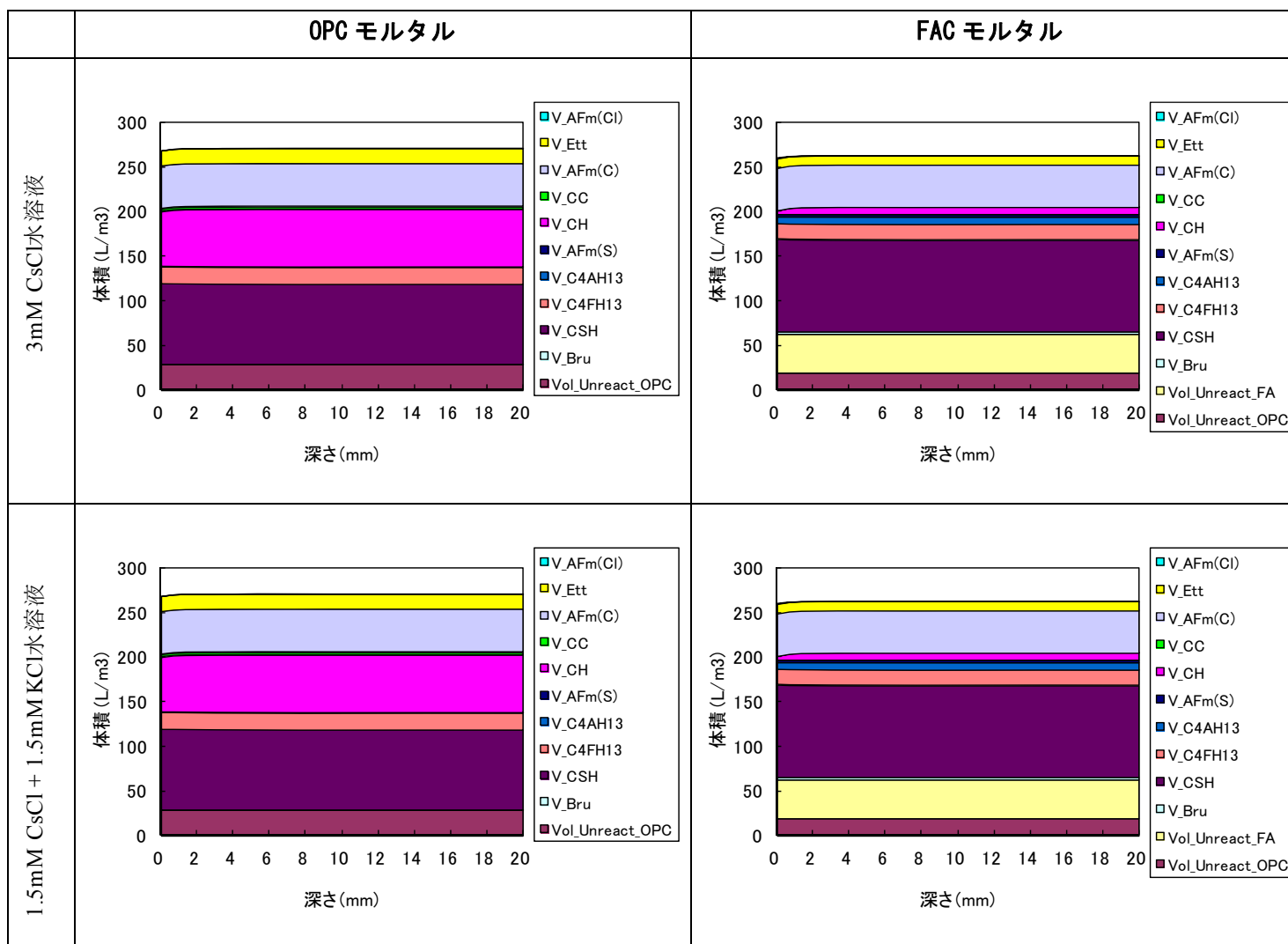


図 1.4-150 ペースト部分の固相組成の分布（低濃度 CsCl 水溶液）

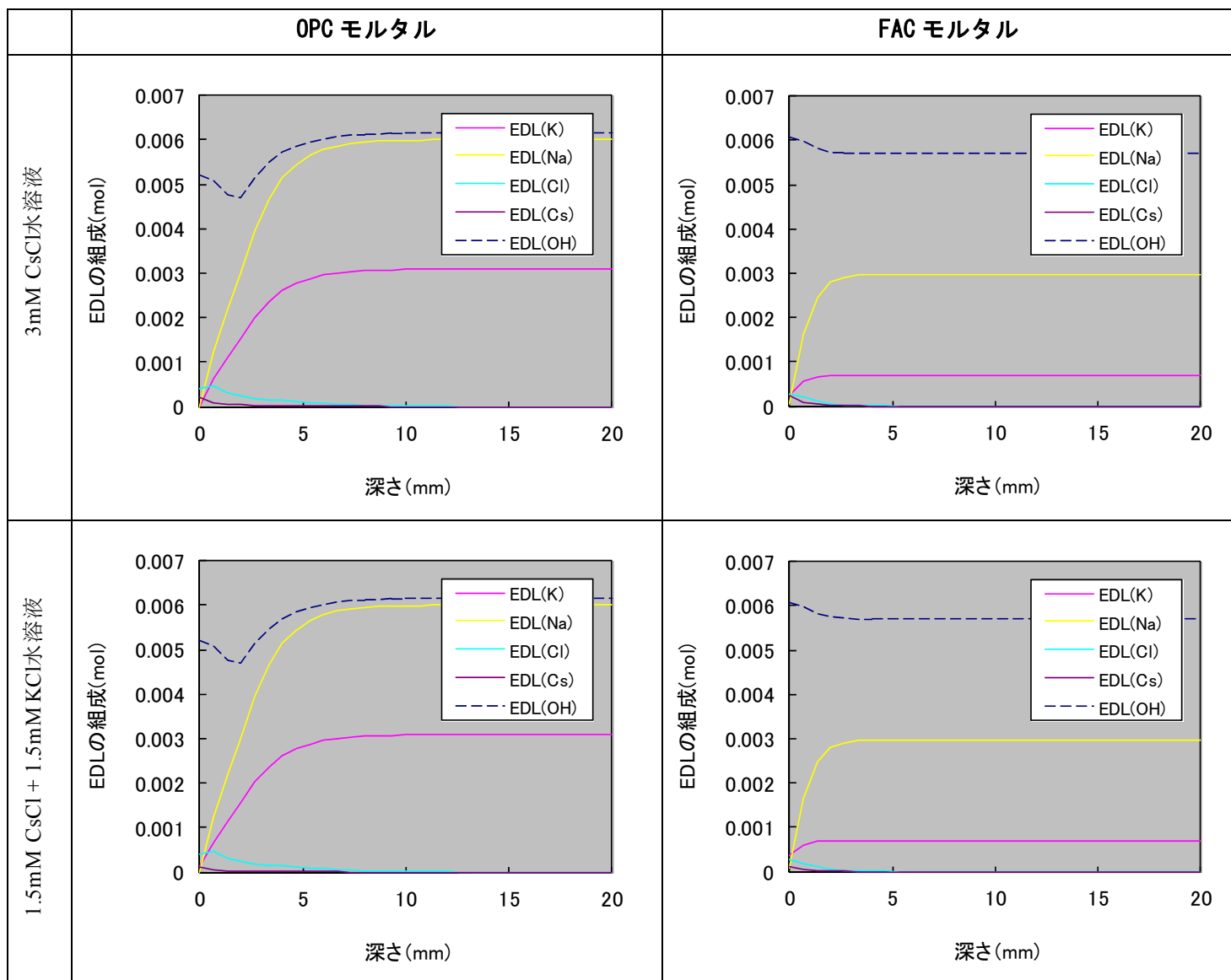


図 1.4-151 C-S-H の電気二重 (EDL) の組成の分布 (低濃度 CsCl 水溶液)

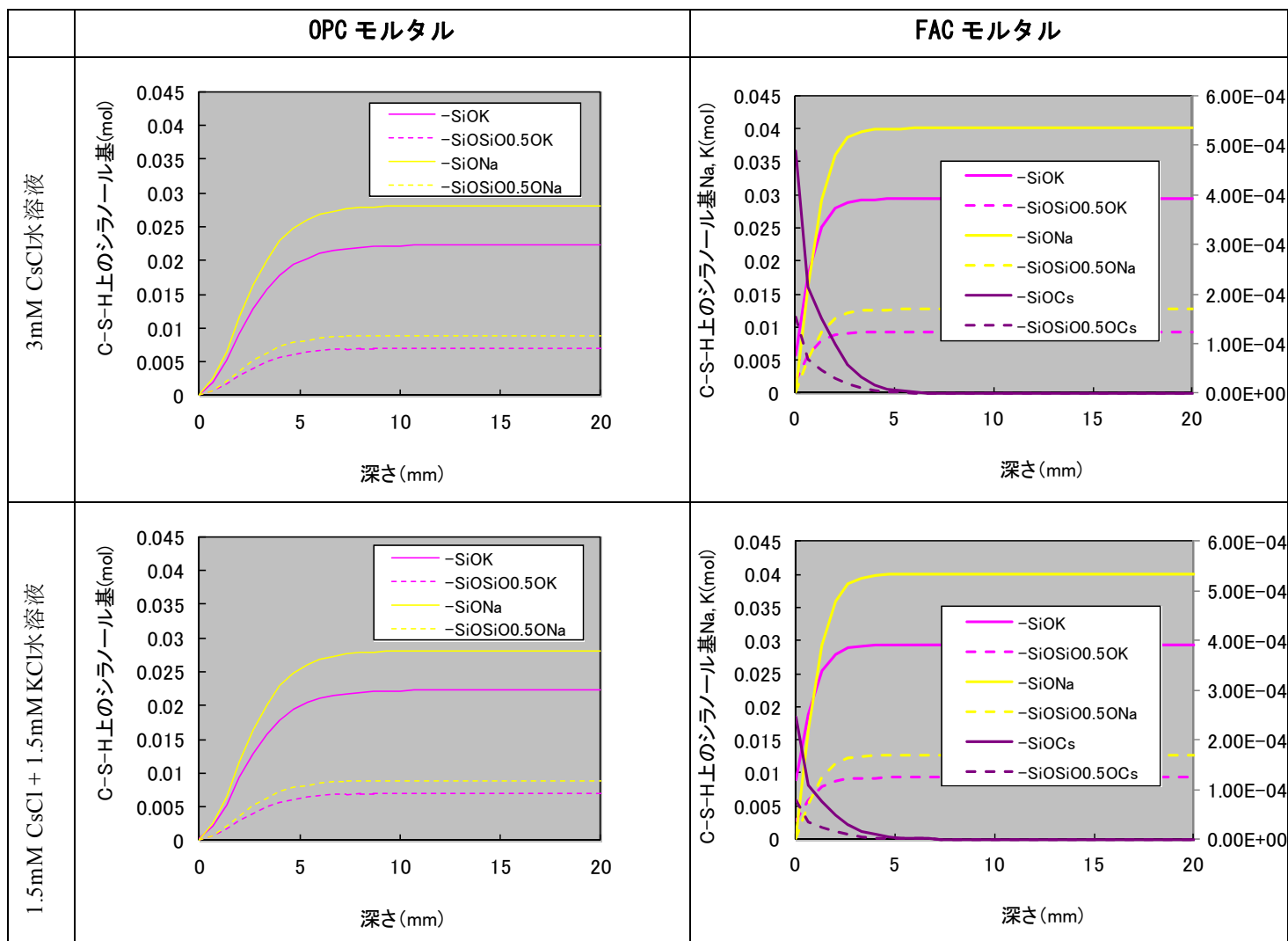


図 1.4-152 Cs が結合したシラノール基の分布 (低濃度 CsCl 水溶液)



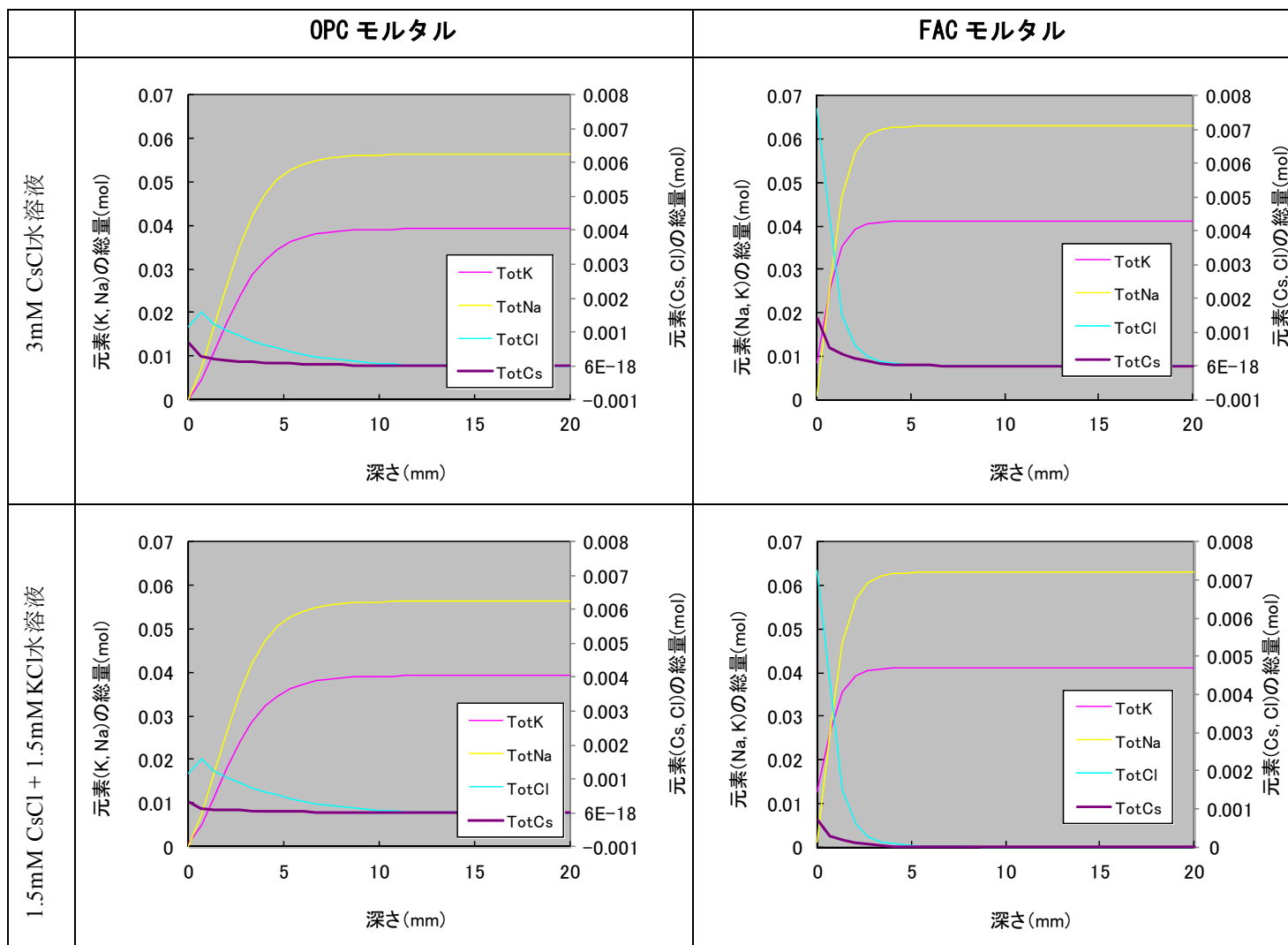


図 1.4-153 元素の総量の分布（低濃度 CsCl 水溶液）

### ⑥CsCl を含有する飛灰抽出液を境界条件としたコンクリートの長期物質移行解析（30 年）

#### (ア) 解析条件

ここでは、想定する解析対象をコンクリートとし、CsCl を含有する飛灰抽出液の組成を境界条件として、30 年間、同飛灰抽出液がコンクリートに接したときのコンクリート中の物質移行解析を実施した。表 1.4-46 は、液固比 0.25 で練り混ぜた飛灰ペーストの液相組成である。飛灰抽出液の組成の境界条件としては、表 1.4-46 の組成となるように NaCl、KCl、CaCl<sub>2</sub>、Ca(OH)<sub>2</sub> の量を設定し、さらに、飛灰抽出液中の Cs 濃度が 400ppm となるように CsCl 量を加えた組成を、本解析での境界条件とした。

表 1.4-46 液固比 0.25 で練り混ぜた飛灰ペーストの液相組成

成分濃度(mol/dm <sup>3</sup> )				pH
Na	K	Ca	Cl	
2.55	1.32	1.38	6.61	11.05

### 【解析水準】

セメントの種類：2水準

- ・ OPC コンクリート
- ・ FAC コンクリート(FA 置換率 30%)

### 【解析条件】

W/C = 40%のコンクリートを想定し、以下の数値を設定した。

- ・ Cs の相平衡パラメータ
  - OPC モルタル：電気二重層(EDL)パラメータ  $x = 1.0$   
シラノール基と Na との反応の平衡定数  $\log(K_{na}) = -12.1$   
シラノール基と K との反応の平衡定数  $\log(K_{na}) = -11.9$
  - FAC モルタル：電気二重層(EDL)パラメータ  $x = 1.0$   
シラノール基と Cs との反応の平衡定数  $\log(K_{cs}) = -11.97$   
シラノール基と Na との反応の平衡定数  $\log(K_{na}) = -11.4$   
シラノール基と K との反応の平衡定数  $\log(K_{na}) = -10.9$
- ※ Cs の濃度範囲が主に 0.1mmol/L~0.01mol/L であること (Cs400ppm = 約 3mmol/L)、FAC 中の C-S-H の Ca/Si が約 1.0 であるとの想定に基づき  $\log(K_{cs})$ を設定
- ※ なお、本シミュレーションの相平衡計算では、FAC の水準においても C-S-H の Ca/Si は 1.3 程度で 1.0 にはならないが、シラノール基と Cs との反応に影響を及ぼすのは C-S-H の Ca/Si ではなくシラノール基の数、すなわち Si の含有量であり、本解析では FAC モルタル中の Si 量を化学組成や水和率の観点から適切に設定していることから、FAC モルタルの相平衡パラメータとしては上記の設定で問題ないとする
- ・ 単位セメント量
  - OPC コンクリート：400 kg/m<sup>3</sup>
  - FAC コンクリート：400 kg/m<sup>3</sup>
- ・ 空隙率（既往の実測例に基づく想定値）
  - OPC モルタル：16.0 vol%
  - FAC モルタル：16.0 vol%
- ・ Tortuosity
  - OPC モルタル：0.0039
  - FAC モルタル：0.0013
- ・ 境界条件 上記浸せき水溶液の濃度に応じて設定
- ・ 初期固相組成：4.3.2 (4)の測定値を使用

### 【共通条件】

- ・ 解析対象期間（時間領域）：30年 (= 10950日)
- ・ 解析のタイムステップ  $dt$ ：10日
- ・ 解析対象空間領域：20cm（コンクリート表面から深さ 20cm）
- ・ 空間分割数：40
- ・ 解析対象とした化学種の種類とその拡散係数  $D_i^0$  (m<sup>2</sup>/s)：表 1.4-45 と同一
- ・

## (イ) 解析結果

解析結果を図 1.4-154 に示す。長期移行解析では、シラノール基の濃度分布に特異な挙動が認められた。OPC では、CI の浸透フロント付近にシラノール基の濃度ピークが生じたが、FAC では、CI の浸透フロントに濃度ピークが生じたことに加えて、CI フロントから表層に向かって濃度が上昇する傾向も認められた。長期移行解析では、境界条件が前項までの条件と大きく異なるため、このような複雑な挙動を示すに至ったと考えられる。

全元素の濃度分布についてみると、Na、K とシラノール基との反応モデルを導入した効果は、2013 年度の解析結果と比較した場合、FAC において Na および K の浸透深さが抑制されているところに認められた。

FAC において Na と K の浸透深さが 2013 年度の解析よりも抑制された要因は、シラノール基による Na および K の固定量増加である。このことは、相対的にシラノール基による Cs の固定量が減少したことを意味する。実際に、FAC における Cs の浸透深さは、2013 年度の解析結果よりも深くなり、また、表層における Cs の濃度が低くなっていることが確認できる。

液相組成の分布や EDL の組成の分布については、前項までに示した解析結果と同様な傾向（浸透深さが異なるのみ）であった。固相組成の分布では、表層第 1 層（表面に相当する nod 上）の水和物のうち、AFm 相 (AFm(S)、AFm(Cl)、AFm(C)、 $C_4FH_{13}$ )、Ett、Portlandite が消失し、また、C-S-H の Ca/Si が 0.8 まで大きく低下する解析結果が得られた（図には示していないが、 $Al(OH)_3$  の非晶質相が  $10L/m^3$  ほど生成）。境界条件として設定した飛灰抽出液には、Fe や  $SO_3$  が含まれていないため、これらを含む化学種がコンクリート外へ溶出し、これにより、 $C_4FH_{13}$ 、Ett、AFm(S) が溶解、消失したものと考えられる。また、portlandite の溶解や C-S-H の Ca/Si 低下は、これらの水和物の消失により pH が低下して進行したものであろう。

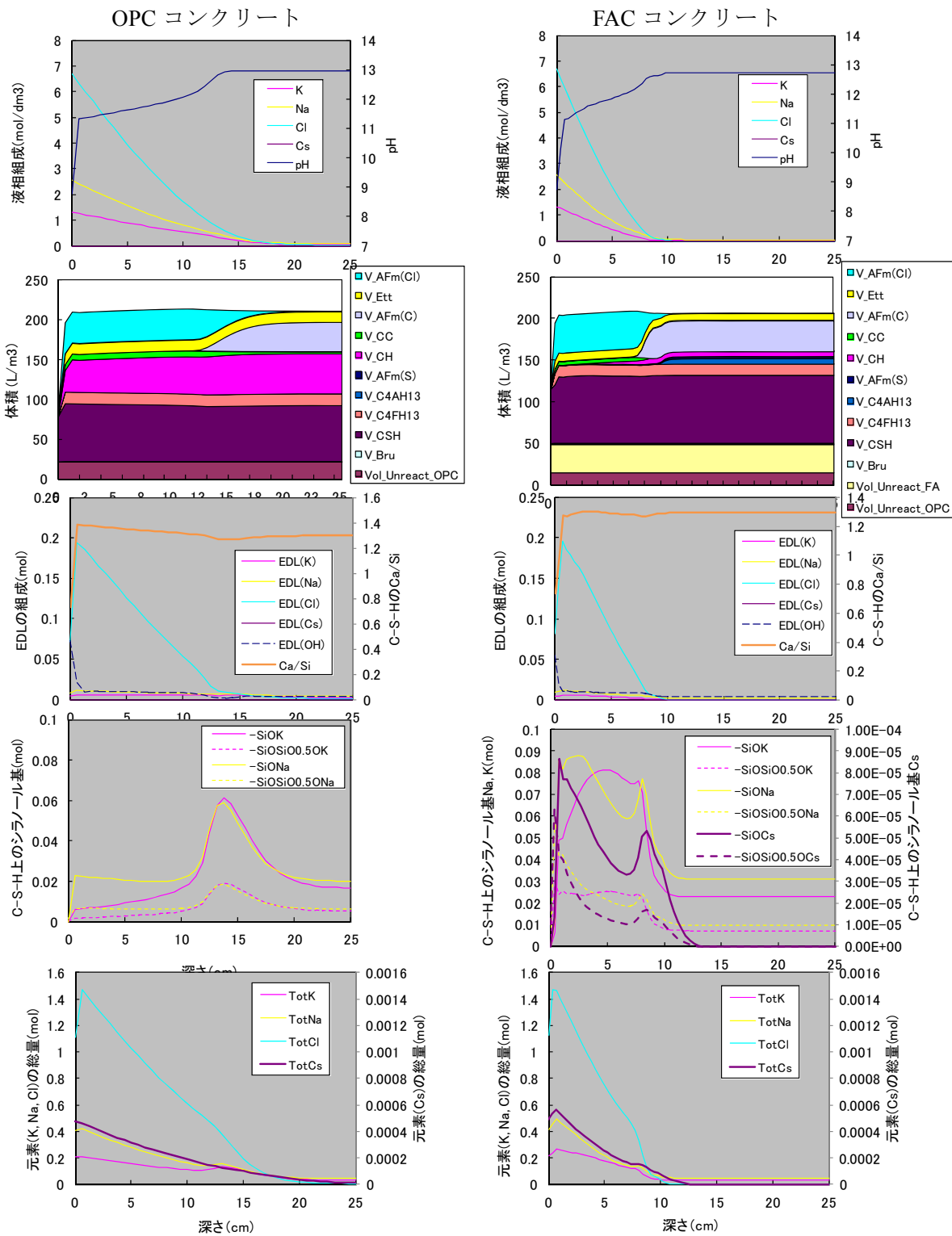


図 1.4-154 CsCl を含有する抽出飛灰液を境界条件としたコンクリートの長期物質移行解析の結果

#### (4) まとめ

放射性 Cs を含有する焼却飛灰をコンクリートピット内に処分することを考え、焼却飛灰の特

性から起きえる現象の解析から検討を始め、Cs のセメント固型化時に有効な不溶化技術の開発、Cs の移動解析、さらにコンクリート中での Cs 移動を考えるための基礎となるセメント水和物と Cs の相互作用解析を行った。

焼却飛灰は潮解性の  $\text{CaCl}_2$  を含有する可能性があり、 $\text{CaCl}_2$  による吸湿に及ぼす任意の温湿度条件の影響と大気からの吸湿による焼却飛灰の 3 次元的吸湿も考慮して液相の発生の定量的計算方法の確立を行った。

焼却飛灰をセメント固型化することを考えると、Cs の特異的吸着剤であるプルシアンブルーは高アルカリのために分解し、吸着能力を失う。しかし、ニッケル錯体とすることで耐アルカリ性が高まり、特定の合成方法を採用することで、安定した吸着能力を発揮できることを明らかにした。

現実の焼却飛灰の最終処分では、飛灰が湿潤になることもないし、湿潤被害がコンクリートと直接接することもないように施設は設計されている。その状況ではあるが、あえて、コンクリートが可溶性 Cs を含有する高濃度塩水と接した場合について、コンクリート中の Cs の移動について予測を行った。飛灰から高濃度塩水が発生するとした場合、粘土による Cs 吸着を阻害する K が 1M オーダーの高濃度で存在し、コンクリートに含まれると期待される少量の粘土による吸着の効果は小さくなる。そこで、移動計算に重要なセメント水和物とアルカリ元素の相互作用について測定し、コンクリート中の空隙の満たす液相と結合材であるセメントペーストを構成する水和物相間でのイオン相互作用を相平衡モデルを用い、かつ多元素物質移動モデルを併用して 30 年後の浸透予測を行った。2013 年度よりもアルカリの挙動を詳細にとらえることができるようになったため、普通コンクリートと対策コンクリートの違いがより明らかになった。飛灰から発生する模擬溶液を考慮した新党では、30 年後に普通コンクリートでは 20mm 程度の浸透が認められたが、対策コンクリートでは 10mm 程度と半減でき、鉄筋位置までに到達しないため、十分な耐久性を有すると考えられる。

#### 1.4.6 コンクリートピットの竣工検査と透気係数測定

##### (1) 表層透気試験の活用

構造物中のコンクリートの物質透過性を、構造物表面から非破壊で測定する手法には、様々なものが提案されている。透気試験としては、シングルチャンバー法、ダブルチャンバー法、トリプルチャンバー法、シール法などの提案がある。このうち、ダブルチャンバー法である表層透気試験（トレント法）<sup>[xii]</sup>は、図 1.4-155 に示すように、巻き込み空気の影響を緩和できること、測定データが数多く蓄積され、耐久性に関する物性値との高い相関が示されていること、測定データの蓄積が多いこと、全自動の測定システムが確立していることなどから、使用実績が増えている。前述したように、信頼性についての課題は残されているが、以下では、海外における基準化の動向や品質管理での活用事例を紹介する。

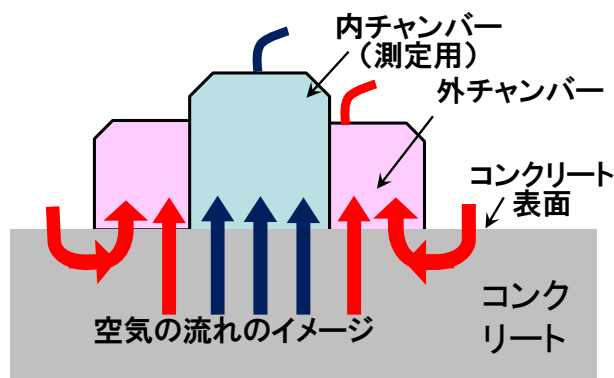


図 1.4-155 表層透気試験（トレント法）[xxii]におけるダブルチャンバー

表層透気試験（トレント法）の基準化は、試験法が開発されたスイスにおいて進められてきた。コンクリート構造物に関するスイス標準規格 SIA 262 は、2003 年に制定され、耐久性能の直接的な検査を求めている。耐久性能の観点からは、特にかぶりコンクリートの品質が重要であるとし、かぶりコンクリートの物質移動抵抗性を、実構造物（あるいは実構造物から採取したコア）において、表層透気試験などの方法によって検査しなければならないとしている。あわせて、実構造物における表層透気試験（トレント法）に関する標準規格（SIA 262/1-付属書 E）も整備された。さらに、実際に試験を行うために必要となる、具体的な試験実施や適合性評価の方法については、2009 年にスイス連邦道路局（ASTRA）より指針 AGB2007/007 が発行され<sup>[xxiii]</sup><sup>[xxiv]</sup>、2013 年 8 月に改訂された SIA 262/1:2013 に全面的に反映されている。ここでは、基準値および適合性評価の方法のほか、付属書において、用語の定義、試験法の原理、試験装置、装置および試験面の準備、試験の実施、試験結果、報告内容、精度が示されている。たとえば、透気試験の結果はコンクリートの含水状態に影響されるが、表面含水率が 5.5% を超えないことなどが記載されている。

表層透気試験を用いた品質管理の有用性は、実構造物のデータからも実証されている。たとえば、アルゼンチンの地下鉄建設工事においては、既設部（第 1 段階）のコンクリートの透気係数を表層透気試験によって測定したところ、ばらつきが大きく、また、透気性も高かったことから、配合や品質管理の強化を行った。その結果、新設部（第 2 段階）のコンクリートの透気係数は、均質で透気係数の小さなものとなっていることが確認された<sup>[xxv]</sup><sup>[xxvi]</sup>。

## (2) 対策コンクリートの表層透気係数

### 1) 概要

対策コンクリートの例として検討したフライアッシュコンクリートについては、表層透気係数の測定データが少なく、品質の良否の判断材料に乏しいと考えられる。そこで、フライアッシュコンクリートの表層透気係数の経時変化を測定し、普通コンクリートとの比較分析を行うこととした。

### 2) 実験条件

実験データは、以下の表 1.4-47 に示すコンクリートについて、表層透気試験（トレント法）[xxii]による表層透気係数、Wenner 法による電気抵抗率、インピーダンス法による表面含水率をそれぞれ

れ測定したものである。コンクリートは、材齢 5 日、14 日、28 日にて脱型を行い、その後、温度 20℃湿度 60%の試験室内に暴露した。試験体は、直径 30cm×高さ 30cm の円柱としている。

表 1.4-47 コンクリートの種類

記号	結合材の種類 OPC：普通ポルトランドセメント FA：フライアッシュ、EX：膨張材	水結合材比 W/B (%)	単位水量 W (kg/m <sup>3</sup> )
N55	OPC	55	163
N40	OPC	40	157
F55	OPC+FA	55	157
F40	OPC+FA	40	151
FE40	OPC+FA+EX	40	151

### 3) 結果と考察

図 1.4-156 に Wenner 法で計測した電気抵抗率、図 1.4-157 にインピーダンス法により計測した表面含水率、図 1.4-158 に表層透気試験（トレント法）により計測した表層透気係数の経時変化をそれぞれ示す。図 1.4-156 および図 1.4-157 より、脱型後にコンクリートが乾燥し、電気抵抗率が増加、表面含水率が低下していることが分かる。乾燥が進行した後に電気抵抗率はフライアッシュコンクリートで特に大きい、表面含水率は結合材の種類によらず 4~5%程度となった。また、脱型材齢の影響は材齢初期の測定で顕著で、脱型が早いものほど乾燥が速いが、材齢 56 日以降ではその影響がほとんどなくなった。

図 1.4-158 より、材齢が経過した場合、W/B が大きい場合、フライアッシュを置換した場合、脱型材齢が若い場合において、測定された表層透気係数が大きくなった。材齢経過による表層透気係数の増加は、図 1.4-156 や図 1.4-157 で示す乾燥により、コンクリート中の空気の移動経路が増加したためである。W/B が大きい場合やフライアッシュを置換した場合には、空隙構造が粗大化して表層透気係数が増加したものと言えるが、フライアッシュを置換した場合については、材齢の経過とともにポズラン反応が進行するため、緻密化して表層透気係数が減少する可能性も考えられる。脱型材齢が若い場合には養生が十分でないために反応が阻害され、緻密にならずに表層透気係数が増加した。養生の影響は、フライアッシュを置換した場合に大きくなる傾向を示した。一方で、膨張材を使用することの表層透気係数への影響は小さかった。

特に材齢 91 日の測定値に着目すると、普通ポルトランドセメントとして標準的な養生期間である材齢 5 日での脱型をした N40 と同程度の表層透気係数をフライアッシュコンクリートで得るためには、同 W/B の F40 であれば養生 28 日と、十分に長い養生が必要となることが分かる。

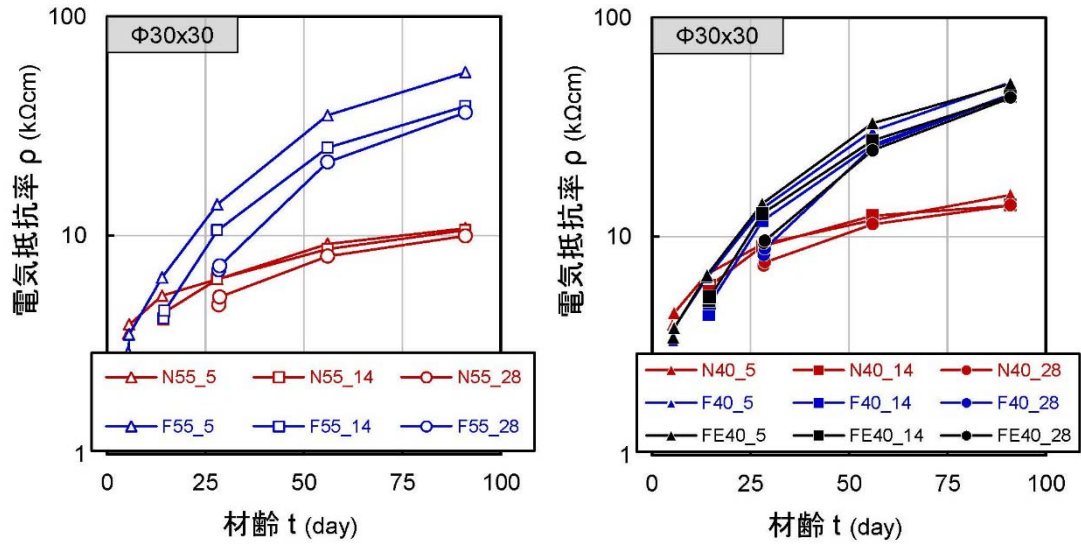


図 1.4-156 電気抵抗率の経時変化 (左 : W/B=55%, 右 : W/B=40%)

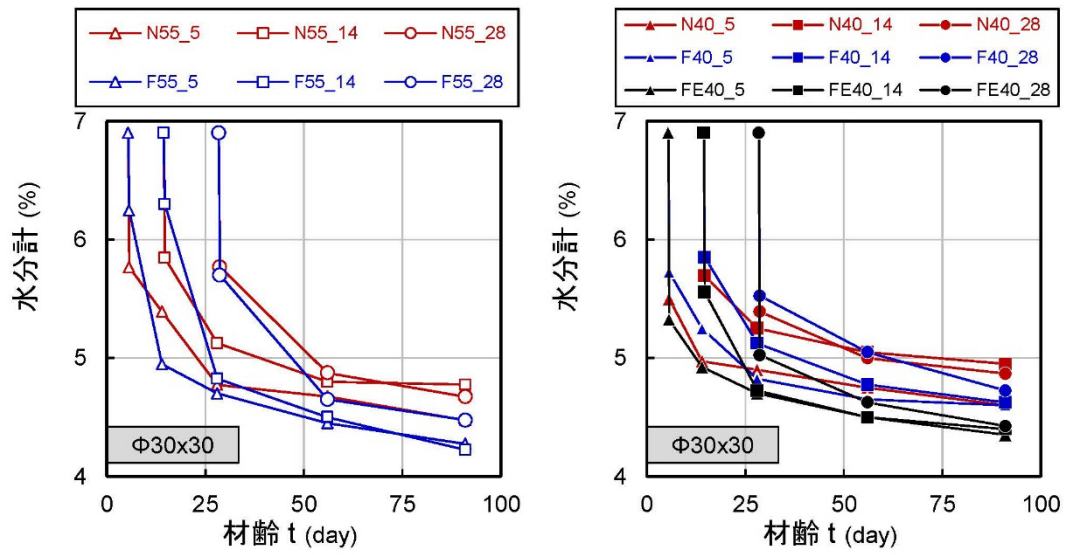


図 1.4-157 表面含水率の経時変化 (左 : W/B=55%, 右 : W/B=40%)



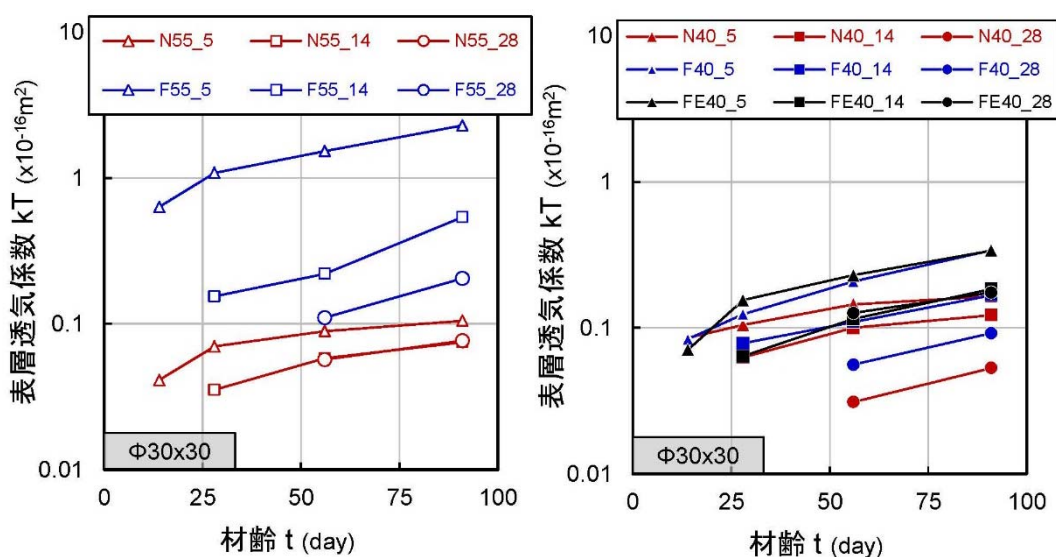


図 1.4-158 表層透気係数の経時変化 (左 : W/B=55%, 右 : W/B=40%)

### (3)セメント固型化体からの水素ガス発生抑制

日本では年間約5千万トンのごみ、すなわち一般廃棄物が発生しており、その約80%が焼却処理されている。その結果生じる焼却灰には焼却炉の底などから排出される主灰と煤塵として集められる飛灰とがある。飛灰の発生量はごみ全量の約3%だが、主灰に比べてはるかに高濃度の有害物質を含む。福島原発事故で放散した放射性Csを含んだ廃棄物の焼却処理においても、Csのほとんどは飛灰に含まれる。したがって、飛灰は有害物質の散逸を防ぐための安全処理を行ったうえで廃棄される必要がある。

焼却飛灰のような飛散しやすい粉体の安定化法の一つに、セメントを用いて固化する方法がある。この方法は焼却飛灰にセメントおよび水を加えて攪拌混合するだけの、簡便かつ安価な安定化法ではあるが、焼却飛灰は、その多くが多量の金属アルミニウムを含むため、これをセメント固化すると、アルカリ性水溶液と金属アルミニウムとの反応によって生じる水素ガスにより固化体が著しく膨張し、脆弱化する。また発生する水素ガスによる爆発事故の危険性もある。しかしながらセメント固化時における水素ガス発生を抑制する適当な手段は、これまで存在しなかった。

セメントによる焼却飛灰の固化は、焼却飛灰に所定量のセメント粉末を加え、これを攪拌しながら徐々に水を加えることによって生じた泥状混合物を型枠に流し込むことによって達成される。この焼却飛灰のセメント固化工程を解析し、水素ガスが発生する機構と考察し、水素ガス発生を防止する方法を開発した。

#### 1) 固型化体作製工程の検討

##### (a) 焼却飛灰とセメントとの混合工程

大気中の粉体粒子間には多量の空気が含まれる。よって焼却飛灰とポルトランドセメントのような粉末を混合する際には、空気が潤滑剤として働くため、粉末粒子の摩耗・破損を避けることができる。粉体の混合法には、混合容器を回転させる方式、固定した混合容器内の混合羽根を回転させる方式、空気で粒子を噴き上げる流動床方式、重力落下方式など様々な方式があるが、混

合時の粒子間に十分な空気が含まれ、焼却飛灰粒子が摩耗・破損しない混合法であれば方式を問わない。焼却飛灰粒子が摩耗・破損されると、金属アルミニウムの表面を覆っている酸化アルミニウム被膜が摩耗・破損するため、アルカリ性水溶液との反応による水素ガス発生が顕著になる。

### (b) 焼却飛灰・セメント混合物への水あるいは塩化カルシウム水溶液の一括注入工程

非水溶性の粉末とセメントの混合物に水を加えて固化体を作成する場合には、一般に混合物を攪拌しながら水を徐々に加える。これは攪拌せずに多量の水を加えることによって混合物に不均等に水が吸収される結果生じる“だま”の発生を防止するためである。しかしながら、焼却飛灰には多量の水溶性塩化ナトリウム、塩化カリウム、および塩化カルシウムが含まれているため、攪拌することなくこれに所定量の水を加えても、“だま”の発生がなく、セメント固化に支障を生じない。

焼却飛灰によっては、酸化アルミニウム被膜の破損がなくても水添加によって水素ガスが発生する可能性があるが、これは水の代わりに塩化カルシウム水溶液を添加することにより防止できる。水素ガス発生防止に必要なとされる水溶液中の塩化カルシウムの濃度は焼却飛灰の性質に依存するが、通常は 10 質量%程度で良い。

### (c) 焼却飛灰とセメントおよび水あるいは塩化カルシウム水溶液の混合法

焼却飛灰とセメントの混合物に、混合物の 40 質量%から 60 質量%の水あるいは塩化カルシウム水溶液を加え、数分間静置することによって水を混合物に行き渡らせたのち、これを静かに混合し、流動性のある泥状混合物を得る。これを型枠に流し込み放置することにより、焼却飛灰のセメント固化体を得る。混合法としては、焼却飛灰粒子が混合によって摩耗・破損しない方法であれば方式を問わない。混合容器を回転させるタンブラー方式などが適している。

## 2) 水素ガス発生挙動の評価

### (a) 使用焼却飛灰

セメント固化体の作製には、普通ポルトランドセメントおよび異なる流動床焼却炉より得られた 3 種の焼却飛灰を用いた。焼却飛灰中の金属アルミニウムおよび水溶性化合物の含量を表 1.4-48 に示す。

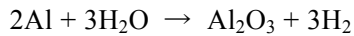
表 1.4-48 焼却飛灰中の金属アルミニウムおよび水溶性化合物の含量 (モル/kg)

飛灰の種類	金属 Al	Ca(OH) <sub>2</sub>	CaCl <sub>2</sub>	NaCl	KCl
飛灰-1	0.53	3.16	0.52	0.69	0.36
飛灰-2	0.39	3.12	0.56	0.66	0.51
飛灰-3	0.47	2.89	0.51	0.52	0.61

焼却飛灰には多量の水酸化カルシウムが含まれているから、これに水を加えると水酸化カルシ

ウムの一部が水に溶解し、水溶液がアルカリ性となる。純水に水酸化カルシウムが飽和量溶解した場合の溶液の pH は 12.6 だが、焼却飛灰には多量の塩化カルシウムが含まれており、これが優先的に水に溶解する結果、水酸化カルシウムの溶解度が低下し、水溶液の pH は水溶液中の塩化カルシウム濃度の増大とともに低下する。

金属アルミニウムの表面は酸化アルミニウム被膜によって保護されている。焼却飛灰に水を添加すると、酸化アルミニウム被膜がアルカリ性水溶液に溶解し、金属アルミニウムと水が直接接触する結果、反応



によって水素ガスが発生する。表 1.4-48 に示す焼却飛灰に水を添加した際の水素ガスの発生量を表 1.4-49 に示す。水素ガス発生量は、焼却飛灰 40g を 200mL の三角フラスコに入れて所定量の水を添加したのち気体捕集袋付きの栓で密栓し、気体捕集袋の体積増加量を測定することによって決定した。水素ガスの発生は水を添加後 2 日以内に始まり、8 日以内に終結した。

酸化アルミニウム保護膜の耐アルカリ性は水溶液の pH が増大するほど低下するので、焼却飛灰に添加する水の量が多いほど、水溶液中の塩化カルシウムの濃度が低く水酸化カルシウムの濃度が高いほど水素ガスの発生量は増大する。酸化アルミニウム保護膜の耐アルカリ性は焼却飛灰の生成環境によって異なるため、水素ガス発生量は同じ水添加量でも焼却飛灰ごとに異なるが、表 1.4-49 に示すように、pH が 11.48 以下では、いずれの焼却飛灰でも水素ガス発生は見られない。

**表 1.4-49 単位質量の焼却飛灰に添加した水の量 (kg/kg) と pH および水素ガス発生量 V (L/kg) の関係**

添加水量	0.5	0.75	1	1.5	2
飛灰-1	pH=11.56 V=0	pH=11.73 V=0	pH=11.82 V=0.9	pH=12.0 V=2.7	pH=12.2 V=3.48
飛灰-2	pH=11.46 V=0	pH=11.65 V=0	pH=11.8 V=0	pH=11.93 V=0	pH=12.03 V=5.5
飛灰-3	pH=11.48 V=0	pH=11.7 V=3.5	pH=11.86 V=5.0	pH=11.98 V=5.0	pH=12.05 V=6.6

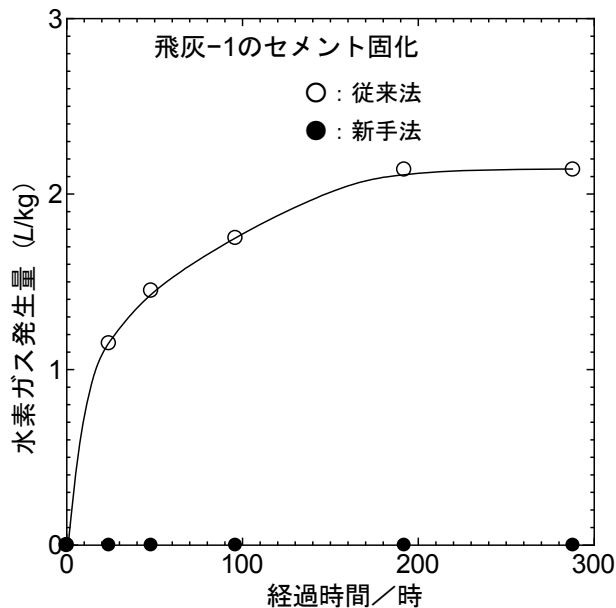


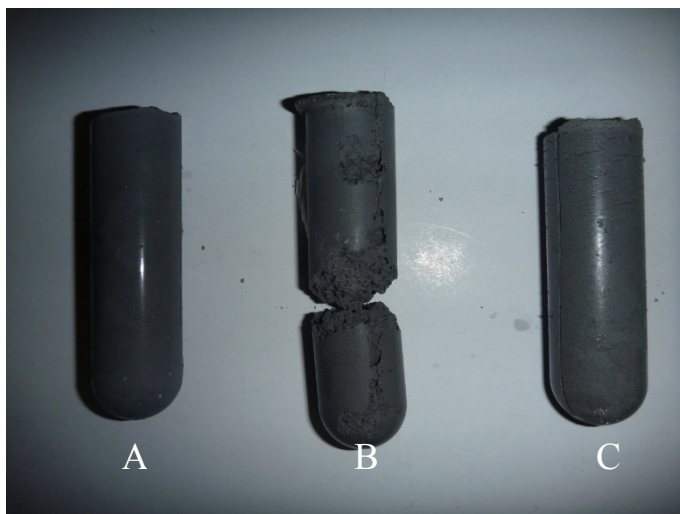
図 1.4-159 飛灰-1 をセメント固化した際の水素ガス発生量  
(焼却飛灰：ポルトランドセメント：水の質量比は 2 : 1 : 1.35)

## 2) セメント固化時の水素ガス発生量とセメント固化体の形状

図 1.4-159 は水素ガス発生を抑制した新手法によるセメント固化法と、粉体を攪拌しつつ加水する従来のセメント固化法での水素ガス発生量を比較したものである。新手法によるセメント固化法では、焼却飛灰 40g と普通ポルトランドセメント 20g を 200mL 三角フラスコに入れ、三角フラスコを回転・振とうして両者を混合してから、これに蒸留水 27g を加えて 3 分放置後、焼却飛灰とセメントおよび水の混合物を葉匙にて静かに攪拌混合したのち、気体捕集袋付きの栓で密栓し、その後の水素ガス測定量を測定した。従来法では、焼却飛灰 50g と普通ポルトランドセメント 25g を金属容器に入れ、これをハンドミキサーで攪拌しながら蒸留水 33.75g を少しずつ加えて得た泥状混合物の内の 87g を 200mL 三角フラスコに移し、これを気体捕集袋付きの栓で密栓して、その後の水素ガス測定量を測定した。図から明らかなように、新手法の場合には水素ガスの発生は無いが、従来法では、泥状混合物から速やかに水素ガスが発生する。

新手法および従来法で作成した飛灰-1 の泥状固化体混合物を、内径 27mm、深さ 90mm のプラスチック試験管に流し込み、室温にて 2 週間放置後試験管から抜き出した時の固化体の形状を図 1.4-160 に示す。新手法で作製した固化体は、水素ガスの発生がないため健全な形状を示すが、従来法で作製した固化体は、水素ガスをその内部に閉じ込めるために脆弱な発泡体となった結果、試験管から抜き出す時に破損した。

上記と同様の固化試験を飛灰-2 について行ったが、飛灰-1 の場合と同様、新手法では水素ガスの発生のない、健全な固化体を得た。また従来法では水素ガス発生による発泡した脆弱な固化体を得た。



**図 1.4-160 新手法および従来法で作成したセメント固化体の形状  
(焼却飛灰：ポルトランドセメント：水の質量比は2：1：1.35)**

\*Aは新手法で作成した飛灰-1の固化体、Bは従来法で作成した飛灰-1の発泡固化体、Cは塩化カルシウム水溶液を使わずに新手法で作成した飛灰-3の固化体

飛灰-1や飛灰-2と同様の固化試験を飛灰-3についても行ったが、飛灰-1や飛灰-2とは異なり、新手法でも水素ガスが発生した。これは飛灰-3に含まれる金属アルミニウム保護被膜の耐アルカリ性が飛灰-1や飛灰-2よりも低いことによる。新手法で得た飛灰-3の固化体の形状を図1.4-160のCに示す。水素ガスの発生による膨張作用により、固化体にひび割れが発生していることがわかる。

新手法で用いた混合法を用い、水の代わりに塩化カルシウム水溶液を焼却灰・セメント混合物に加えれば、水素ガスの発生は阻止できる。その結果を図1.4-161に示す。水素ガス発生量は塩化カルシウム濃度の増加とともに低下し、6.9質量%ではゼロとなる。これは塩化カルシウム濃度の増大とともに保護被膜付Al金属粒子を取り囲む溶液のpHが低下するためである。

以上、焼却飛灰・セメント・水混合時に、焼却飛灰粒子の摩耗・破損を防止し、使用する水の代わりに塩化カルシウム水溶液を用いれば、セメント固化体作製時の水素ガス発生を防止できることが明らかとなった。

表1.4-48に示すように飛灰組成が同様で、同じpHでも表1.4-49に示すように水素発生量が異なる。これは燃焼条件によって金属Alの周りの酸化アルミの耐アルカリ性が異なるためと考えられる。完全にアルミナ化していれば耐アルカリ性は非常に高くなる。したがって、耐アルカリ性を知るには水素ガス発生量を評価することが必要であり、他の分析値を使つての水素ガス発生量を定式化することはできない。

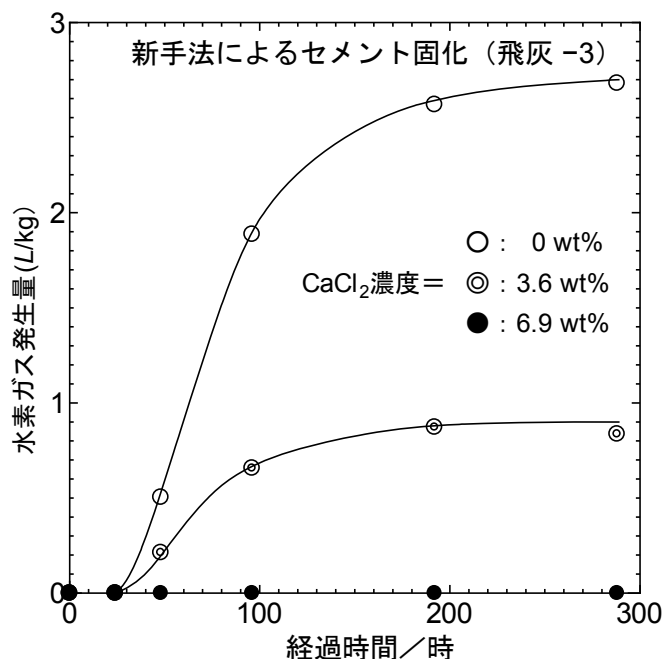


図 1.4-161 飛灰-3 を新手法でセメント固化した際の水素ガス発生量と塩化カルシウム水溶液濃度との関係(焼却飛灰：ポルトランドセメント：水の質量比は2：1：1.35)

### (3) まとめ

セメントによる焼却飛灰の固化は、焼却飛灰に所定量のセメント粉末を加え、これを攪拌しながら徐々に水を加えるこの焼却飛灰のセメント固化工程を解析したところ、水素ガスは、焼却飛灰とセメントおよび水とを攪拌混合する際に機械的に摩耗・破損した焼却飛灰粒子から主に発生していることを見出した。また、以下の方法によれば、セメント固化時における水素ガス発生が著しく抑制され、固化体の膨張が防止できることがわかった。

[1] 焼却飛灰粉末とセメント粉末との、焼却飛灰粒子の摩耗・破損を伴わない混合。

[2] 前記 [1] で作成した焼却飛灰とセメント混合物への、水あるいは塩化カルシウム水溶液の、攪拌作業を伴わない状態での一括注入。

[3] 前記 [2] で作成した焼却飛灰とセメントおよび水との混合物に対する、焼却粒子の摩耗・破損を伴わない攪拌。

このような固化プロセスを用いれば、有害物質と金属アルミニウムを含有する焼却飛灰を安全かつ安価に安定化処理できることがわかった。

### 1.4.7 コンクリート技術適用のまとめ

放射性 Cs を含有する焼却飛灰の安全な処分にコンクリート技術を適用するために、各種の基礎となる情報を取得した。

もっとも重要な成果は、1.4.2 項に示すように、指定廃棄物の遮断型相当の最終処分場建設に関する考え方と基礎情報をまとめた「汚染焼却飛灰廃棄物等の最終処分場のコンクリート技術適用

に関する技術資料」を HP 公開したことである。

通常はあり得ない焼却飛灰への湿分の供給、高濃度塩水の発生、コンクリートとの直接接触という極端な状況を想定し、その場合の対処法をまずは明らかにした。通常はあり得ない状況がもし生成したら、それを早期に検出し、適切な対応を取ることを前提とし、そのような極端な状況でも急激なコンクリートの劣化を避けることができるような建設のために何をなすべきかを定量的に提示した。

1.4.3 項で示したが、濃厚塩水が生じた場合に起きえる現象は、高濃度塩水による鋼材腐食、化学的浸食、 $\text{CaCl}_2$  による乾燥収縮、高濃度塩素によるアルカリ骨材反応 (ASR) である。これらの事象について、実験的に検討し、影響度と対策を示した。鋼材腐食は、発錆限界を超えるかどうか重要であり、高濃度であるからといって、腐食が急激に進むわけではないようであった。化学浸食は重要な課題であるが、石炭火力発電所からのフライアッシュを適切に使用することで抑制可能と考えられた。乾燥収縮についても定量計算ができるように技術開発し、通常のコンクリート (普通コンクリート) に比べ、フライアッシュを添加し水セメント比を低下したコンクリートはひび割れ抵抗性が高まることを定量的に示した。アルカリ骨材反応は普通コンクリートでは、もし反応性が高い骨材を使用すると顕著な膨張を示すことが分かったが、フライアッシュを添加し対策を講じることで抑制可能なことが分かった。

コンクリート構造物の材料設計に関しても現在の技術の限界を示し、最新技術を考慮して対策を提示した。1.4.4 項で示したが、特に ASR の抑制対策は JIS にもあるが重要な構造物については特別な配慮が必要であり、骨材の評価だけではなく、コンクリートそのものの膨張リスクについて評価できる方法を提案し、対策を講じた後の長期的膨張挙動予測の手法も開発した。今後、この手法の検証が必要である。ASR によるひびわれは Cs の浸透抵抗性に直結するため、より精緻な対策が求められる。

コンクリートの役割は、水密性であり、すなわち Cs の浸透抑制である。そこで、1.4.5 項で、健全なコンクリートに対する Cs の浸透という観点から検討を加えた。まず、一定量の  $\text{CaCl}_2$  が含有される焼却飛灰からどのような速度で高濃度塩水が発生しえるか、焼却飛灰が含有する可溶性塩類の特性を踏まえて、考えうるすべての因子を考慮した吸湿速度予測式を構築した。

もし高濃度塩水が発生するとしても、焼却飛灰をセメント固型化することで、その速度を遅らせ、外部への流出速度を低減できる。その際、Cs の不溶化が可能であればさらに効率的である。中性域では効率的な不溶化剤であるフェロシアン化鉄も高アルカリでは分解する。しかし、ニッケル錯体とし、適切な合成方法を採用することで耐アルカリ性は飛躍的に高まる。フェロシアン化ニッケルの合成方法を開発し、耐アルカリ性を評価した。

さらに、高濃度塩水から Cs がコンクリートに直接作用した場合も考慮し、コンクリート中の Cs の移動を予測する方法の高度化を行った。まず、セメント水和物と Cs と同様の挙動をすると考えられるアルカリイオンの相互作用の測定を行った。その結果を踏まえ、最新の相平衡多元素移動モデルを用いて、普通コンクリートと対策コンクリート中の Cs 移動を 30 年間にわたり予測し、その予測値は 1, 2 cm であり、対策コンクリートとすることの有効性を定量的に示した。

健全なコンクリートが施工できるためには施工が重要である。その際の品質確認の手法となりえる表層透気試験について取りまとめ、普通コンクリートと対策コンクリートの脱型時期と表層品質の関係について検討を加えた。フライアッシュを用いた対策コンクリートは脱型までの時間

をより長くとる必要があることが明確になった。

これまで焼却飛灰(特に流動床炉)をセメント固型化する際に最大の課題であった水素ガス発生についても検討を加え、水素ガス発生機構を推定し、発錆抑止ができる方法を提案した。

このように、汚染焼却飛灰を鉄筋コンクリート製のピットで安全・安心に処分するための基礎情報を収集してきた。フライアッシュを30%置換し、膨張材で収縮補償したコンクリートは、上部防水し、表面に防食塗膜を設けるとしても、基盤の水密材料として相応の耐久性を有することを示してきた。

今後の課題としては、ASRの長期予測、数10年後におこなうコンクリートのその先の耐久性予測、Cs浸透予測の高度化のために特に重要なセメント水和物とアルカリイオンの相互作用評価を上げることができる。ASRの長期予測には、

- 1) 多様な骨材を用いたコンクリートプリズム試験の実施と試験と暴露条件での反応の違いの解析、
- 2) モデル既存構造物からのコアを用いたASR膨張予測と影響度評価、
- 3) 化学的浸食のうち2014年度は実施できなかった焼却飛灰中の石膏による劣化の定量評価、
- 4) 定量評価が困難なセメント水和物とアルカリイオンの相互作用の理論解析(量子力学計算による相互作用評価)と固体NMRによるCs-133を指標とした実測との比較、
- 5) 普通コンクリートと対策コンクリートのCs移動計算の基礎となる実効拡散係数の合理的な測定、
- 6) およびその結果のモデルへの反映、
- 7) 現実の飛灰の構成相分析と吸湿特性の定量化、  
などが重要となる。

## 参考文献

- [<sup>1</sup>] 宮里心一、大即信明、小長井彰祐：分割鉄筋を用いたマクロセル電流測定方法の実験的・理論的検討、コンクリート工学年次論文集、Vol.23、No.2、pp.547-552、2001
- [<sup>2</sup>] 森寛晃ほか、塩化カルシウム溶液による各種セメント硬化体の劣化、セメントコンクリート論文集、Vol.66、pp.79-86、2012
- [<sup>3</sup>] 久我龍一郎ほか、CaCl<sub>2</sub>とセメント硬化体の反応による3CaO・CaCl<sub>2</sub>・15H<sub>2</sub>Oの生成条件、セメントコンクリート論文集、Vol.66、pp.34-40、2012
- [<sup>4</sup>] Ippei Maruyama, Hiroshi Sasano: Strain and crack distribution in concrete during drying, Materials and Structures, 47, pp.517-532, 2014
- [<sup>5</sup>] Chu, T. C., Ranson, W. F., Sutton, M. A. and Peters, W. H.: Application of digital-image-correction techniques to experimental mechanics, Experimental Mechanics, Vol.25, No.3, pp.232-244, 1985
- [<sup>6</sup>] Walraven J. C., Keuser W.: The shear retention factor as a compromise between numerical simplicity and realistic material behavior, Darmstadt Concrete. 2, pp.221-234, 1987
- [<sup>7</sup>] H. Ito, I. Maruyama, M. Tanimura, R. Sato: Early Age Deformation and Resultant Induced Stress in Expansive High Strength Concrete, Journal of Advanced Concrete Technology, Vol. 2, No.2, pp.155-174, 2004
- [<sup>8</sup>] 星野清一、平尾宙、山田一夫：非晶質混和材を含むセメントの鉱物の定量におけるX線回折/リートベルト法の適用、セメント・コンクリート論文集、No.59、pp.14-21、2005
- [<sup>9</sup>] 日本コンクリート工学会、小型コンクリートプリズムを用いたASR促進試験方法(案)、ASR診断の現状とあるべき姿研究委員会報告書、pp.272-284、2014.7



- 
- [<sup>10</sup>] 川端雄一郎、山田一夫、小川彰一、佐川康貴：加速コンクリートプリズム試験を用いた ASR 膨張の簡易予測、セメント・コンクリート論文集、No. 67, pp. 449-455 (2013)
- [<sup>11</sup>] 川端雄一郎、山田一夫、松下博通：セメント系材料により生成される水和物の相組成と ASR 膨張抑制効果の関係、土木学会論文集、69 (4), pp.402-420 (2013)
- [<sup>12</sup>] 佐川康貴、山田一夫、鳥田慎也、江里口玲：ペシマム現象を示す骨材を用いたコンクリートの加速試験および暴露試験における膨張挙動、コンクリート工学論文集、第 25 巻 (2014)
- [13] C. LOOS-NESKOVIC, M. FEDOROFF, E. GARNIER, P. GRAVEREAU, ZINC AND NICKEL FERROCYANIDES: PREPARATION, COMPOSITION AND STRUCTURE, *Talanta*, Vol. 31, No. 12, pp. 1133-1147, 1984
- [14] H. MIMURA, J. EHTO, R. HARJULA, Chemical and Thermal Stability of Potassium Nickel Hexacyanoferrate (II), *Journal of Nuclear Science and Technology*, 34:6, 582-587, 1997
- [15] V. V. Milyutin and V. M. Gelis, Optimal Conditions for Coprecipitation of Cesium Radionuclides with Nickel Ferrocyanide, *Radiochemistry*, 50:1, 64- 66, 2008
- [16] C. LOOS-NESKOVIC, S.A.M. FEDOROFF, Colum-usable inorganic fixator preparation by localized growth on a solid alkaline ferrocyanide *J. Mater. Sci.*, 25, 677-682, 1990.
- [<sup>17</sup>] A. Nonat: The structure and stoichiometry of C-S-H、 *Cement and concrete research*, 34, pp.1521-1528(2004)
- [<sup>18</sup>] B. Lothenbach et al.: Thermodynamic modeling of the effect of temperature on the hydration and porosity of Portland Cement、 *Cement and concrete research*. 38(1)、 pp.1-18 (2008)
- [<sup>19</sup>] Y. Hosokawa、 K. Yamada and H. Takahashi: Time Dependency of Cl Diffusion Coefficients in Concretes with Varied Phase Compositions and Pore Structures under Different Environmental Conditions、 10(11)、 pp.363-374(2012)
- [<sup>20</sup>] Y. Hosokawa、 K. Yamada、 B. Johannesson、 L.-O. Nilsson: Development of a multi-species mass transport model for concrete with account to thermodynamic phase equilibriums、 *Materials and Structures*、 Vol.44、 No.9、 pp.1577-1592(2011)
- [<sup>21</sup>] Ph. Blanc, X. Bourbon, A. Lassin and E. C. Gaucher: Chemical model for cement-based materials: Thermodynamic data assessment for phases other than C-S-H, *cement and concrete research*, 40(9), pp. 1360-1374(2010)
- [<sup>xxii</sup>] Torrent, R.J. “A two-chamber vacuum cell for measuring the coefficient of the permeability to air of the concrete cover on site”, *Materials and Structures*, V.25, No.6, pp.358-365, 1992.7
- [<sup>xxiii</sup>] AGB2007/007: ASTRA Research Project “Recommendations for the quality control of concrete with air permeability measurements”.  
(<http://www.aramis.admin.ch/Default.aspx?page=Texte&projectid=24243>.)
- [<sup>xxiv</sup>] Torrent, R., English Translation of “Recommendations for Quality Control of Concrete with Air-Permeability Measurements” (Swiss Federal Department of Transportation, December 2009), 2010.9
- [<sup>xxv</sup>] Di Pace, G. and Calo, D., “Assessment of Concrete Permeability in Tunnels”, *International RILEM Conference on Site Assessment of Concrete, Masonry and Timber Structures (SACoMATIS 2008)*, Italy, 2008.9
- [<sup>xxvi</sup>] 半井健一郎、R.J. Torrent：表層透気試験（トレント法）の実務展開、*コンクリート工学*、Vol.52, No.7, pp.595-600, 2014.

## 1.5 保管・貯蔵・最終処分技術

### 1.5.1 埋立等の設計に向けた条件パラメーターの設定に関する研究

#### (1)はじめに

放射性物質に汚染された廃棄物の焼却灰では、放射性物質の濃度が高く、また溶出性が高いものについては、セメント固型化処理等による溶出抑制対策を行う必要があることから、固型化処理による溶出抑制のメカニズムや影響因子の把握が重要となっている。

本節では、放射性物質が混入した焼却飛灰を対象にセメント固型化処理を行い、その長期溶出試験を行うことで放射性物質の溶出特性を明らかにするとともに、溶出メカニズムの解明のために固型化物内の放射性物質の濃度分布や細孔径分布の変化を調査した。

#### (2)実験方法

##### 1)セメント固型化物の作製

放射性物質が混入した焼却灰、セメント等を用いて、本研究に使用するセメント固型化物を作製した。焼却灰は放射性セシウム含有量が 20,610 Bq/kg の飛灰、セメントには高炉セメント B 種を用いた。

表 1.5-1 に作製したセメント固型化物の種類を示す。配合条件として 4 水準および養生条件を 2 水準変化させたものを 8 種類作製し、さらに放射性セシウム吸着剤（フェロシアン化ニッケル）を添加したものを 2 種類作製した。ここでの配合条件の考え方は、セメント固型化物を作製する際に型枠に流し込めるような流動性が得られるように水、セメント、および飛灰の量を調整した。また養生条件では、40°C-1 週間とは昇温し反応を促進させ固化の最終状態を模すための条件であり、20°C-4 週間は標準の 28 日間養生を想定した。

表 1.5-1 セメント固型化物の種類と配合条件、および養生条件

No.	W/C (%)	放射性 Cs 吸着剤添加	養生条件	配合条件 <sup>1)</sup>		
				水 (kg)	セメント (kg)	飛灰 (kg-dry)
1-0	500	なし	40°C-1 週間	0.893	0.178	1.936
2-0	300			0.814	0.271	1.552
3-0	200			0.755	0.367	1.363
4-0	100			0.701	0.701	1.159
5-0	500	添加量 5g/kg-dry 飛灰	40°C-1 週間	0.893	0.178	1.936
6-0	100			0.701	0.701	1.159
1-1	500	なし	20°C-4 週間	0.893	0.178	1.936
2-1	300			0.814	0.271	1.552
3-1	200			0.755	0.367	1.363
4-1	100			0.701	0.701	1.159
A	200	なし	20°C-4 週間	0.309	0.154	2.322
B	40			0.815	2.041	2.041
C	80			2.6g/kg-dry 飛灰	35°C-4 週間	0.748

<sup>1)</sup> モルタルミキサーで混練したときの質量の割合（モールドに流し込んだ質量ではない）

セメント固型化物の作製には、大きさがφ110 mm×215 mm（ただし、No.Aのセメント固型化物のみ125 mm×125 mm×125 mm）の大モールドと、φ50 mm×100 mmの小モールドの型枠を用いた。モールドの材質はアクリル樹脂である。飛灰は、あらかじめ2 mm未満に粉碎したものをを用いた。また、添加水には水道水を使用した。セメントおよび飛灰、添加水は、モルタルミキサーにより攪拌、混合し、モールドに流し込み養生を行った。養生完了後に速やかに脱型を行い、大モールドの供試体は長期浸漬試験へ、小モールドの供試体は力学特性評価の強度試験と密度試験へ当日中に供した。

## 2) 長期溶出試験

セメント固型化処理による放射性セシウムの溶出抑制効果を調べるために、作製した飛灰セメント固型化物に対して長期溶出試験を行い放射性セシウムの溶出量を測定した。JIS K0058-1 有姿攪拌試験を基本とし、純水を溶媒として液固比10の条件下で、溶媒交換を行うことなく溶出試験時間を24時間、1週間、2週間、1ヶ月、2ヶ月に溶媒中のpH、電気伝導度（Electric Conductivity; EC）、放射性セシウム濃度、および共存イオン濃度を測定した。ここで放射性セシウム濃度はゲルマニウム半導体検出器によって、共存イオン濃度はICP発光分析とイオンクロマトグラフィを用いて測定した。

各溶出試験時間における溶媒中の放射性セシウム濃度から、セメント固型化物表面からの溶出フラックスと溶出率を次式により計算した。

$$f_i = \frac{c_i - c_{i-1}}{t_i - t_{i-1}} \frac{V}{A} \quad (1-5-1-1)$$

$$\phi_i = \frac{V}{\omega} \sum_{i=1}^{\infty} (c_i - c_{i-1}) \quad (1-5-1-2)$$

ここで、 $f_i$ ：セメント固型化物表面からの放射性セシウムのフラックス（Bq/m<sup>2</sup>/s）、 $c_i$ ：溶媒中の放射性セシウム濃度（Bq/m<sup>3</sup>）、 $V$ ：溶出試験時における溶媒量（m<sup>3</sup>）、 $A$ ：セメント固型化物の表面積（m<sup>2</sup>）、 $t_i$ ：溶出試験時間（s）、 $\omega$ ：セメント固型化物に含まれる放射性セシウムの含有量（Bq/kg）、 $\phi$ ：溶出率を表わす。なお、 $i$ は溶出試験時間に相当するインデックスであり、 $i=0$ のとき溶出試験開始時、 $i=1$ のとき溶出試験時間が24時間経過したとき、 $i=2$ のとき溶出試験時間が1週間経過したときである。

## 3) 溶出試験後のセメント固型化物内の放射性セシウム含有量分布

所定の溶出試験時間後の、セメント固型化物表面からの水の浸透深さを明らかにするために、セメント固型化物深さ方向の放射性セシウム濃度分布を測定した。溶出試験後の固型化物を乾式でカッターまたはノミを用いて試料内深さ方向の試料を得た。縦方向の試料を表面よりL-1～L-5とし、横方向の試料を表面よりW-1～W-5とした。得られた試料を粉碎し良く混合してゲルマニウム半導体検出器に供して放射性セシウム濃度を測定した。

## 4) 一軸圧縮試験および密度試験

セメント固型化処理による放射性セシウムの溶出抑制効果は、セメント固型化物の結晶化度、すなわち一軸圧縮強さに依存すると考えられる。そこで溶出試験から得た放射性セシウムの溶出挙動を、固型化物の一軸圧縮強さとの関係を調べるために一軸圧縮試験と密度試験を行った。小モールドより脱型したφ50 mm×100 mmのセメント固型化物を用いて、一軸圧縮強度はJIS A 1108に従い脱型した当日に測定した。一軸圧縮試験後の供試体を粉碎し、良く混合しJIS A 1202に従い真密度を測定した。

## 5) 窒素ガス吸着、または水銀圧入による細孔径分布評価

放射性セシウムは、セメント固型化物中の水酸化カルシウム等の可溶性成分の溶解とともに溶出が生じると考えられる。この仮説を検証するために、セメント固型化物に対して溶出試験前後での細孔径分布の変化を調べる必要があり、セメント固型化処理物について窒素ガスを用いた吸脱着試験を行い、細孔径分布及び比表面積の測定を行った。試料には、先の「(3) 溶出試験後のセメント固型化物内の放射性セシウム含有量分布」における、供試体の側面表層となる W-1 を用いて凍結乾燥機により乾燥した試料を用いた。多点式 BET 装置 (micromeritics 社製 ASAP2400) を使用し、得られた吸脱着等温線から BJH 法を用いて細孔分布を算出し、また多点 BET 法により比表面積を求めた。

窒素ガス吸着法では孔径 nm オーダーの水和物自体の空隙をみるのに対して、水銀圧入法では強度特性に左右する孔径  $\mu\text{m}$  から mm オーダーの水和物間の空隙や気泡をみることができる。水銀圧入試験でも同様に、W-1 を用いて凍結乾燥機により乾燥した試料を用いた。水銀圧入式ポロシメーター (micromeritics 社製 AutoPoreIV 9520) を使用し、測定時の最大圧力までに水銀が圧入された細孔容量より細孔分布を算出した。また細孔形状が幾何学的な円筒であると仮定して比表面積を求めた。

## 6) セメント固型化物の化学物質含有量分析

放射性セシウムの溶出の原因として考えられるセメント固型化物中の可溶性成分の溶解について、溶解する化学成分を明らかにするために、セメント固型化物に対して溶出試験前後での化学物質の含有量を調べた。微量金属となる重金属については、試料乾燥の後にボールミルを用いて 125 $\mu\text{m}$  未満に微粉碎、縮分し分析に用いた。酸分解は王水分解処理を基本とし、王水が適さない元素についてはケイ素骨格を分解しない方法にて行った。含有量の多い金属については、試料乾燥の後に乳鉢ですり潰して微粉碎、縮分し、蛍光 X 線分析に供した。また、セメント固型化物の主要な鉱物である水酸化カルシウム、炭酸カルシウム、およびエトリンガイトの量を推定するために示差熱分析を行った。

### (3) 実験結果

図 1.5-1 にセメント固型化物単位表面積あたりの放射性セシウム 137 の溶出速度 (フラックス) を示す。初期フラックスは条件において異なるものの、溶出試験時間に対する変化は両対数軸上では右下がりの傾向であり、その傾きは-0.5~-1.0 の間にある。吸着剤を含むケースを除けば、水セメント

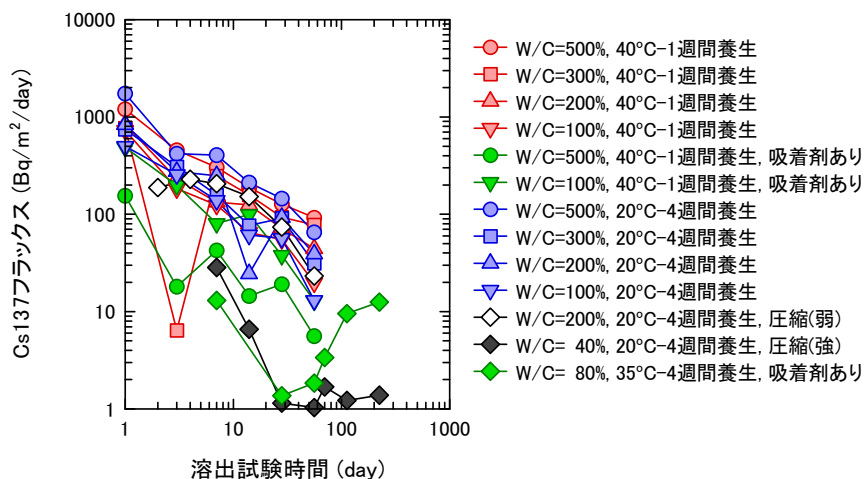


図 1.5-1 セメント固型化物単位表面積あたりの放射性セシウム 137 の溶出速度

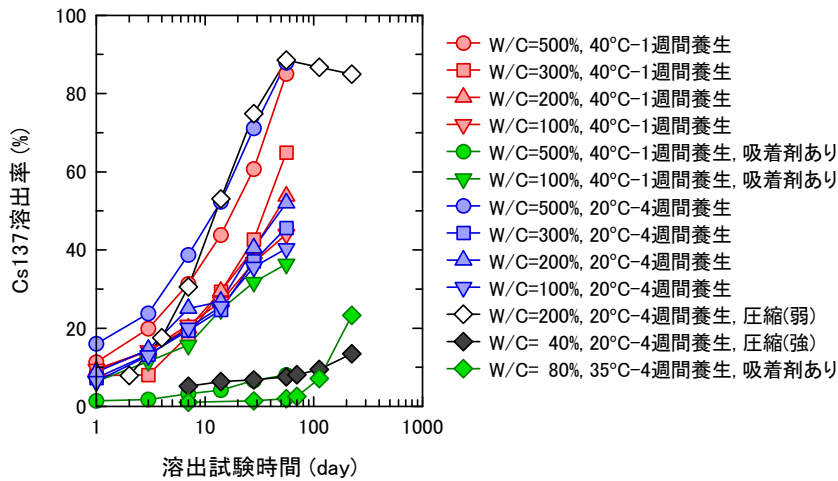


図 1.5-2 セメント固型化物の溶出率

写真 1.5-1 試験後の状態

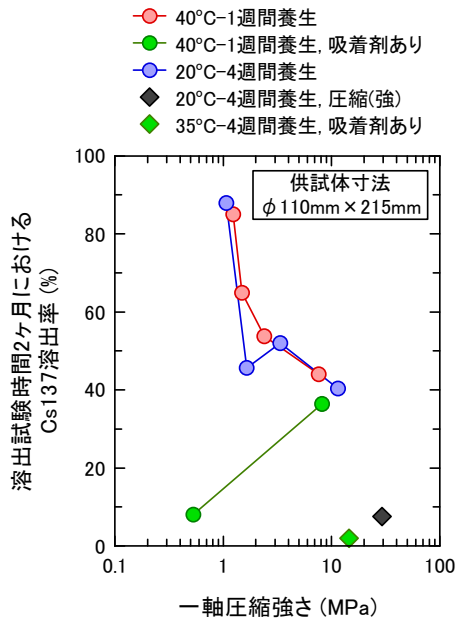


図 1.5-3 溶出率と一軸圧縮強さの関係

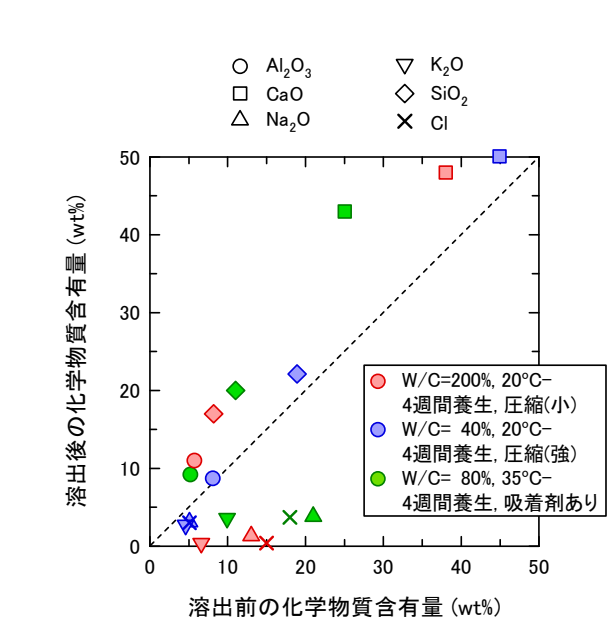


図 1.5-4 溶出試験前後での化学物質含有量の変化

比が小さいほど、フラックスを低く抑えることができる。また水セメント比が小さく且つ強い圧縮力を与えて固型化処理したものは、圧縮力をなしに処理したものに比べて、フラックスを約1オーダー程度低くできる。吸着剤を添加した固型化物については、本研究ではフラックスに及ぼす水セメント比の影響を明確にはできなかったが、その一部の固型化物において半年以上もの長期溶出試験時間を経るとフラックスが増加する傾向が認められた。これは、写真 1.5-1 に示すように、試験期間中に供試体にひび割れが生じて溶出に寄与する面積が増加したためだと考えられる。

図 1.5-2 はセメント固型化物の溶出率である。溶出率はセメント固型物の寸法に依存するため、数値の取り扱いには注意を要するが、供試体寸法が  $\phi 110 \text{ mm} \times 215 \text{ mm}$  の場合に限っては、溶出試験時間が約2ヶ月で溶出率は40%以上になり、その値は水セメント比が大きい場合に高くなる。

吸着剤の添加や強い圧縮力をもって固型化処理を行えば溶出率をさらに低減できる。図 1.5-3 には、溶出試験時間 2 か月目における溶出率と一軸圧縮強さの関係を示す。ただし、供試体寸法が  $\phi 110 \text{ mm} \times 215 \text{ mm}$  であるものに限り図示した。圧縮力を与えないでセメント固型化物を作製した場合、溶出率と一

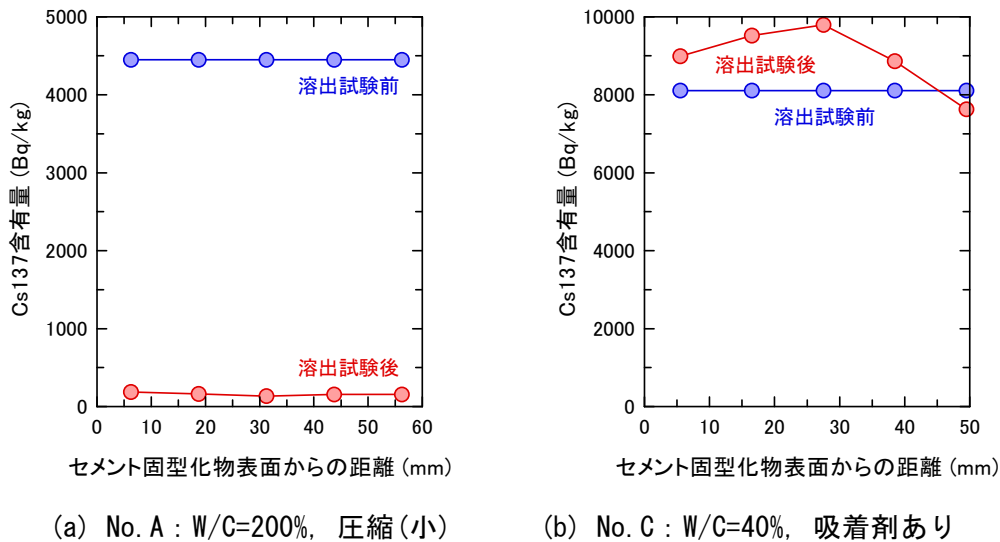


図 1-5-5 溶出試験前後でのセメント固型物表面から深さ方向への放射性セシウム濃度分布

軸圧縮強さには一意的な関係が認められた。吸着剤を添加した場合や強い圧縮力を与えてセメント固型化物を作製した場合にはこの関係から外れる。

図 1.5-4 は、溶出試験前後でのセメント固型化物内の化学物質含有量の変化を表わす。溶出試験後に減少した化学物質はいずれのセメント固型化物においても Na、K、Cl であり、これらはセメント固型化物中の飛灰から溶解したものと考えられる。一方で増加した化学物質は Al、Ca、Si であり、これらは溶出する化学物質との結晶化によって反応生成したものと考えられる。溶解または結晶化した具体的な鉱物の同定には X 線回折分析が必要であるが、本研究で実施した示唆熱熱量分析の結果からみると、結晶化した鉱物のひとつにエトリングライトが挙げられる。溶出試験後の固型化物表面の細孔率は増加していることから、固型化物表面から水分が浸透し、その浸透深さに応じて飛灰またはセメント固型化物の可溶成分（水酸化カルシウム等）が溶解し細孔率は増加、またその細孔には溶解した物質間の相互反応でエトリングライト等が生じているものと推察される。

図 1.5-5 は、溶出試験前後でのセメント固型化物内の放射性セシウムの含有量分布を示す。図 1.5-5 (a) は溶出試験終了時に溶出率は 90%程度に至ったため、セメント固型化物内の放射性セシウム含有量はセメント表面からいずれの深さにおいてもほぼゼロに近い。顕著な濃度勾配も認められないことから、これ以上の溶出は発生しないと考えられる。一方で図 1.5-5 (b) では溶出試験後の放射性セシウムの含有量は、セメント固型化物表面に近いほど、溶出試験前よりも高くなった。これはセメント固型化物内に吸着剤を添加しているためだと考えられる。放射性セシウムは固型化物内の間隙を通して表面より溶出するが、その間隙を移動する際に吸着剤にトラップされ、放射性セシウムの含有量が表面に近いほど高い値を示したものと推察される。

#### **(4) 結び**

セメント固型化処理による放射性セシウムの溶出率は、吸着剤を添加しない場合や固型化物作製時に圧縮力を与えない場合においては、一軸圧縮強さに関係づけられることがわかった。またセメント固型化物からの放射性セシウムの溶出は、飛灰や固型化物内の可溶成分の溶解に伴って生じることが、溶出試験前後の細孔径分布や化学物質含有量の違いをみることで明らかとなった。

## 2. 処理施設の長期管理等技術の確立

### 2.1 焼却施設等の長期的な維持管理・廃止撤去手法の確立

#### 2.1.1 耐火物中の放射性 Cs の浸透・脱離挙動の解明

##### (1)はじめに

事故由来放射性物質を含む一般廃棄物の焼却処理に伴い、炉内耐火物への放射性物質の蓄積が確認されている。これら放射性物質が蓄積した耐火物は、焼却処理施設の維持・解体のける被曝の原因になる。加えて、汚染耐火物は最終的には廃棄物として処理されるため、適切に処理を行うためにも、耐火物中の放射性物質等の挙動を把握する必要がある。ここでは、放射性物質等の除去特性に焦点をあて、放射性物質の脱離挙動の評価を行うことを目的とする。

##### (2)方法

除去特性は、炉内の空焼きによる耐火物中の放射性セシウム (Cs) のクリーニング、すなわち揮発除去を想定した加熱試験を行い、試験前後の放射性 Cs 濃度、重量変化量から算出した放射性 Cs 量 (Bq) から除去率を算出する方法により評価した。加熱試験に用いた耐火物は、都市ごみ焼却施設の耐火物補修工事時に発生した耐火物廃材である。加熱試験の条件は、電気炉内に耐火物廃材を小塊状(重量約 300g 程度)で設置し、加熱温度を 400~1000℃、加熱時間を 1~24 時間とした。クリーニング後の放射性 Cs 挙動の変化を確認するため、加熱試験前後の耐火物を用いて、溶出試験を行った。溶出試験は環境庁告示第 13 号試験に準じて評価した。溶出試験は粒径 2mm 以下の耐火物試料に対し、液固比 10 (耐火物 20g : 溶媒 200ml) で混合し、溶出時間は 6 時間とした。ろ液は孔径 1.0 したのガラス繊維ろ紙を用いて濾過を行い検液とし、検液の放射性 Cs 濃度 (Cs-134、137) を測定した。放射性 Cs の測定はゲルマニウム半導体検出器により測定を行った。

##### (3)結果および考察

図 2.1-1 に除去試験結果を示す。これより、加熱温度が高くなるにつれ、放射性 Cs 除去率が増加していることが分かり、炉内の空焼きにより、耐火物から放射性 Cs を除去できる可能性が示唆された。また、加熱時間が短いと除去率が低い加熱温度 700~800℃では時間を長くするほど放射性 Cs 除去率が増加しており、ある温度以上 (700℃程度) であれば加熱時間を長くすることでクリーニング効果が発揮されると考えられる。

ただ、図 2.1-2 に示すように、今回の試験は耐火物廃材を電気炉で加熱していることから、実際に炉内で起こるクリーニングとは状況が異なると考えられる。特に実際のクリーニングでは炉内と接している耐火物表層からのみ放射性 Cs の揮発が起こると考えられるが、今回の試験では電気炉内での加熱であるため、全ての面から放射性 Cs の揮発が起こっていると考えられる。また、炉内での温度分布と電気炉内の温度分布や空気雰囲気等も当然異なっていることから、今回の結果は実際に起こるクリーニング現象を十分に評価出来ていない可能性がある。

しかし、実際の炉内と雰囲気等が異なる可能性があるとはいえ、加熱により耐火物内に蓄積している放射性 Cs を少なからず除去できると考えられ、解体やメンテナンス時の労働者被ばくの防止という観点では、炉内の空焼きは効果的と考えられる。空焼き以外にも放射性 Cs 濃度の低い廃棄物を焼却することによるクリーニング効果も期待できると考えられるため、実炉での低汚



染廃棄物焼却および空焼きによるクリーニング効果の検証が必要と考えられる。

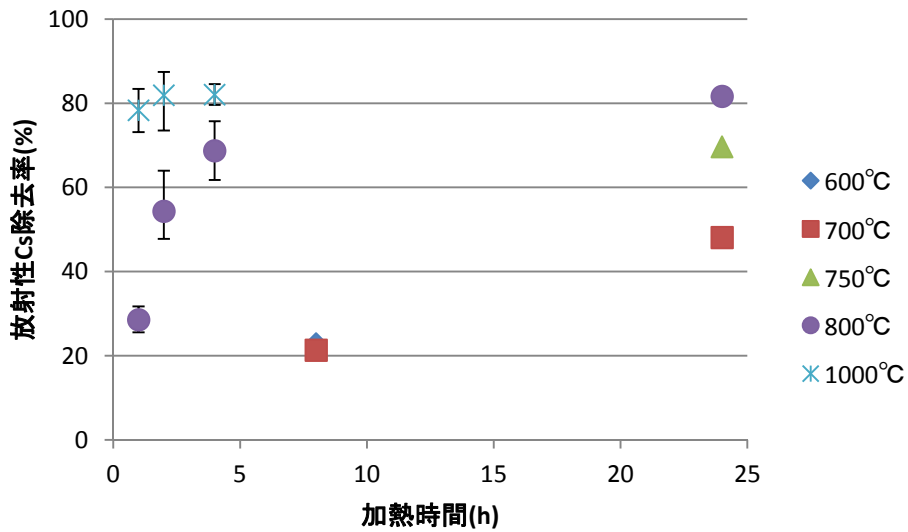


図 2.1-1 耐火物廃材の除去試験結果

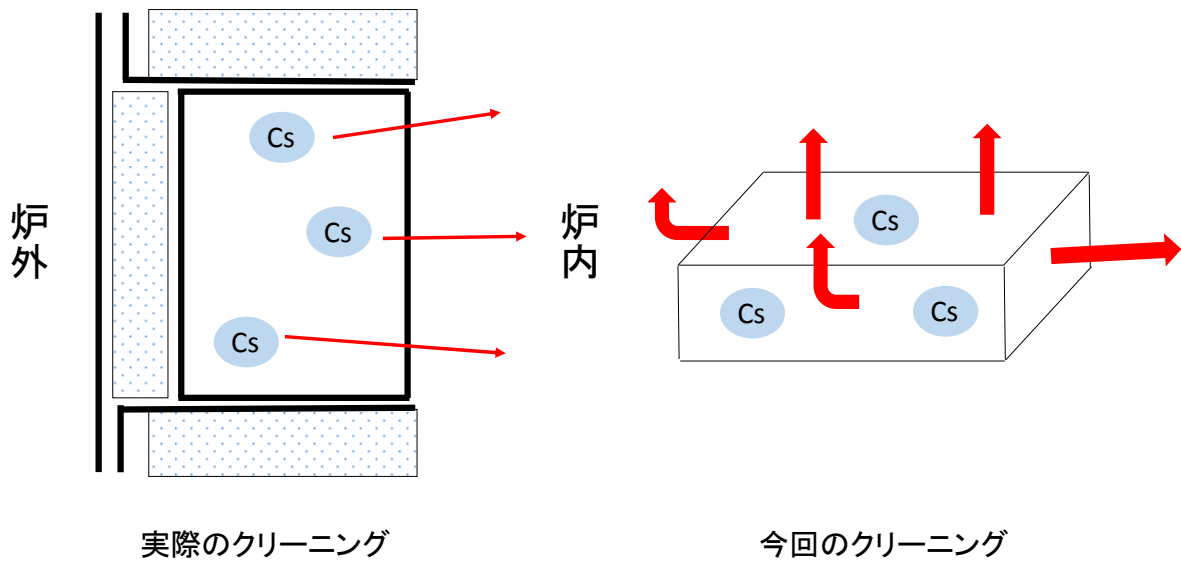


図 2.1-2 実炉におけるクリーニングと今回のクリーニングの相違点の概要

加熱により耐火物から放射性 Cs が除去できる可能性が示されたが、加熱温度によっては耐火物内に蓄積した放射性 Cs と耐火物成分が反応し、Cs の化学形態が変化している可能性がある。そこで、クリーニング前後の放射性 Cs 挙動の変化を放射性 Cs 溶出性により評価した。図 2.1-3、2.1-4 にその結果例を示す。

これより、800°C・4h 加熱、1000°C・4h 加熱いずれにおいても、加熱前より加熱後で溶出画分の割合が減少していることが分かり、800°C・4h 加熱では溶出画分の約 70%、1000°C・4h 加熱では溶出画分の約 90%が減少した。放射性 Cs の溶出性が大きく低下していることから、加熱により除去された放射性 Cs は可溶性 Cs である CsCl が主体であると考えられる。また、800°Cでの加

熱では非溶出画分の割合はほぼ変化ないが、1000℃での加熱では非溶出画分も 1/3 程度まで減少していることが分かる。つまり、化学構造の変化が観察された。また、焼却施設に用いられる耐火物の多くは、 $\text{SiO}_2$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を主成分として含んでいるため、加熱によって耐火物内に蓄積した CsCl と耐火物成分が反応して、難溶性 Cs であるアルミノシリケートを形成する可能性も考えられたが、今回の結果からはアルミノシリケートの形成よりも CsCl の揮発の方が優先的に起こると考えられる。

以上より、加熱によって耐火物から CsCl の除去が可能であり、処理後の耐火物の放射性 Cs の溶出性も低下することから、解体やメンテナンス時の労働者被ばくの防止および耐火物廃材の適正処理の観点から、炉内の空焼きは効果的であると考えられる。

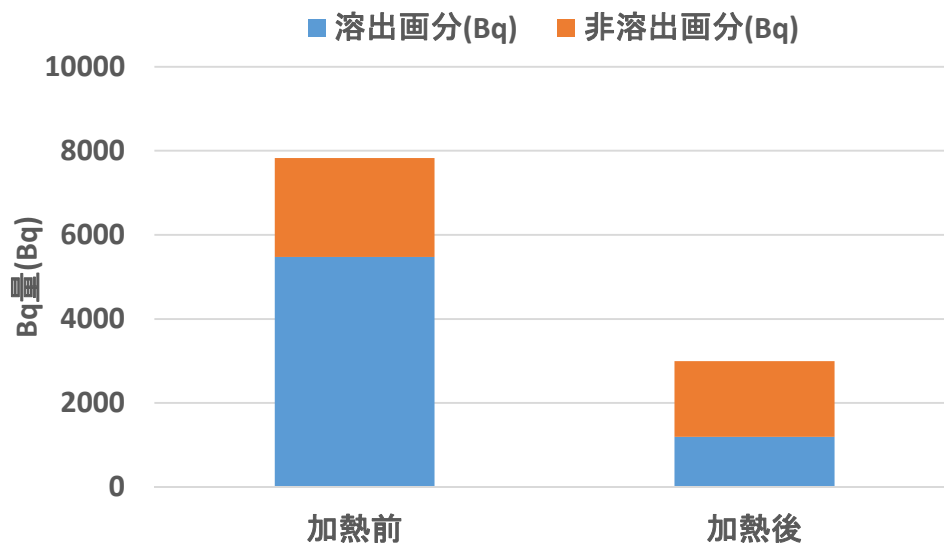


図 2.1-3 除去試験前後の放射性 Cs 溶出性変化例 (800℃ · 4h)

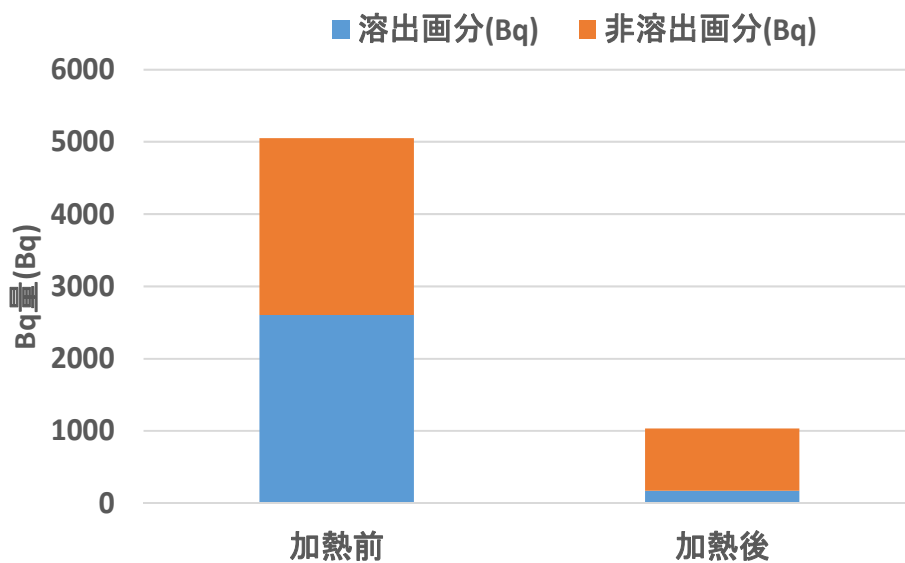


図 2.1-4 除去試験前後の放射性 Cs 溶出性変化例 (1000℃ · 4h)

しかし、今回除去試験に用いた耐火物は燃焼室の乾燥帯に用いられていた耐火物であり、使用温度雰囲気は約 300～700℃である。そのため、炉内への揮発の抵抗となるクリンカの生成が少なく、比較的加熱前の放射性 Cs 溶出率が高く、CsCl が多く蓄積している耐火物であると考えられ、クリーニング効果が大きく発揮されたと考えられる。使用箇所によってはこれ以上の温度雰囲気でも用いられている耐火物もあり、CsCl が少なく、難溶性 Cs が多く蓄積している耐火物も存在すると考えられる。その場合は加熱によるクリーニング効果が小さくなる可能性もあり、引き続き調査をする必要がある。

#### (4) まとめ

放射性物質等の除去特性に焦点をあて、放射性物質の脱離挙動の評価を行った。結果は以下の通りである。

- (1) 加熱温度が高くなるにつれ、放射性 Cs 除去率が増加することが分かり、炉内の空焼きにより、耐火物から放射性 Cs を除去できる可能性が示唆された。
- (2) 加熱前後の耐火物の溶出性調査より、加熱前より加熱後で溶出画分の割合が減少していることが分かった。加熱により除去された放射性 Cs は可溶性 Cs である CsCl が主体であると考えられる。
- (3) 加熱によって耐火物内に蓄積した CsCl と耐火物成分が反応して、難溶性 Cs であるアルミノシリケートを形成する可能性も考えられたが、今回の結果からはアルミノシリケートの形成よりも CsCl の揮発の方が優先的に起こると考えられた。

#### (5) 課題

加熱により耐火物からの放射性物質の除去特性を評価したが、蓄積している放射性 Cs のうち CsCl が少ない耐火物では、今回のようなクリーニング効果が発揮されない可能性もあるため、異なる使用箇所の耐火物を用いて、同様の評価を行う必要がある。また、図 2.1-2 のように今回の試験ではクリーニング効果を過大に評価している可能性があるため、実炉でのクリーニング効果の確認が必要不可欠と考えられる。

福島県内において除染廃棄物・災害廃棄物などの仮設焼却炉の建設が進み、既に稼働を開始した仮設焼却炉もあり、焼却処理が終了する数年後には解体作業が始まることから、解体やメンテナンス時の労働者被ばくの防止の観点からも解体前の事前クリーニング効果の検証が必要である。

### 3. フローストックモデルの構築、測定モニタリング技術等の確立

#### 3.1 フローストックのリスク評価と管理システム開発

##### 3.1.1 放射性物質に汚染された廃棄物等のマテリアルフローの把握

###### (1)はじめに

東京電力福島第一原子力発電所（以下、「福島第一原発」という）事故由来放射性物質の人為による非制御な拡散とそれに伴う健康リスクを低減し、無用な風評被害を防止するために、福島県内外の放射性物質の降下・沈着量が比較的大きい東日本エリアにおいて発生する廃棄物・副産物（以下、汚染廃棄物等という）と、それらを汚染した放射性物質の処理処分や再生利用等に係る、人工圏での物質フローを特定する取り組みを続けている。行政資料などで把握される汚染廃棄物等の物量フローを、汚染している放射性セシウムフローに変換するために必要な係数を取得するため、野外に設置された家屋・道路等の構造物に由来する汚染廃棄物等について、発生地域の汚染状況を代表する空間線量率と、汚染廃棄物等の種類、部材表面の汚染状況の関係を得るため、福島県の汚染廃棄物対策地域内における家屋等の屋外部材について、表面汚染密度を測定する調査を行った。

###### (2)方法

空間線量率 1.90～70.0 $\mu$ Sv/hr の地域において、家屋・道路等の建造物の表面汚染密度を測定した。なお空間線量率には放射性ヨウ素の影響を排除するため、原発事故から一定期間が経過した 2011 年 6 月から 9 月に測定した空間線量率を用いた。

測定は  $\beta$  線用ラギッドシンチレーションサーベイメータ (TCS-319H、日立アロカメディカル)、GM サーベイメータ (TGS-146B、日立アロカメディカル) で行い、鉛遮蔽体 (コリメータ) を用いて、バックグラウンドの影響を低減した。JIS Z4504<sup>1)</sup> に準拠し、GM サーベイメータより得られた計数率 (cpm) より、次式を用いて表面汚染密度 (Bq/cm<sup>2</sup>) を算出した。なお、換算係数には  $\beta$  線用ラギッドシンチレーションサーベイメータでは 0.00260 (Bq/cm<sup>2</sup>/cpm)、GM サーベイメータでは 0.00262 (Bq/cm<sup>2</sup>/cpm) を用いた。

$$\text{表面汚染密度 (Bq/cm}^2\text{)} = \{\text{測定値 (cpm)} - \text{バックグラウンド値 (cpm)}\} \times \text{換算係数 (Bq/cm}^2\text{/cpm)}$$

測定した表面汚染密度を 2011 年 9 月 1 日時点の Cs-137 へ減衰補正した。得られた表面汚染密度を部材の種類 (材質) および部材の表面の向き (上または横) で整理し、それぞれ測定地点の空間線量率との関係を解析した。なお、部材の種類は、プラスチック (エクステリア、農業用ビニル、雨樋、波板等その他)、木材、金属、ガラス、アスファルトコンクリート、コンクリート、外壁材、セメント瓦、塗り瓦、大谷石である。

###### (3)結果と考察

###### 1) 部材表面の向きの影響

部材表面の向きが水平のものと垂直のものがあつたプラスチック (波板等その他)、木材、金属、

コンクリートについて、表面汚染密度と空間線量率の関係を図 3.1-1 に示す。なお、泥等の付着がみられたプラスチック（エクステリア、農業用ビニルおよび雨樋）、木材のベンチ類と生木の測定値は、泥の付着量の表面汚染密度への影響が大きいため除いた。

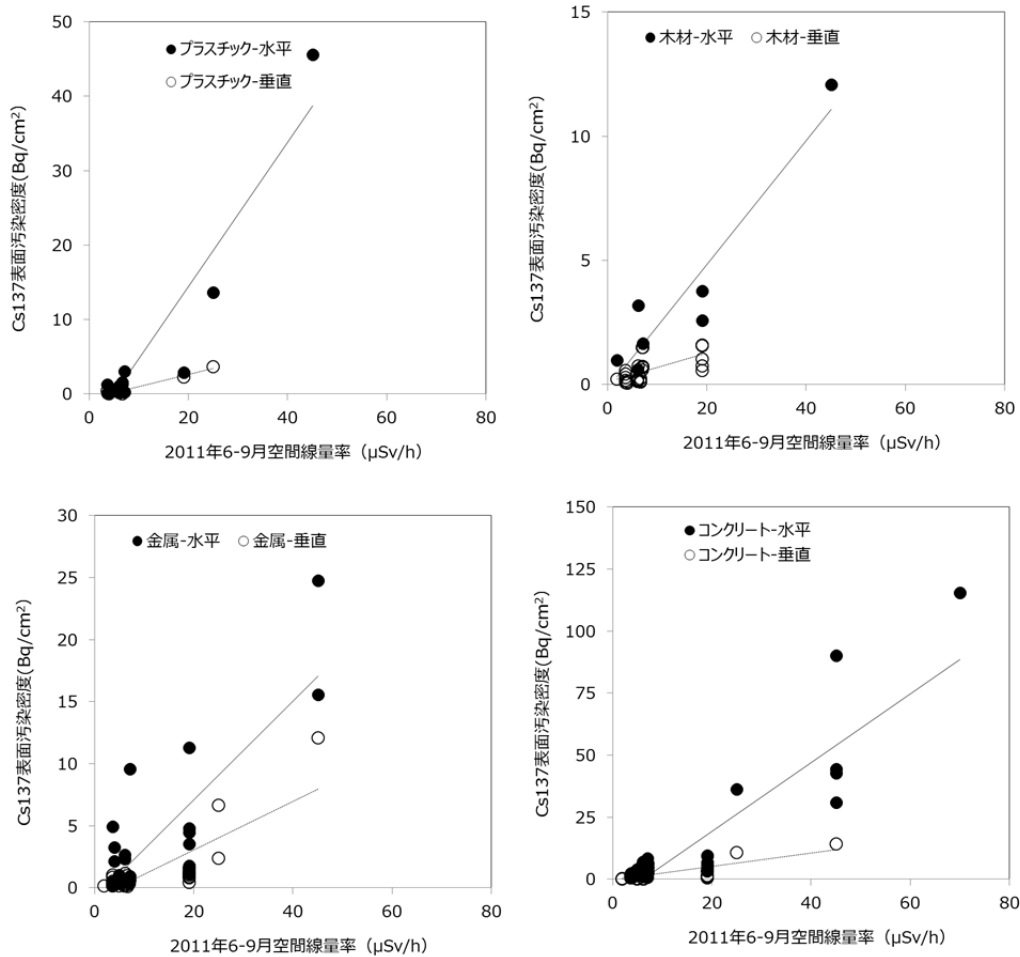


図 3.1-1 プラスチック、木材、金属、コンクリート部材の表面汚染密度と空間線量率の関係

部材の Cs-137 による表面汚染密度と測定地域の空間線量率には概ね正の相関関係が認められた。地面と水平方向の部材の表面は、垂直方向の部材の表面より表面汚染密度が 2 倍から 5 倍程度高い傾向にあった。また、プラスチックと金属では部材の方向によって相関係数に大きな差はなかったが、木くずとコンガラについては垂直の部材の相関係数が小さくなった。すなわち、部材が解体され廃棄物となった際には、屋根や壁などの用途を考慮して空間線量率から放射能濃度の推定を行う必要がある。部材表面の向きによる汚染の違いは、放射性物質の部材への付着量の違いと、その後の降雨等による洗い流し効果の違いに依存するものと考えられる。

水平方向にのみ設置されていたアスファルトコンクリート、また垂直方向のみに設置されていたガラスならびに外壁ボード類については Cs-137 による表面汚染密度と測定地域の空間線量率には概ね正の相関関係が認められた。

## 2) 部材の材質の影響

部材毎の空間線量率に対する汚染の大きさの違いは放射性物質と部材との親和性に依存するものと考えられる。セメント瓦の空間線量率に対する表面汚染密度は塗り瓦より大きくなる傾向にあった。これは、セメント瓦が多孔質で、塗り瓦が滑らかである等の表面の違いによる降雨等による洗い出し量の差を表すと考えられる。なお、セメント瓦と同様に多孔質である大谷石については、Cs-137による表面汚染密度と測定地域の空間線量率には明確な関係が認められなかった。

### (4) まとめ

野外に設置された家屋・道路等の構造物に由来する汚染廃棄物等について、発生地域の汚染状況を代表する空間線量率と、汚染廃棄物等の種類、部材表面の汚染状況の関係を得るため、福島県の汚染廃棄物対策地域内における家屋等の屋外部材について、表面汚染密度を測定する調査を行った。表 3.1-1 に調査した部材の種類、方向および材質毎に表面汚染密度と空間線量率の関係を一次で回帰した場合の傾き ( $[Bq/cm^2]/[\mu Sv/hr]$ ) および決定係数をまとめた。

地面と水平方向の部材の表面は、垂直方向の部材の表面より空間線量率に対して表面汚染密度が高い傾向にあった。また、部材の素材によっても空間線量率に対する表面汚染密度に違いがあった。部材表面の向きや素材による放射性物質の部材への付着量の違いと、その後の降雨等による洗い流し効果の違いが影響しており、部材が解体され廃棄物となった際には、部材の素材や屋根や壁などの用途を考慮して空間線量率から放射能濃度の推定を行う必要がある。

表 3.1-1 調査した部材の種類、方向および材質毎に表面汚染密度と空間線量率の関係

部材	方向	n	測定箇所の空間線量率に対する 表面汚染密度 $[Bq/cm^2]/[\mu Sv/hr]$	$r^2$
プラスチック	水平	19	0.97	0.89
プラスチック	垂直	9	0.16	0.93
木材	水平	7	0.25	0.89
木材	垂直	28	0.059	0.43
金属	水平	25	0.40	0.66
金属	垂直	39	0.20	0.67
コンクリート	水平	39	1.4	0.78
コンクリート	垂直	30	0.27	0.62
アスファルトコンクリート	水平	19	1.5	0.73
ガラス	垂直	16	0.021	0.67
外壁ボード類	垂直	19	0.035	0.53
セメント瓦	水平	9	0.44	0.32
塗り瓦	水平	9	0.077	0.09
大谷石	垂直	6	-0.20	0.07

## 参考文献

- 1) JIS Z 4504:2008, 放射性表面汚染の測定方法-β線放出核種（最大エネルギー0.15MeV以上）及びα線放出核種

### 3.1.2 人口圏における放射性物質のフロー・ストックモデルの作成

#### (1)はじめに

福島第一原発の事故に伴って、東日本の広範囲地域において放射性セシウムに汚染された廃棄物が発生した。環境中へ放出された放射性セシウムによるリスクの適正管理や対策実施効果の検証のため、社会システムの一部である各種処理プロセスを通じた放射性セシウムの挙動、すなわち廃棄物の処理処分や有効利用に伴ってどれだけの放射性セシウムがどこへ移動し、蓄積したのかを理解する必要がある。そこで、放射性セシウムの人工圏への流入と各種処理プロセスを通じた廃棄物等への移行と蓄積、廃棄物等の処分・再資源化・有効利用に伴う移動と蓄積量を巨視的（マクロ的）な視点から推計・分析するための放射性セシウムのフロー・ストックモデル作成を行った。

#### (2)人口圏における放射性物質のフロー・ストックモデルの基本的な枠組み

本調査で構築する放射性セシウムフロー・ストックモデルの基本的な構造を図 3.1-2 に示す。本モデルは大きくフローモデルとストックモデルの2つのモデルから構成される。フローモデルは、各種文献等から収集した廃棄物等の物品および放射性セシウムのプロセスデータから投入産出表形式のプロセスモデルを構築しており（図 3.1-3）、対象年の廃棄物等の発生量や素材、製品の需要量およびそれらに含まれる放射性セシウム量（総量）を外生的に与えることで、対象年に関して投入産出表形式で表示することが可能な物品と放射性セシウムのフローデータが計算される。ストックモデルは、寿命と半減期を考慮したコホートモデルとなっており、フローモデルで計算された対象年においてストックの初期値を与え、フローモデルからフローデータを入力値として受け渡しすることで物品および放射性セシウムのストックデータが計算されるものである。

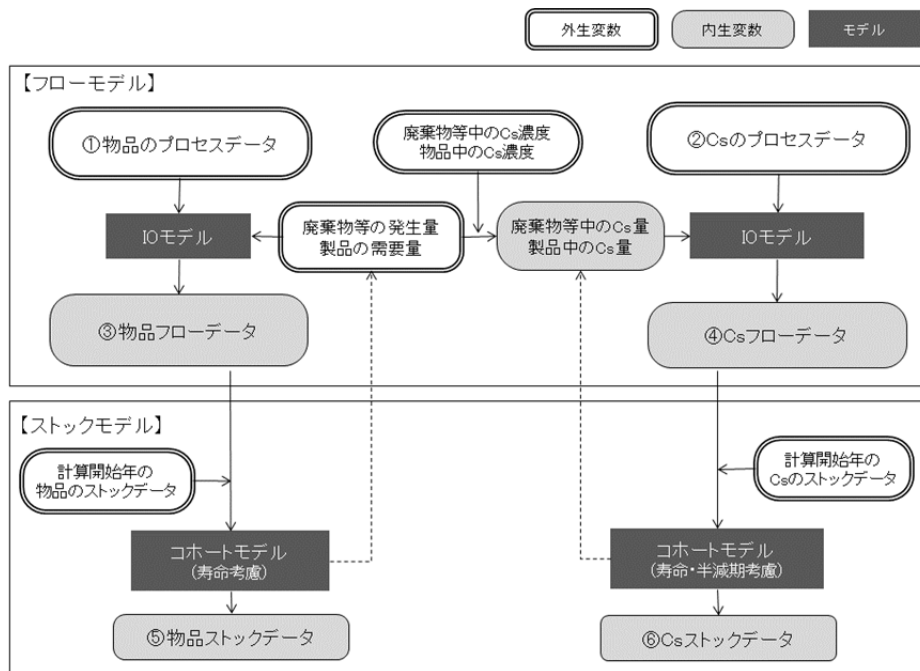


図 3.1-2 放射性セシウムフロー・ストックモデルの基本的な構造

- ・モデルは物品 (Cs)→プロセス→物品 (Cs)→プロセスの連鎖で構成される。
- ・プロセスには、大きく「フロー制御プロセス」と「処理プロセス」がある。
- ・フロー制御プロセスでは物品のフローとCsのフローは比例する。

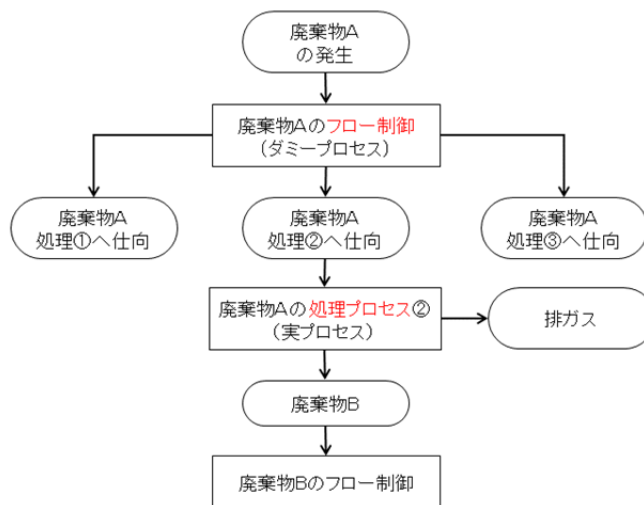


図 3.1-3 プロセスモデルの構造とプロセスデータの種類

### (3) フロー・ストックモデル計算ツールの作成

前項で示した枠組みのモデルを計算機上で実行するための計算ツールを作成した。計算ツールは計算プログラムが格納された Microsoft Excel® (以下、Excel) のアドインファイル、ユーザーインターフェースとなる Excel ワークシートファイル、および各種処理を行うための Microsoft Access® (以下、Access) データベースファイルから構成される。

ユーザは Excel ワークシートファイル上でデータを作成する。アドインより計算プログラムを



実行すると作成したデータは自動的に Access のデータベースファイルのテーブルにコピーされる。データは Access 上で処理され、計算結果が再び Excel ワークシートファイルに引き渡されて出力される。

#### (4) 一般廃棄物焼却残さおよび下水汚泥を対象とした計算例

一般廃棄物焼却残さおよび下水汚泥を例とし、作成した計算ツールを用いてこれらの廃棄物の処理処分、有効利用に伴う放射性セシウムフローの計算を実施した。地理的な解像度は福島県とその他東日本（東京都、千葉県、栃木県、埼玉県、岩手県、宮城県、群馬県、山形県、茨城県、神奈川県、新潟県の1都10県）とした。

##### 1) 一般廃棄物焼却残さおよび下水汚泥に関する入力データおよびパラメータの作成

モデルへの入力データおよびパラメータは下記のとおりである。

- ① 廃棄物等の発生量
- ② 廃棄物等の処理プロセスパラメータ（技術的なパラメータ）
- ③ 廃棄物等のフロー制御パラメータ（社会システム的なパラメータ）
- ④ 放射性セシウム量（放射性セシウム濃度×廃棄物等の発生量）
- ⑤ 放射性セシウムの処理プロセスパラメータ（技術的なパラメータ）

ここで、一般廃棄物について、焼却処理における実際の現象を表現するためには、本来ならば焼却される一般廃棄物の発生量を入力データとして与え、焼却プロセスへの投入量、減量率と各種焼却残さの発生率をふまえた処理プロセスパラメータによって物品を分配させることが自然である。ただし、モデル上で放射性セシウムフローを同時に記述するためには焼却前の一般廃棄物の放射性セシウム濃度の情報も必要となる。現状で入手可能な情報は焼却残さの放射性セシウム濃度であり、地域、焼却方式等の組合せを考えると焼却前の一般廃棄物の放射性セシウム濃度や焼却による濃縮率の設定は非常に複雑である。そこで今回は、便宜的に焼却残さの発生量を与えることとし、それが焼却プロセスへ投入され、焼却主灰、焼却飛灰等の各種焼却残さへ分配される形として計算することとした（図 3.1-4）。したがって、今回の計算では焼却処理プロセスからの排気や排水の発生およびそれに伴う放射性セシウムの自然圏への移行は描かれていない。ただし、これまでの知見<sup>1)</sup>から一般廃棄物焼却処理において排ガス・排水への放射性セシウムの移行は焼却残さへの移行量に対して無視できるレベルと考えられるため、作成したモデルが目的とする巨視的な放射性セシウムフローの推計においては問題ないものと考えられる。

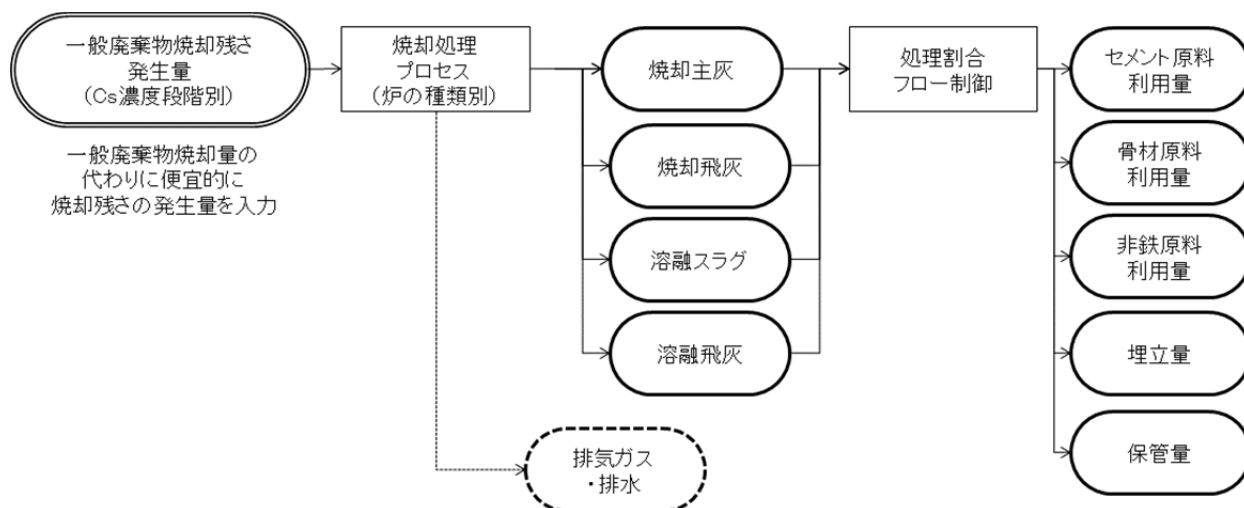


図 3.1-4 一般廃棄物焼却残さに係るフロー推計のイメージ図

一方、下水汚泥については、存在する情報は脱水汚泥の放射性セシウム濃度であり、下水汚泥の処理プロセスは比較的同様であることからこのような問題はない。そこで、下水汚泥については濃縮汚泥の発生量を入力データとして与え、設定したパラメータに基づいて計算を行うこととした。

以下にそれぞれのデータ、パラメータの作成方法について述べる。

#### ① 廃棄物等の発生量

一般廃棄物焼却残さの発生量は環境省一般廃棄物処理実態調査をもとに設定した。福島県については地域によって一般廃棄物焼却残さの放射性セシウム濃度レベルが特に大きく異なるため、濃度レベルに応じて3つの物品に分割したモデルとした。ただし、各濃度レベルの焼却残さ発生量は今回の計算においては等分とした。

下水汚泥の発生量は、福島県については福島県産業廃棄物排出処理状況確認調査をもとに設定した。ただし当該調査のデータでは有機性汚泥に含まれており下水汚泥単独の発生量が不明であるため、日本全国の発生量を元に按分した。その他東日本1都10県については下水道統計（下水道協会）をもとに設定した。

#### ② 廃棄物等の処理プロセスパラメータ

一般廃棄物については、焼却・熔融方式別の焼却残さ発生率を2014年度までに整理したデータをもとに設定した。下水汚泥については、中間処理における投入物に対する産出物の発生率を2014年度までの調査データをもとに設定した。

#### ③ 廃棄物等のフロー制御パラメータ

一般廃棄物については、福島県およびその他東日本で用いられている焼却・熔融方式の焼却割合と処理によって発生する焼却残さの仕向先別割合を設定した。いずれも環境省一般廃棄物処理実態調査のデータをもとに設定した。なお、前者に関しては福島県とその他東日本について別々

の数値が利用可能であったため異なる数値を用いているが、後者については福島県とその他東日本問わず同じ数値を用いている。下水汚泥については、中間処理方法別の処理割合を 2014 年度までの調査データをもとに設定した。

④ 放射性セシウム量（放射性セシウム濃度×廃棄物等の発生量）

2014 年度までに整理した放射性セシウム濃度実測データをもとに設定した。

⑤ 放射性セシウムの処理プロセスパラメータ

一般廃棄物については、焼却・熔融方式別の各種焼却残さへの放射性セシウム分配率を 2014 年度までに整理したデータをもとに設定した。下水汚泥については排ガス・排水を除けば中間処理による産物が基本的に 1 種類であるため、投入された放射性セシウムは全量産出物に移行するものとした。すなわち脱水処理における処理水や焼却処理における排ガスへは移行しないものとした。

2) 動脈部門投入後の入力データおよびパラメータの作成

動脈部門投入後のフローデータは、廃棄物等の再資源化量をスタートとして、最終的に製品としてストックされる部分までを扱った（図 3.1-5）。ただし、今回の計算では廃棄物等に含まれる放射性セシウムフロー（放射性セシウム量）の記述に主眼を置いたため、動脈部門における素材製造プロセスへの天然資源等他の素材・原料の投入量は与えていない。この点に関する課題は後述する。

以下にそれぞれのデータ、パラメータの作成方法について述べる。

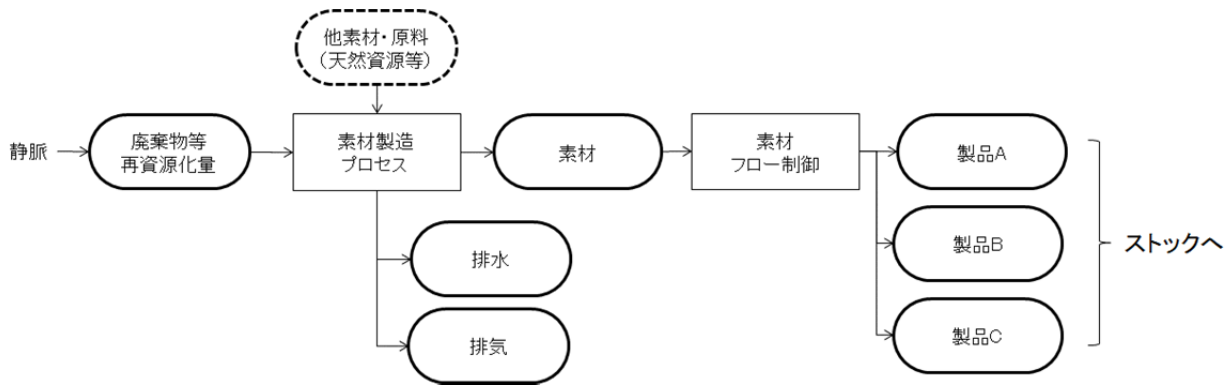


図 3.1-5 動脈部門投入後のフロー推計のイメージ図

① 物品の発生量（処理への投入量）

廃棄物等の動脈部門への投入量は廃棄物等（ここでは一般廃棄物焼却残さと下水汚泥）について設定した発生量と各種パラメータから計算されるので、動脈部門について新たに与える必要はない。廃棄物等以外の素材・原料（天然資源等）の投入量は前述の通り今回の計算では考慮していない。

## ② 物品の処理プロセスパラメータ

過去に NIES で構築した全国版の物質フロー・ストックモデル<sup>2)</sup>の素材製造プロセスのデータを基本的には用いた。ただし、動脈部門のプロセスに関しては、他の原材料の投入や排水・排気などは考慮されておらず、投入された廃棄物等はそのまま次のプロセスに全量に移行する形で計算を行った。このため、Cs も排水・排気などで自然圏に抜けずにそのまま全量が製品に付随して人工圏に蓄積する計算となっていることに留意する必要がある。この点は今後修正が必要である。

## ③ 物品のフロー制御パラメータ

フロー制御パラメータについては、各素材の最終的な用途を業界統計や官公庁の生産統計を用いて設定した。

## ④ 放射性セシウム量

動脈部門へ投入される廃棄物等のフローに伴う放射性セシウム量は、廃棄物等について設定した放射性セシウム量と各種パラメータから計算されるので、動脈部門について新たに与える必要はない。

## ② 放射性セシウムの処理プロセスパラメータ

動脈部門の処理プロセスにおける放射性セシウム挙動に関する情報はほとんど得られず、そのため、基本的には投入物に含まれる放射性セシウムは産出物（製品）へ全量移行するものとして取り扱った。すなわち、前述の通り排水・排気などへの移行や系内蓄積は考慮されておらず、そのまま次の利用先に放射性セシウムの全量移行する計算となっている。このため、廃棄物等の有効利用に伴って動脈部門へ投入された放射性セシウムは、計算上そのまま全量が製品に移行して人工圏に蓄積される計算となっていることに改めて留意されたい。排気・排水等による自然圏への移行、動脈部門から発生する廃棄物への移行、また、セメント製造工程における塩素バイパスによる放射性セシウムの系内循環等の可能性もあるため、動脈部門における処理プロセスデータは調査によって今後実態を反映することが必要である。

### (3) 試算結果

#### 1) 一般廃棄物焼却残さの試算結果

福島県およびその他東日本の一般廃棄物（焼却灰）を最終需要量として与えたケースの試算結果を図 3.1-6 および図 3.1-7 に示す。図の投入産出表形式で示された計算結果の見方であるが、図 3.1-6（物品量のフロー）の「002-その他東日本」を例に説明すれば下記のようなになる。他の物品フローや放射性セシウム量のフローについても同様に追跡することが可能である。

- ① 出発点は最右列の「最終需要」の欄であり、1683 千トンの焼却灰が発生していることが示されている（マイナスで表示）。今回の計算では便宜的に焼却残さが発生する形で計算したことは既に述べたとおりである。
- ② この数字は一旦「001-一廃フロー」の列へ移され（プラスで表示）、「焼却（ストーカ式）」、「焼

却（流動床式）」、「焼却・灰溶融」、「ガス化溶融」の行へそれぞれ 842 千トン、219 千トン、505 千トン、118 千トンが投入される（マイナスで表示）。

- ③ 投入された焼却残さは、例えば「焼却（ストーカ式）」への投入 842 千トンについて見ると、一旦「一廃（その他東日本）焼却（ストーカ式）」の列へ移され（プラスで表示）、そこから「焼却主灰」の行で 646 千トン、「焼却飛灰」の行で 196 千トンが生じる（マイナスで表示）。
- ④ ここで生じた 646 千トンの焼却主灰は「一廃（その他東日本）焼却（流動床式）」から生じた 66 千トンの焼却主灰とともに 711 千トンの焼却主灰として「001-一廃フロー」の列へ移され、そのうち 626 千トンが「埋立」の行へ、85 千トンが「002-中間製品」の「セメント原料」の列へ投入される（マイナスで表示）。
- ⑤ 「埋立」へ投入された 626 千トンの焼却主灰は、「099-最終処分」の列へ移された後、「OUT」「001-処分場等」の「最終処分場」の行へ投入されて（1542 千トンの一部）ストックとなる。セメント原料への投入 85 千トンは、「053-製造業」の列へ移され（87 千トンの一部）、「セメント」の行、「051-製品フロー」の列を経て「002-人工物」の行へ投入されてストックとなる。

計算結果では、放射性セシウム量を見ると最終処分場以外にも再資源化され人工圏に移動している様子が表現されている。ただし、今回の試算では、焼却方式の違いによる主灰と飛灰の発生割合などは変えているが、焼却残さの放射性セシウム濃度レベルによって処理方法に違いを持たせていない（高濃度のものは全量を保管にする等）ため、放射性セシウムフローの実態を反映していない可能性がある。福島県については放射性セシウム濃度レベルに応じて焼却残さを 3 つの物品に分割したが、その発生量や処理方法の実態をふまえて異なる入力データとフロー制御パラメータを設定することで、実態を反映した放射性セシウムフローを表現することが可能である。また、最終処分場や人工圏に移動した放射性セシウム量（図 3.1-7 の右下部分）はストックモデルで処理することができ、その後の挙動を把握することができる。



2) 下水汚泥の試算結果

福島県およびその他東日本の下水汚泥を最終需要量として与えたケースの試算結果を図 3.1-8 および図 3.1-9 に示す。結果の見方は一般廃棄物焼却残さのケースと同様である。

合計 / 物品(1000t)				ProcessArea	ProcessClass	ProcessName												
GoodsArea	GoodsClass	GoodsName	GoodsSub	=001 福島県								=002 001-その他日本		=003 日本		最終需要		
				011-産業廃棄物	012-産業輸送・産業	013-産業中間処理	098-保管	002-001-その他日本	011-産業フロー制御	013-産業中間処理	099-最終処分							
001-福島県	003-産業物等	019 有機性汚泥(下水汚泥)(発生時) 019 有機性汚泥(下水汚泥)	発生	0	0	1,670	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-1,670	
			堆肥・飼料製造 脱水・乾燥 中間処理後	-1,668	0	0	0	0	1,668	0	0	0	0	0	0	0	0	0
002-その他日本	003-産業物等	019 有機性汚泥(下水汚泥) 019a 脱水汚泥	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-30,632
			脱水・乾燥 発生 埋立	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
003-日本	002-中間製品	019 有機性汚泥(下水汚泥)	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			埋立	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			クリンカ	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			セメント	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			セメント原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			たい肥原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			骨材	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			骨材原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			堆肥	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			土壌改良剤	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			土壌改良剤原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
OUT	001-処分物等	001-処分物等	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-141
			保管物	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			建設	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			道路	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			その他土木	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
003-大気・水圏	004-土壌面	004-土壌面	発生	0	0	0	-1	-1,589	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-38
			発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
005-その他	005-その他	005-その他	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-25
			発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

図 3.1-8 下水汚泥試算ケース (物品量)

合計 / Cs(10 <sup>9</sup> Bq)				ProcessArea	ProcessClass	ProcessName												
GoodsArea	GoodsClass	GoodsName	GoodsSub	=001 福島県								=002 001-その他日本		=003 日本		最終需要		
				011-産業廃棄物	012-産業輸送・産業	013-産業中間処理	098-保管	002-001-その他日本	011-産業フロー制御	013-産業中間処理	099-最終処分							
001-福島県	003-産業物等	019 有機性汚泥(下水汚泥)(発生時) 019 有機性汚泥(下水汚泥)	発生	0	0	14,170	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-14,170	
			堆肥・飼料製造 脱水・乾燥 中間処理後	-14,155	0	0	0	0	14,155	0	0	0	0	0	0	0	0	0
002-その他日本	003-産業物等	019 有機性汚泥(下水汚泥) 019a 脱水汚泥	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-92
			脱水・乾燥 発生 埋立	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
003-日本	002-中間製品	019 有機性汚泥(下水汚泥)	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			埋立	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			クリンカ	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			セメント	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			セメント原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			たい肥原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			骨材	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			骨材原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			堆肥	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			土壌改良剤	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			土壌改良剤原料	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
OUT	001-処分物等	001-処分物等	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-12
			保管物	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			建設	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			道路	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			その他土木	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
003-大気・水圏	004-土壌面	004-土壌面	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-38
			発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
005-その他	005-その他	005-その他	発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-5
			発生	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

図 3.1-9 下水汚泥試算ケース (放射性セシウム量)

物品量で見た場合、福島県の下水汚泥は脱水・乾燥プロセスから排気ガス・排水として自然圏に移動する量が多い(脱水、乾燥による水分除去)。しかし、放射性セシウム量で見た場合には、福島県の下水汚泥中の放射性セシウム量は脱水・乾燥によって濃縮された後、保管に移動することになるため、自然圏には移動せず保管に全量が移動し、最終処分には移動していない。一方、その他東日本については、物品量は福島県と同様に大部分が排気ガス・排水として自然圏に移動するが、下水汚泥の放射性セシウム濃度が低いため、放射性セシウムフローは少ない。ただし、保管に移動せずに製品や最終処分に移行している様子が描かれている。

## (5) 今後の課題

本報告書では一般廃棄物焼却残さおよび下水汚泥を例として作成したフロー・ストックモデルによる計算例を示したが、他の産業廃棄物等についても同様にデータやパラメータの作成とモデルへの組み込みを行っている。ただし、他の産業廃棄物等についてはデータやパラメータ設定のための実態データ（特に放射性セシウム濃度、有効利用先の地理的な情報、中間処理における放射性セシウム分配率等）が不足している。また、災害廃棄物についてはデータやパラメータ組み込みを行っておらず、種別の発生量、放射性セシウム濃度、処理方法等の実態をふまえてモデルへのデータとパラメータ組み込みが必要である。ただし、全ての廃棄物種、処理についてこれらの実態データを取得することは非常に困難であるため、放射性セシウムフローの大きさや行方について特に着目すべきと考えられる対象を選定した上で、それらの対象についてより詳細な情報を調査していくことが重要であると考えられる。

本報告書で示した一般廃棄物焼却残さや下水汚泥の計算については、放射性セシウム濃度レベルに応じた焼却残さの発生量の精緻化と処理方法の違いをふまえたフロー制御パラメータの設定が必要である。また、動脈部門を含め、処理プロセスにおける系内蓄積や排ガス・排水への排出有無の実態把握と処理プロセスパラメータへの反映が必要である（焼却や脱水プロセスにおいてはほぼ排ガス・排水を通じた排出はないという知見があるが、他の処理プロセスにおいては検証する必要がある）。

モデル構造上の課題としては、動脈部門における天然資源投入フロー記述の追加が挙げられる。廃棄物等由来の放射性セシウム量のフロー・ストックを表現する上では現在の構造でも問題はないが、廃棄物等を原料の一部として使用した製品の使用に伴う放射性セシウムの蓄積とそれに起因する被ばく評価を行うにあたっては、動脈部門からの産物の放射性セシウム濃度情報を出力させる必要がある。本モデルは物量と放射性セシウム量から放射性セシウム濃度を計算する構造となっているため、着目する廃棄物種と製品に係るプロセスに関し、特に製品へ移行する物品となる天然資源の投入フローについて追加することが必要である。

## 参考文献

- 1) 国立環境研究所 (2014) 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)、  
[http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo\\_r4\\_140414\\_all.pdf](http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r4_140414_all.pdf)
- 2) 橋本征二、稲葉陸太、加用千裕、高木重定、田崎智宏、南斉規介、藤井崇、藤井実、森口祐一、吉川実、大迫政浩 (2012) 日本の物質フロー・ストックモデルの構築とその適用、第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、17-18

### 3.1.3 中間貯蔵施設への汚染土壌等ロジスティクシステムの構築と評価

#### (1) はじめに

福島県の環境回復のためには、県内の除染活動で発生した約トン約 1,600 万～2,200 万 m<sup>3</sup> の大量の汚染土壌や除染廃棄物を、県内に点在する集約保管されているだけで数百箇所、宅地内等の分散保管等を含めると数万箇所から、できるだけ早期にかつ安全に 2 箇所の中間貯蔵施設へ搬入する必要がある。車両輸送が主体となるこの大規模な輸送を計画するためには、いくつかの制約を考慮する必要がある。



まず、仮置場等の保管の場では、保管していた汚染土壌等の移動や内容物の確認・タグ付け、荷姿の検査、水切り等の作業に時間を要し、また、クレーン等の機材の台数や車両が進入する荷積みのスペースに制限があるため、時間当たり搬出量には上限がある。同様に中間貯蔵施設では、これらの作業と共に、搬入車両のスクリーニングや洗浄に時間を要するため単位時間あたりの受入量に上限がある。すなわち、荷出・搬入速度以上に運搬車両を配車しても無駄となる。

道路網と車両を用いる輸送にも制限がある。仮置場等への進入路の幅員に適合しない車格の車両を用いることはできない。特定の経路に車両の運行を集中させて渋滞を引き起こしてはならない。居住地域においては学校や病院等の迂回や通勤・通学時間帯の運行に配慮が必要である。季節（降雪期）や天候（豪雨）等により通行が困難な経路がある。また、運転手の労働時間には制限があり休憩が必要である。

以上のような種々の制約が、期限が定めた仮置場から中間貯蔵への輸送期間に与える影響を評価するため、輸送車両の運行シミュレーションを行う上での用語と定義について示す。

## (2) 運行シミュレーションにおける用語と定義

### 1) トリップの定義とガントチャート（運行図）

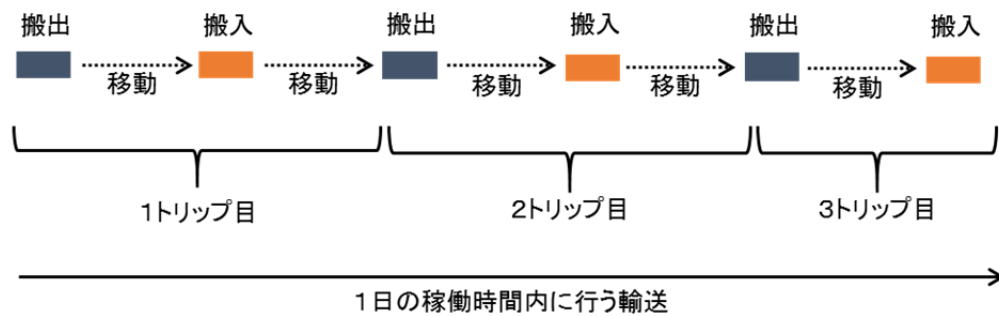


図 3.1-10 一台の車両による輸送のガントチャート

ある仮置場から一台の輸送車両が荷を搬出し移動して中間貯蔵施設へ搬入し、元の仮置場まで戻る過程を「1トリップ」とする。搬出および搬入時には先に示した種々の作業時間が生ずるため、1トリップに要する時間は搬出時間+移動時間+搬入時間+移動時間となる。移動時間は仮置場毎に中間貯蔵施設との位置関係、季節・時間帯、休憩時間の有無で決まる。その一日の稼働時間における流れを図3.1-10に示す。一台の車両は一日に定められた稼働時間内にガントチャートに示すようにトリップを重ねることことになる。運行シミュレーションでは、仮置場に配置された輸送車両毎に、搬出・搬入・移動時間の与条件を設定したガントチャートが作成され、全車両について重ねあわせることで、全輸送時間や道路交通量等が評価される。

### 2) 系統数

搬入や搬出作業を行う場で同時に作業できる、すなわち同時に車両による搬入や搬出ができる数を「系統数」とする。系統数は、仮置場や中間貯蔵施設における作業や駐車のためのスペース、重機や作業員の数等によって決まる。

### 3) 限界車両台数

図 3.1-10 のガントチャートで示されるある仮置場における車両の移動時間内には他の車両による搬出または搬入作業が可能である。しかし、移動時間および系統数を越える車両を投入すると待ちが発生する。各仮置場ならびに中間貯蔵施設において、待ちが発生しない最大の車両台数を「限界車両台数」とする。図 3.1-11 において系統数 1 の仮置場で限界車両台数が 5 台の場合の輸送の例を示す。限界車両台数は系統数と仮置場と中間貯蔵施設の距離が増えれば大きくなる。

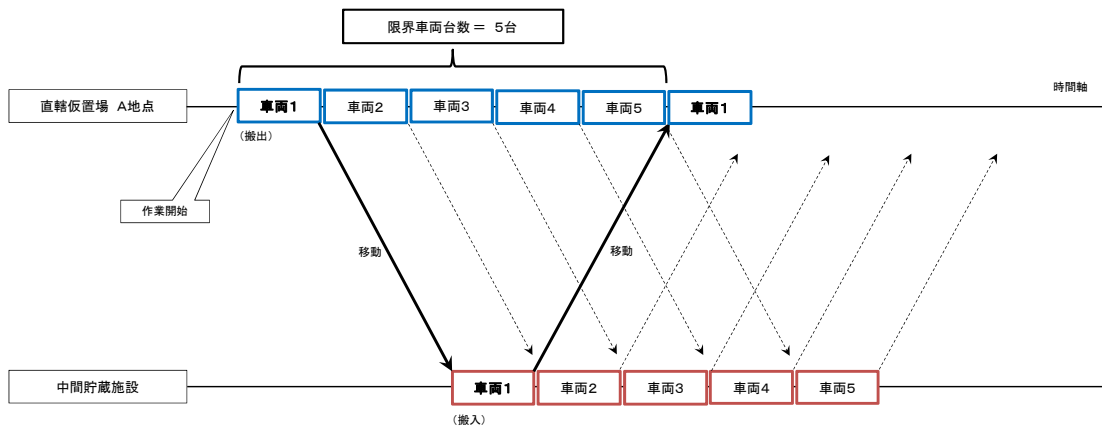


図 3.1-11 限界車両台数による輸送の例（系統数 1・限界車両台数 5 の場合）

### (3) おわりに

今後は、以上に示した「トリップ」、「系統数」、「限界車両台数」という考え方に基づいて、福島県内における仮置場の位置、汚染土壌等の仮置量、道路網データ等を用いて、運行シミュレーションを進めてゆく予定である。

## 3.2 測定モニタリング管理手法開発

### 3.2.1 被災建築物解体に係る放射線・放射能の調査

#### (1)はじめに

福島第一原子力発電所事故により放射性セシウムが降下した地域のうち、旧警戒区域のように現在も被災建築物がそのままの地域がある。全壊家屋、大規模半壊家屋等については、荒廃が進んでいることから解体撤去の必要がある。被災建築物の解体によって発生する廃棄物について、量や放射エネルギーを推計するための情報が不足している。解体作業従事者の作業環境については、解体作業が除染等業務にも特定線量下業務にも該当しないために、現状の法規制やガイドラインでは、適切な作業要領や放射線防護に関して十分に対応できるものではない。さらに、公道や農地等の除染作業は進んでおり、被災建築物の解体作業等による放射性物質の飛散が懸念されている。しかしながら、これらの問題点に関する知見は非常に限定的なものである。

#### (2)目的

上述の背景を踏まえ、以下の2点を目的として調査を実施した。1点目は、作業従事者の被ばく量の把握とその低減のための適切な防護方法や作業手順の選択に資する放射エネルギースクリーニング方法の提案である。2点目は解体廃棄物の放射能濃度に応じ、適切な処理処分の方法(選別)を行うために必要な放射能濃度推定方法の提案である。

以上の目的のため、作業従事者の被ばく量、作業現場及び周辺での空気及び降下物中の放射エネルギー、建築物の屋外及び屋内の部材の放射能濃度及び放射線量、さらに建築物とその周囲の放射エネルギー分布を把握するための調査を実施した。

#### (3)調査内容

##### 1)調査場所

福島県双葉郡富岡町（居住制限区域、避難指示解除準備区域）で調査を実施した。

##### 2)実施期間及び工程

避難指示解除準備区域での調査は平成26年11月6日（金）から平成26年12月25日（木）に、居住制限区域での被災建築物調査は平成26年12月4日（木）～平成27年3月4日（水）に実施した。

##### 3)対象家屋の調査内容

調査対象家屋の対象区域及び調査内容について、表3.2-1に示す。避難指示解除準備区域の調査対象家屋2棟を以下それぞれTA-1、TA-2、居住制限区域の3棟を以下それぞれTB-1、TB-2、TB-3と表記する。なお、解体作業前のTA-1及びTA-2の敷地境界での空間線量率は0.64~0.93  $\mu\text{Sv/h}$ (n=3)の範囲であり、TB-1、TB-2、TB-3についてはそれぞれ2.08~3.02  $\mu\text{Sv/h}$ (n=3)、1.00  $\mu\text{Sv/h}$ (n=3)、0.49~1.22  $\mu\text{Sv/h}$ (n=3)であった((4)-5)項調査Fに詳細を記す)。

表 3.2-1 各区域の測定・調査対象棟数

調査名	調査内容	居住制限区域	避難指示解除準備区域
B	作業従事者の被ばく管理・評価	1 棟 (TB-1)	2 棟 (TA-1, TA-2)
C	敷地内ダスト・降下物採取測定 敷地外・降下物採取測定	1 棟 (TB-1)	2(1)棟 (TA-1, TA-2)
D	建屋外部空間線量率測定 建屋外部部材試料採取・測定 (破壊測定)	1 棟 (TB-1)	2 棟 (TA-1, TA-2)
	建屋内部空間線量率測定 表面密度測定 建屋内部部材試料採取・測定 (破壊測定)		
E	建屋放射線分布測定 (ガンマカメラ)	3 棟 (TB-1, TB-2, TB-3)	-
F	敷地境界等空間線量率測定	2 棟 (TB-1, TB-3)	2(1)棟 (TA-1, TA-2)

(注)調査 A は、建屋外部表面密度測定を実施し、3-1 フローストックのリスク評価と管理システム開発に詳細を記載する。

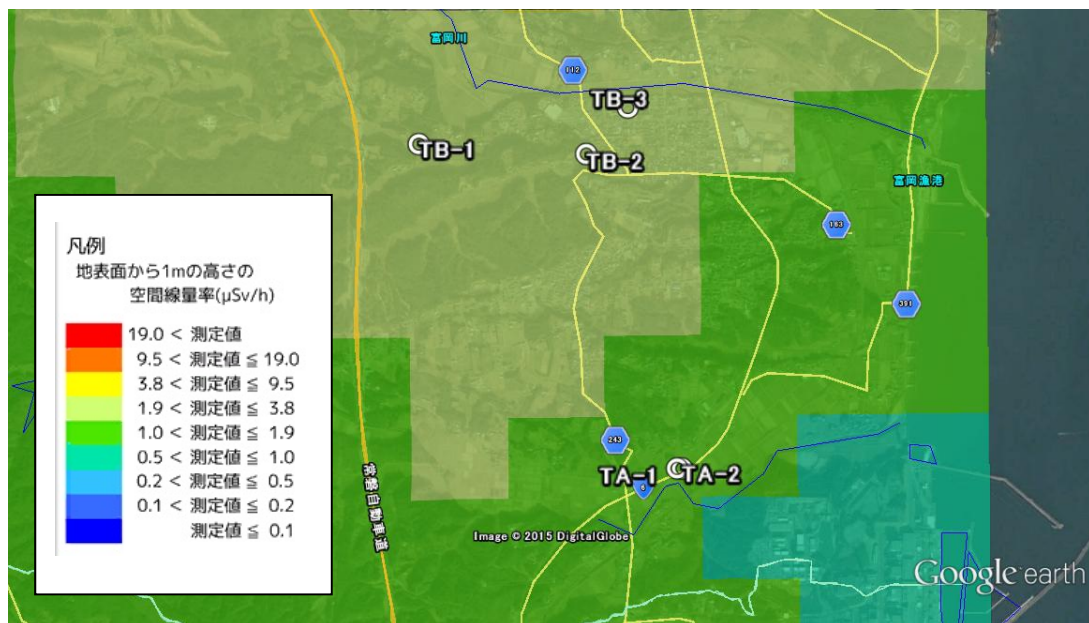


図 3.2-1 調査対象建築物と第 8 次航空機モニタリング線量分布

#### 4) 調査内容詳細

調査 B：作業従事者の被ばく管理・評価

家屋解体作業に伴う作業者の被ばく状況について調査した。調査は、解体作業従事者に作業中にポケット線量計（日立アロカメディカル社製：PDM-122B）を装着した状態で作業してもらい、解体作業による $\gamma$ 線による実効線量当量（外部被ばく）を評価した。また、作業者が装着していた防じんマスクを回収し、Ge 半導体検出器 GMX-40 及び GEM-30（SEIKO EG&G Ortec 社製）を用いて防じんマスクに付着している放射性 Cs 量の測定を行った。また、日々の作業内容について、作業日報により確認した。

#### 調査 C：敷地内ダスト・降下物採取測定、敷地外・降下物採取測定

家屋解体に伴う粉じん等の飛散について、4つの手法を用いて調査した。1) 水盤法を用いたデポジットゲージによる大気降下物の採取を行った。解体作業前及び作業中の期間に、家屋の敷地内近傍 1 地点、敷地外の東西南北の 4 地点にデポジットゲージを設置して降下物を採取し、放射性セシウム降下量を Ge 半導体検出器を用いて測定した。2) ハイボリウムエアサンプラを用いて解体作業場所付近の空気を採取し（500 L/分×360 分）、粉じん量及び粉じん中に含まれる放射性セシウム量を Ge 半導体検出器により評価した。3) ローボリウムエアサンプラを用いて解体作業付近の浮遊粒子状物質（ $< 10 \mu\text{m}$ ）を採取し（9.6 L/分×360 分）、浮遊粒子状物質に含まれる放射性セシウム量を Ge 半導体検出器を用いて測定した。4) デジタル粉じん計を用いて作業環境空気中の単位時間当たりの粉じん数を計測し、解体作業内容による発じん状況の変動を確認した。

#### 調査 D：建屋内外部部材表面線量率、表面密度測定、 建屋内外部部材試料採取・測定（破壊測定）

屋内外の部材及び残置物の汚染状況について調査した。調査は、家屋の主たる構造物、廃棄分類、部位や付着物の有無などに着目して、写真撮影、試料採取、放射能濃度の測定を行った。屋内（一部屋外含む）については、構造物表面の素材と位置に留意してスミア法による拭き取った試料の表面汚染密度を、GM 管式サーベイメータ（日立アロカメディカル社製：TGS-146）またはラギッドプラスチックシンチレーション式サーベイメータ（日立アロカメディカル社製：TCS-319H）を用いて測定した。家屋内外の空間線量率及び試料採取場所付近の表面線量率は、NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータ（日立アロカメディカル社製：TCS-172B）及び電離箱式サーベイメータ（応用技研社製：AE-133）を用いて測定した。部材等の放射性セシウム濃度（Cs134、Cs137）は、採取試料を破碎・粉碎等の前処理後に U8 容器に封入した後、バックグラウンド空間線量率の低い場所に設置した NaI(Tl)可搬型放射能測定装置（Thermo Scientific 社製：SX-SPA）を用いて測定した。測定が困難な試料や、Cs137 と Cs134 の比率が明らかに震災由来とは異なる試料については、国立環境研究所に持ち帰り Ge 半導体検出器を用いて測定した。測定後の試料は解体廃棄物を入れたフレコンバッグに戻した。

#### 調査 E：建屋放射線分布測定（ガンマカメラ）

ガンマカメラにより家屋及びその周囲の汚染状況を俯瞰的に把握した。被災建築物の解体前及び解体後の放射線分布状況について、ガンマカメラ（日立アロカメディカル社製：

HGD-E2000) を用いて測定した。被災建築物の解体前に、汚染状況が特徴的な部位について撮影を行い、解体後には敷地内の残留放射能とその他環境放射線の影響の強い部位について確認した。

#### 調査 F：敷地境界等空間線量率測定

家屋及びその周囲の汚染状況を確認するため、敷地の境界及び内外の空間線量率を測定した。除染ガイドラインに記載されている手法を用いて、NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータにより、解体作業前及び解体作業後の空間線量率を測定した。

### (4) 調査結果

#### 1) 作業従事者の被ばく管理・評価（調査 B）

本調査では、解体作業のうち、内装材及び外装部材等の片付けや取り外し、瓦降ろし、それらのフレキシブルコンテナへの破碎・封入作業、重機による主構造材の解体、基礎の撤去、覆土までの解体工程の状況と、重機操縦者とその他手作業従事者の被ばく線量を確認した。TA-1 及び TA-2 では、対象建築物 4 棟（母屋 2 棟、離れ 2 棟他）の解体を 11 月 17 日～12 月 26 日の期間に実施しており、その期間の被ばく量を表 3.2-2 にまとめた。

表 3.2-2 外部被ばく線量測定結果（TA-1 および TA-2）

従事者	実効線量当量 ( $\mu\text{Sv}$ )	従事日数 (日)	実効線量当量 ( $\mu\text{Sv/日}$ ) <sup>(*)1</sup>	増加分 <sup>(*)2)-(*)1</sup> ( $\mu\text{Sv/日}$ )
1(現場責任者、重機操縦者)	91	34	2.68	-0.84
2	103	27	3.81	+0.29
3	234	34	6.88	+3.36
4	188	34	5.53	+2.01
5	113	34	3.32	-0.20

TA-1 及び TA-2 作業場所（敷地内）の空間線量率のうち、作業開始前で最も高かった地点が 0.93  $\mu\text{Sv/h}$ 、最小が 0.64  $\mu\text{Sv/h}$  であった。作業時間（8:30～10:00、10:30～12:00、13:00～15:00、15:30～16:00、合計 5.5 時間/日）における作業現場に滞在することによる実効線量当量は、119.7～173.9  $\mu\text{Sv/作業}$ （3.52～5.12  $\mu\text{Sv/日}$ <sup>(\*)2</sup>）と予想された。この推定実効線量当量を超過する線量当量(表に示す増加分)は解体作業の実施による追加被ばくであり、この値に基づいて解体作業中の被ばく低減を検討する必要がある。防じんマスクの放射性セシウム付着量（それぞれの作業終了日に半減期補正を行った Cs134 と Cs137 の放射エネルギーの和）は、4.61～16.6 Bq/人（最小は 12 月 15 日～17 日、最大は 12 月 18 日～19 日）の範囲であった。

同様に、TB-1 では、1 月 13 日～1 月 31 日の期間に 1 棟の解体作業を行った。解体作業による被ばく量の測定結果を表 3.2-3 に示す。

表 3. 2-3 外部被ばく線量測定結果 (TB-1)

従事者	実効線量当量 ( $\mu\text{Sv}$ )	従事日数 (日)	実効線量当量 ( $\mu\text{Sv}/\text{日}$ ) <sup>(*)1</sup>	増加分 <sup>(*)2-(*)1</sup> ( $\mu\text{Sv}/\text{日}$ )
1(重機操縦者)	139	16	8.69	-2.75
2(重機操縦者)	88	17	5.18	-6.26
3	106	16	6.63	-4.81
4	141	13	10.9(10.85)	-0.59
5	79	11	7.18	-4.26
6	9	1	9	-2.44
7	3	1	3	-8.44

TB-1 の作業場所(敷地内)の空間線量率のうち、作業開始前で最も高かった地点が  $3.02 \mu\text{Sv}/\text{h}$ 、最小が  $2.08 \mu\text{Sv}/\text{h}$  であった。作業時間 (8:30~10:00、10:30~12:00、13:00~15:00、15:30~16:00、合計 5.5 時間) における作業現場に滞在することによる実効線量当量は、 $194.5\sim 282.4 \mu\text{Sv}/\text{作業}$  ( $11.44\sim 16.61 \mu\text{Sv}/\text{日}$ )<sup>(\*)2</sup> と予想された。この推定実効線量当量を超過する作業従事者が居なかったことから、空間線量率の比較的低い場所 (母屋脇の屋根付き倉庫前の土間等) に作業従事時間以外は滞在するようにしていたことなど、解体廃棄物の取扱に伴う被ばく低減を実施できたケースと考えられる。防じんマスクの放射性セシウム付着量 (それぞれの作業終了日に半減期補正を行った Cs134 と Cs137 の放射エネルギーの和) は、重機操縦者が  $5.41\sim 8.97 \text{Bq}/\text{人}$ 、玉掛他手作業中心の従事者が  $19.4\sim 52.4 \text{Bq}/\text{人}$  の範囲であった。重機操縦者と手作業主体の作業従事者で明らかに防じんマスクへの付着量が異なり、重機操縦者が関与しない解体廃棄物の分別封入、フレコンの移動作業が防じんマスクへの放射性セシウム付着量への影響が大きいと考えられた。

避難指示解除準備区域と居住制限区域の解体工事について比較すると、避難指示解除準備区域の工期 34 日間に対して居住制限区域の工期が 17 日間と、避難指示解除準備区域の解体工事工期が長かった。また、作業従事者数は避難指示解除準備区域の 5 名に対し、居住制限区域内が 7 名 (その他関連業務を含むと 14 名) と、避難指示解除準備区域の作業従事者数が少なかった。このように、避難指示解除準備区域での解体工事が長期かつ従事者数が少人数であったため、1 人当たりの総被ばく線量は高くなったが、1 日当りでは避難指示解除準備区域は平均  $4.4 \mu\text{Sv}/\text{日}$  に対して、居住制限区域では平均  $6.4 \mu\text{Sv}/\text{日}$  と環境放射線が高い作業場所で高い結果であった。また、居住制限区域の重機作業者は、環境放射線が高い作業場所で全ての日程で業務をしていたため積算被ばく線量が高くなったが、1 日当りの被ばく量で比較すると、重機操縦者よりも玉掛け作業や手作業者の被ばく量が総じて高くなる傾向であった。

被ばく線量と作業内容の関係を見るため、被ばく線量を目的変数、作業内容を説明変数として重回帰分析を行った。避難指示解除準備区域の解体作業では、有意に被ばく量を大きくする作業 (標準偏回帰係数が正) として「瓦撤去」が選択された。他には「内装材撤去」、「建築物解体」が選択されたが、有意ではなかった。居住制限区域の解体作業では、有意に被ばく量を小さくす

る作業(標準偏回帰係数が負)として「内装材撤去」が選択された。被ばく量を大きくするもの作業として「瓦撤去」、「建築物解体」が選択されたが有意ではなかった。統計解析では、現状の作業工程のうち瓦撤去による外部被ばくが、最も大きくなる要素、内装材撤去(室内部材撤去及び片づけ等)では外部被ばくにならない要素であると示唆された。

## 2) 家屋解体に伴う粉じん等の飛散状況の調査 (調査 C)

### (a) 作業環境における大気中放射能濃度測定

解体作業期間中の作業環境における大気中の放射能濃度と粉じん量の測定を行った。TA-1 及び TA-2 の調査における各サンプラの設置場所を図 3.2-2、TB-1 の調査における各サンプラの設置場所を図 3.2-3 に示す。また、TA-1 及び TA-2 の測定結果を表 3.2-4、TB-1 の測定結果を表 3.2-5 に示す。ハイボリウムサンプラ、ロウボリウムサンプラ、デジタル粉じん計と解体対象建築物までのおよその距離は、TA-1 母屋解体時は 5 m、TA-1 離れ解体時は 10 m、TA-2 母屋解体時は 8 m、TB-1 母屋解体時は 8 m の位置にてサンプリングを行った。

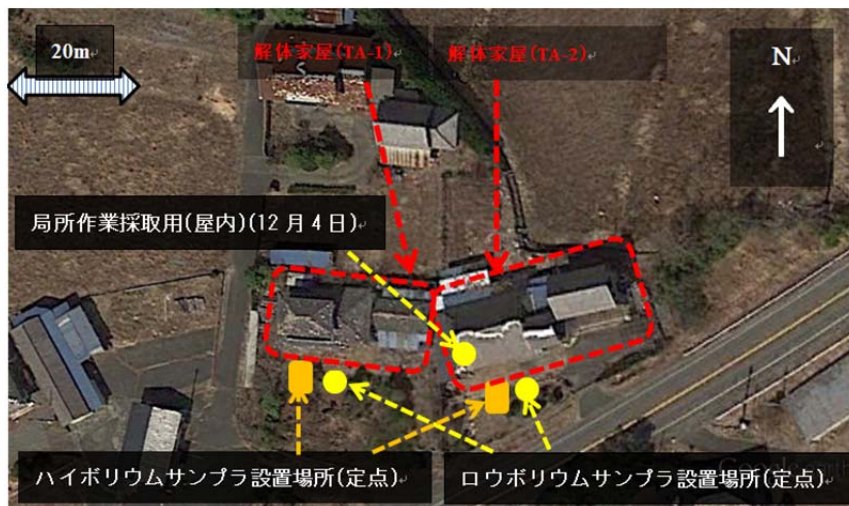


図 3.2-2 サンプラ設置場所 (TA-1 及び TA-2)

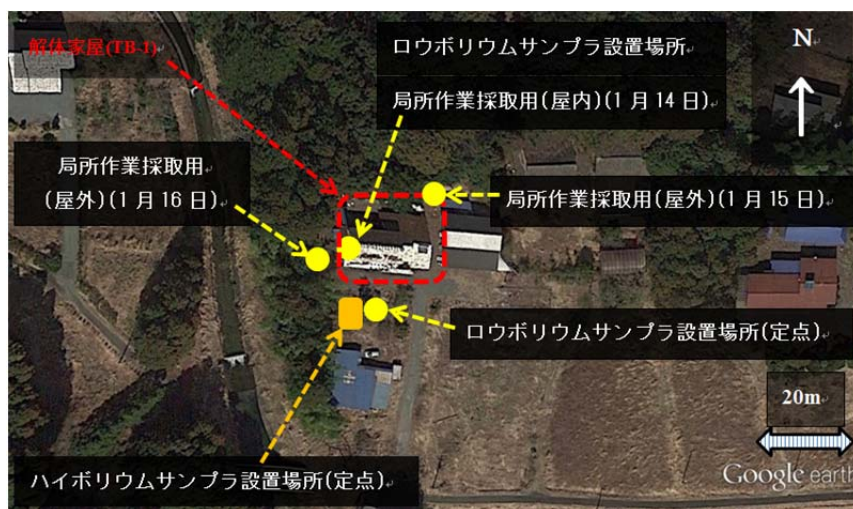


図 3.2-3 サンプラ設置場所 (TB-1)



表 3.2-4 TA-1 および TA-2 の解体作業中の粉じん濃度

設置場所	採取日	採取粉じん量 (1) mg	作業環境中の 放射能濃度(2) mBq/ m <sup>3</sup>	作業環境中の Cs137 放射能濃度 mBq/ m <sup>3</sup>
TA-1	11 月 20 日	13.1	4.67	3.57
TA-1	11 月 21 日	41.2	9.09	6.79
TA-1	11 月 22 日	10.9	3.49	2.54
TA-1	12 月 2 日	3.1	2.70	1.88
TA-2	12 月 3 日	4.0	0.866	0.632
TA-2	12 月 4 日	8.3	10.6	8.32
TA-2	12 月 11 日	8.5	(< 0.743) <sup>(3)</sup>	0.544
TA-2	12 月 12 日	12.9	2.28	1.79

(1)ハイボリウムサンプラのガラス繊維ろ紙に捕集された粉じん量。(2)放射能濃度は Cs134 と Cs137 の和であり、採取日に半減期補正を行った。(3)Cs134 の放射能濃度は検出下限値未満であったため、Cs134 の検出下限値 (0.199 mBq/ m<sup>3</sup>) と Cs137 の放射能濃度 0.544 mBq/ m<sup>3</sup> の和未満とした。採取日に半減期補正を行った。

表 3.2-5 TB-1 の解体作業中の粉じん濃度

設置場所	採取日	採取粉じん量 (1) mg	作業環境中の 放射能濃度(2) mBq/ m <sup>3</sup>	作業環境中の Cs137 放射能濃度 mBq/ m <sup>3</sup>
TB-1	1 月 14 日	4.3	0.763	0.561
TB-1	1 月 15 日	7.5	3.43	2.59
TB-1	1 月 16 日	1.3	LOD(0.210) <sup>(3)</sup>	LOD(0.110) <sup>(3)</sup>
TB-1	1 月 21 日	11.4	6.67	5.11

(1)ハイボリウムサンプラのガラス繊維ろ紙に捕集された粉じん量。(2)放射能濃度 Cs134 と Cs137 の和であり、採取日に半減期補正を行った。(3)測定結果は検出下限値未満 (LOD: Lower Than Detection Limit) であり、検出下限値をカッコ内に記した。

- ・参考 (出典：福島県 (2015) 大気浮遊じんモニタリング結果情報)

採取場所：富岡町富岡 (旧富岡町役場)

採取期間：2014 年 11 月 1 日～30 日

Cs134=0.059 mBq/ m<sup>3</sup>/ 月、Cs137=0.130 mBq/ m<sup>3</sup>/ 月

Cs134+Cs137=0.189 mBq/ m<sup>3</sup>

採取期間：2014 年 12 月 1 日～31 日

Cs134=0.13 mBq/ m<sup>3</sup>/ 月、Cs137=0.41 mBq/ m<sup>3</sup>/ 月

Cs134+Cs137=0.54 mBq/ m<sup>3</sup>

採取期間：2015年1月1日～31日

Cs134=0.14 mBq/ m<sup>3</sup>/ 月、Cs137=0.56 mBq/ m<sup>3</sup>/ 月

Cs134+Cs137=0.70 mBq/ m<sup>3</sup>

作業環境大気中の浮遊じん量及び放射能濃度を確認したところ、同時期の福島県の大気浮遊じんモニタリングにおける富岡町の大気浮遊じん中の放射能濃度より高い傾向にあった。作業内容や天候による変動が見られ、重機による解体作業、瓦おろし作業、家屋内装品片付け作業の順に測定結果が高くなる傾向があり、風速が強かった日では希釈拡散効果により採取量が少なめに出る傾向があった。

### (b) 大気降下物の採取

本調査では、風によって地表から舞い上がった粉じん等のうち、比較的粒径が大きく重いため大気中で浮遊してはならず降下する乾性降下物や、雨や雪等に取り込まれて降下する湿性降下物を大気降下物とした。

大気降下物は、環境試料採取法（文部科学省、1983年）に記載されている大気降下物採取法に準じて、開放系の採取容器（デポジットゲージ：DG）を用いて採取した。TA-1及びTA-2の解体時のDG設置位置について図3.2-4に示した。TA-1中央からDGまでの距離は、北側（105m）、東側（105m）、南側（115m）、西側（40m）、近傍（30m）であった。TA-2中央からDGまでの距離は、北側（90m）、東側（75m）、南側（125m）、西側（70m）、近傍（20m）であった。採取期間は、解体作業前の期間が2014年11月7日～20日（13日間）、解体作業中の期間が11月20日～12月25日（35日間）であった。なお、解体は、西側の建築物から東側の建築物の順序で実施された。

TB-1の解体時のDG設置地点について図3.2-5に示した。TB-1中央からDGまでの距離は、北側（40m）、東側（40m）、南側（40m）、西側（40m）、近傍（15m）であった。採取期間は、解体作業前の期間が2014年12月25日～2015年1月13日（19日間）、解体作業中の期間が2015年1月13日～2月4日（22日間）であった。



図 3.2-4 大気降下物採取容器と設置場所 (TA-1 及び TA-2)

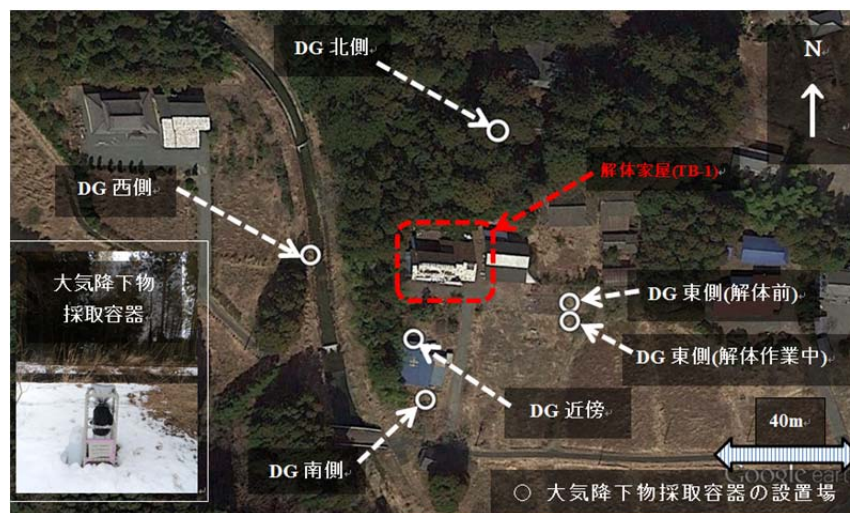


図 3.2-5 大気降下物採取容器と設置場所 (TB-1)

### (c) 放射性セシウム量の測定

採取試料は、孔径 0.45 $\mu\text{m}$  のメンブレン濾紙を用いて減圧濾過後、濾紙上に回収される不溶性成分中の放射性セシウム量 (Cs137 及び Cs134) を、Ge 半導体検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリーにより定量した。

解体作業前と作業期間中の放射性セシウム降下量を表 3.2-6 (TA-1 及び TA-2) 及び表 3.2-7 (TB-1) に、大気降下物量を表 3.2-8 (TA-1 及び TA-2) 及び表 3.2-9 (TB-1) に、それぞれ示す。放射性セシウム降下量と大気降下物重量は、解体作業前よりも解体作業中で増加した。しかしながら、今回の被災建築物の解体調査の期間に対応する大気降下物モニタリング結果 (福島県, 2015) によると、旧富岡町役場における 11 月 1 日～30 日の放射性セシウム降下量は 1.43Bq/  $\text{m}^2$ /日と報告されており、今回の調査結果はこの値と大きく異なるものではなかった。12 月 1 日～31 日までの放射性セシウム降下量は 12.3Bq/  $\text{m}^2$ /日、1 月 1 日～31 日までの放射性セシウム降下量は 15.1Bq/  $\text{m}^2$ /日であり、11 月から 12 月にかけて、12 月から 1 月にかけてそれぞれ増加傾向であったことが示唆

されている。

**表 3.2-6 TA-1 及び TA-2 の解体作業前及び解体作業中の放射性セシウム降下量<sup>(1)</sup>**

設置場所	解体作業前 <sup>(2)</sup> Bq/ m <sup>2</sup> / 日	解体作業中 <sup>(3)</sup> Bq/ m <sup>2</sup> / 日	差分 <sup>(4)</sup> Bq/ m <sup>2</sup> / 日
TA-1&2DG 北側	0.133	0.455	0.322
TA-1&2DG 東側	1.45	2.68	1.23
TA-1&2DG 南側	0.369	0.546	0.177
TA-1&2DG 西側	0.158	1.62	1.33
TA-1&2DG 近傍	0.425	1.37	0.942

<sup>(1)</sup>放射性セシウム量は試料回収時に半減期補正した Cs134 及び Cs137 放射エネルギーの和、<sup>(2)</sup>採取期間：2014 年 11 月 7 日～20 日、<sup>(3)</sup>採取期間：2014 年 11 月 20 日～12 月 25 日、<sup>(4)</sup>解体作業中と解体作業前の放射性セシウム降下量の差分

**表 3.2-7 TB-1 の解体作業前及び解体作業中の放射性セシウム降下量<sup>(1)</sup>**

設置場所	解体作業前 <sup>(2)</sup> Bq/ m <sup>2</sup> / 日	解体作業中 <sup>(3)</sup> Bq/ m <sup>2</sup> / 日	差分 <sup>(4)</sup> Bq/ m <sup>2</sup> / 日
TB-1DG 北側	5.31	8.59	3.27
TB-1DG 東側	1.53	1.68	0.146
TB-1DG 南側	2.66	5.83	3.17
TB-1DG 西側	0.550	3.79	3.24
TB-1DG 近傍	2.20	2.78	0.580

<sup>(1)</sup>放射性セシウム量は試料回収時に半減期補正した Cs134 及び Cs137 放射エネルギーの和、<sup>(2)</sup>採取期間：2014 年 12 月 25 日～2015 年 1 月 13 日、<sup>(3)</sup>採取期間：2015 年 1 月 13 日～2 月 4 日、<sup>(4)</sup>解体作業中と解体作業前の放射性セシウム降下量の差分

- ・参考 (出典：福島県(2015)降下物モニタリング結果情報)

採取場所：富岡町富岡(旧富岡町役場)

採取期間：2014 年 11 月 1 日～30 日

Cs134=12 MBq/ km<sup>2</sup>/ 月、Cs137=31 MBq/ km<sup>2</sup>/ 月

Cs134+Cs137=1.43 Bq/ m<sup>2</sup>/ 日

採取期間：2014 年 12 月 1 日～31 日

Cs134=90 MBq/ km<sup>2</sup>/ 月、Cs137=290 MBq/ km<sup>2</sup>/ 月

Cs134+Cs137=12.3 Bq/ m<sup>2</sup>/ 日

採取期間：2015 年 1 月 1 日～31 日

Cs134=98 MBq/ km<sup>2</sup>/ 月、Cs137=370 MBq/ km<sup>2</sup>/ 月

Cs134+Cs137= 15.1 Bq/ m<sup>2</sup>/ 日

表 3.2-8 TA-1 及び TA-2 の解体作業前及び解体作業中の降下物重量

設置場所	解体作業前 <sup>(1)</sup> mg/ 日	解体作業中 <sup>(2)</sup> mg/ 日	差分 <sup>(3)</sup> mg/ 日
TA-1&2DG 北側	0.731	2.83	2.10
TA-1&2DG 東側	3.72	6.67	2.96
TA-1&2DG 南側	1.25	1.34	0.097
TA-1&2DG 西側	0.654	1.88	1.22
TA-1&2DG 近傍	0.908	2.40	1.50

<sup>(1)</sup>採取期間：2014年11月7日～20日、<sup>(2)</sup>採取期間：2014年11月20日～12月25日、<sup>(3)</sup>解体作業中と解体作業前の降下物重量の差分

表 3.2-9 TB-1 の解体作業前及び解体作業中の降下物重量

設置場所	解体作業前 <sup>(1)</sup> mg/ 日	解体作業中 <sup>(2)</sup> mg/ 日	差分 <sup>(3)</sup> mg/ 日
TB-1DG 北側	1.72	1.90	0.173
TB-1DG 東側	0.916	1.78	0.861
TB-1DG 南側	3.23	3.00	-0.236
TB-1DG 西側	0.653	1.04	0.384
TB-1DG 近傍	0.763	1.21	0.450

<sup>(1)</sup>採取期間：2014年12月25日～2015年1月13日、<sup>(2)</sup>採取期間：2015年1月13日～2月4日、<sup>(3)</sup>解体作業中と解体作業前の降下物重量の差分

解体作業前後の採取容器設置場所の空間線量率を表 3.2-10 及び表 3.2-11 に示す。空間線量率は、解体作業前と比較して解体作業後に低下する傾向にあった。解体作業期間中、対象建築物の敷地周辺で除染作業が行われており、また解体作業完了時には敷地内で川砂や敷石による覆土を行っており、これらの影響により空間線量率が低下したものと推測される。TB-1 北側 DG 設置場所の空間線量率は、この地点が神社敷地内で樹木に囲まれており降下物等の影響を受けにくいこと、また期間内に周辺で除染作業等も実施されなかったことから、解体前後で大きな変化がなかったと推測される。

表 3.2-10 TA-1&2 の解体作業前後の採取容器設置場所の空間線量率<sup>(1)</sup>

設置場所	解体作業前 <sup>(2)</sup> μSv/h	解体作業中 <sup>(3)</sup> μSv/h	解体作業後 <sup>(4)</sup> μSv/h	差分 <sup>(5)</sup> μSv/h
TA-1&2DG 北側	1.07	0.98	0.92	-0.15
TA-1&2DG 東側	1.25	1.18	1.08	-0.17
TA-1&2DG 南側	0.60	0.56	0.52	-0.08
TA-1&2DG 西側	1.25	1.18	1.00	-0.25
TA-1&2DG 近傍	1.00	0.96	0.86	-0.14

<sup>(1)</sup>空間線量率は日立アロカメディカル社製 TCS-172B を使用してデポジットゲージ設置場所において4方向(地表高さ1m)について計測した値の平均値(n=4)、<sup>(2)</sup>測定日時:2014年11月7日12:45、<sup>(3)</sup>測定日時:2014年12月4日9:55、<sup>(4)</sup>測定日時:2014年12月25日10:05、<sup>(5)</sup>解体作業前後の空間線量率の差分

表 3.2-11 TB-1 の解体作業前後の採取容器設置場所の空間線量率<sup>(1)</sup>

設置場所	解体作業前 <sup>(2)</sup> μSv/h	解体作業中 <sup>(3)</sup> μSv/h	解体作業後 <sup>(4)</sup> μSv/h	差分 <sup>(5)</sup> μSv/h
TB-1DG 北側	1.45	(1.40)	1.46	+0.01
TB-1DG 東側	2.28	(2.23)	2.18	-0.10
TB-1DG 南側	2.26	(2.11)	1.79	-0.47
TB-1DG 西側	2.15	(1.93)	2.15	-0.00
TB-1DG 近傍	2.14	(1.91)	2.00	-0.14

<sup>(1)</sup>空間線量率は日立アロカメディカル社製 TCS-172B を使用してデポジットゲージ設置場所において4方向(地表高さ1m)について計測した値の平均値(n=4)、<sup>(2)</sup>測定日時:2015年1月13日13:00、<sup>(3)</sup>測定日時:2015年1月20日9:45(デポジットゲージ上部1か所 n=1 の参考値)、<sup>(4)</sup>測定日時:2015年2月4日10:30、<sup>(5)</sup>解体作業前後の空間線量率の差分

### 3) 被災家屋内の空間線量率及び汚染状況 (調査 D)

TA-2 母屋の屋内について、空間線量率測定 (図 3.2-6~7) 及びスミア法により表面汚染密度測定を行った (表 3.2-12)。図 3.2-8~11 に被災建築物の屋内外の状況を示す。

TA-2 (母屋)

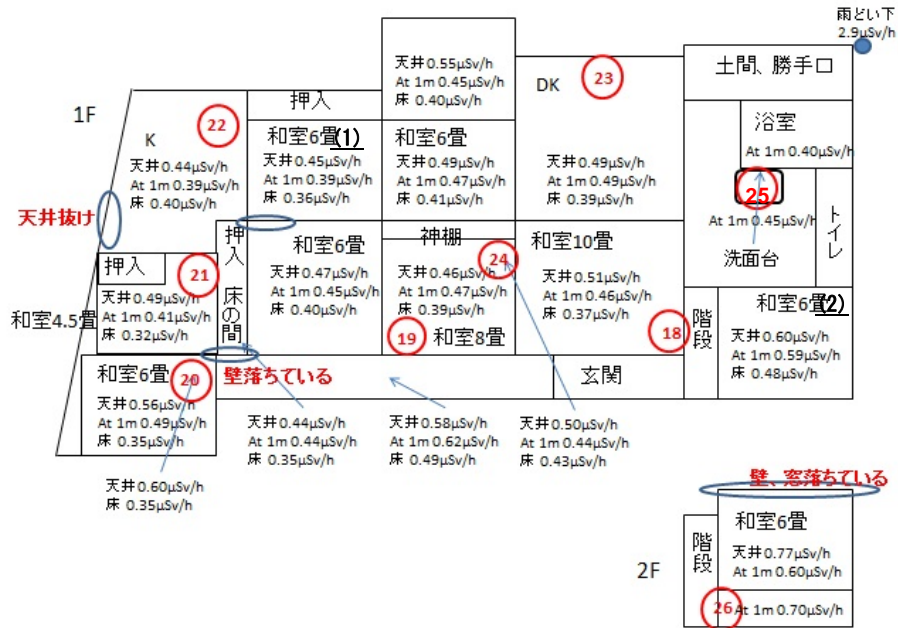


図 3.2-6 TA-2 母屋空間線量率測定結果

TA-2 (離れ)

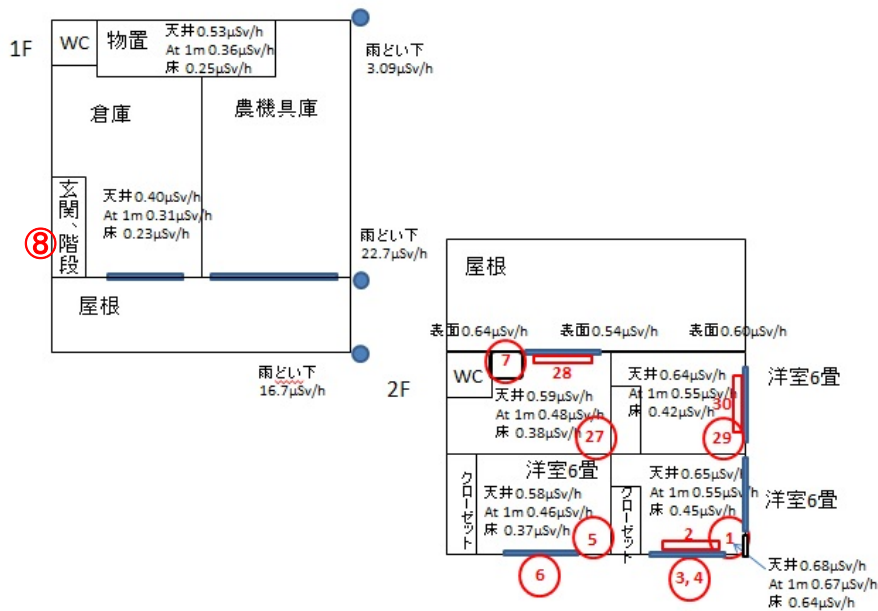


図 3.2-7 TA-2 離れ空間線量率測定結果



図 3.2-8 母屋和室 6 畳間(1)



図 3.2-9 母屋和室 6 畳間(2)



図 3.2-10 母屋正面(瓦降ろし前)



図 3.2-11 母屋正面(瓦降ろし後)



図 3.2-12 離れ 2F 洋室 6 畳間南東部窓枠



図 3.2-13 離れ 2F 洋室 6 畳間南東部



図 3.2-14 離れ 1F ガラージ内



図 3.2-15 離れ(瓦降ろし前)



表 3.2-12 TA-2 の表面汚染密度測定結果

試料番号	採取場所	計数率(cpm)	表面汚染密度(Bq/cm <sup>2</sup> )(*1)
1	離れ 2F 南東部床面	350	9.00E-2
2	離れ 2F 南東部窓枠手前	307	1.02E-1
3	離れ 2F 南東部窓内側	170	7.36E-3
4	離れ 2F 南東部窓外側	419	4.96E-2
5	離れ 2F 南西部床面	444	1.20E-1
6	離れ 2F 南西部窓外側	58.2	ND
7	離れ 2F 北側洗面台表面	907	1.91E+0
8	離れ階段 1F~2F	1145	7.67E-1
18	母屋畳表面水漏れ下部	52.8	ND
19	母屋畳表面	234	3.85E-2
20	母屋畳表面水漏れ下部	62.4	ND
21	母屋畳表面	52.8	ND
22	母屋床表面	357	6.62E-2
23	母屋台所床表面	76.8	ND
24	母屋神棚表面	64.4	ND
25	母屋洗面台表面	418	2.23E-1
26	母屋 2F 廊下表面	119	1.22E-2
27	離れ 2F 北西部床面	750	2.16E-1
28	離れ 2F 北西部窓枠手前	935	5.49E-1
29	離れ 2F 北東部床面	876	2.56E-1
30	離れ 2F 北西部窓枠手前	301	9.92E-2

(\*1) 拭き取り効率(表面付着物がスミアろ紙に拭き取りにより移動する割合)は金属などの平滑な面ではないため 10%として評価した (JIS Z 4504 参照)。ND は不検出を表す。

比較的健全性が保たれていた被災建築物内の床面の放射性物質による汚染は、重篤なものではなかった。ただし、屋内の空間線量率測定結果から各部屋上方の空間線量率が高い傾向が示されたことから、家屋内部の残留放射能より家屋上部(屋根や天井)の残留放射能が高いことが示唆された。

建築物内部及び外部の部材等約 100 試料を採取して放射性セシウム濃度を分析した。その結果の内、代表的な試料について放射性セシウム量の結果を示した(表 3.2-13~15)。

表 3.2-13 TA-2 内部及び外部の構造材等の放射性セシウム放射エネルギー結果

試料番号	試料名	採取量(g)	放射エネルギー(Bq) <sup>(*)1</sup>
23-1(外)	母屋瓦	108	99.4
23-2	母屋 1F 東側屋根裏ダスト	38	1,318
23-3(外)	母屋北側瓦ダスト除去	121	42.6
23-4(外)	母屋南側瓦ダスト除去	117	91.5
23-5	母屋 1F 天井材シミ無	23	176
23-6	母屋 1F 天井材シミ有	19	7.62
23-7	母屋梁	20	1.69
23-8	母屋 1F 座敷柱	20	5.28
23-9	母屋 1F 和室壁材	28	3.11
23-10	母屋 1F 和室壁内部断熱材	90	LOD(0.110) <sup>(2)</sup>
23-11	母屋 1F 和室ふすま	13	9.85
23-12	母屋 1F 和室ふすま板材	14	2.28
23-13	母屋 1F 和室障子木枠	15	26.2
23-14	母屋 1F 障子	18	106
23-15	母屋 1F 室内ガラス	139	5.55
23-16	母屋 1F 台所ガラス	134	20.0
23-17	母屋道路側カーテン	26	1,473
23-18	母屋電灯プラ傘	44	66.4
23-19	母屋西側じゅうたん	29	290
23-20	母屋畳	13	0.432
23-21	母屋畳ウレタン無	10	1.69
23-23	母屋西側床材	19	65.9
23-24	母屋玄関下木材	18	4.18
23-25(外)	母屋北側網戸	21	805
23-26(外)	母屋北側壁内断熱材	2	1.32
23-27(外)	母屋北側壁材(金属)	70	9.43
23-28(外)	母屋北側トタン屋根	27	33.6

(\*)1 試料採取日に減衰補正した Cs134 及び Cs137 の放射エネルギーの和を放射エネルギーとした。(2)測定結果は検出下限値未満(LOD: Lower Than Detection Limit)であり、検出下限値をカッコ内に記した。

表 3.2-14 TA-2 内部及び外部の構造材等の放射性セシウム放射エネルギー結果

試料番号	試料名	採取量(g)	放射エネルギー(Bq) <sup>(*)</sup>
23-29	離れ 2F 天井材	35	13.5
23-30	離れ 2F 室内壁	24	0.476
23-32	離れ北側カーテン	19	108
23-33	離れ西側カレンダー	34	9.43
23-34	離れ西側床材	23	5.62
23-35(外)	離れ南側外壁材	53	2.21
23-36(外)	離れ南東側雨樋	49	343

(\*) 試料採取日に減衰補正した Cs134 及び Cs137 の放射エネルギーの和を放射エネルギーとした。

表 3.2-15 TA-2 瓦上下ダスト中の放射性セシウム濃度結果

試料番号	試料名	採取量(g)	放射エネルギー(Bq) <sup>(*)</sup>
23-37	母屋北側屋根瓦下ダスト①	1.64	406
23-38	母屋北側屋根瓦下ダスト②	1.06	260
23-39	母屋北側屋根瓦下ダスト③	0.80	227
23-40	母屋北側屋根瓦上ダスト①	1.53	902
23-41	母屋北側屋根瓦上ダスト②	1.84	1,097
23-42	母屋北側屋根瓦上ダスト③	1.59	1,021
23-43	母屋南側屋根瓦下ダスト①	4.27	833
23-44	母屋南側屋根瓦下ダスト②	3.69	734
23-45	母屋南側屋根瓦下ダスト③	5.74	1,297
23-46	母屋南側屋根瓦上ダスト①	0.98	159
23-47	母屋南側屋根瓦上ダスト②	1.49	408
23-48	母屋南側屋根瓦上ダスト③	1.79	551

(\*) 試料採取日に減衰補正した Cs134 及び Cs137 の放射エネルギーの和を放射エネルギーとした。

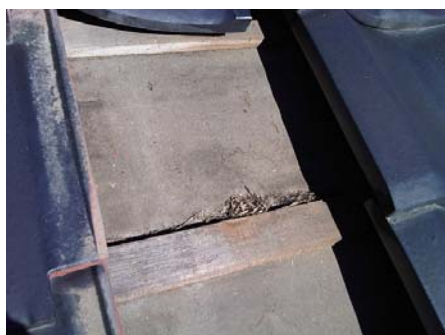


図 3.2-16 母屋南側瓦下ダスト



図 3.2-17 母屋南側瓦上ダスト

室内の構造材のうち排出量の多い木質系部材については、多くが構造材表面の試料であったにも関わらず、放射性セシウム濃度が高いものは少なかった。屋内から採取した試料のうち、障子紙、ふすま紙、天井板（ダスト付着あり）等などは比較的放射性セシウム濃度が高かった。屋外試料のうち、瓦表面に付着している粉じん等（地衣類、コケ等含む）及び瓦下粉じんについては極めて放射能濃度が高いことが測定結果より分かった。しかしながら、これら高濃度を示した部材等の重量は小さく、放射性セシウム量は大きいものではない。

TB-1 母屋の屋内について、空間線量率測定（図 3.2-18）及びスミア法により表面汚染密度測定を行った（表 3.2-16）。図 3.2-19~22 に TB-1 の屋内外の状況を示す。

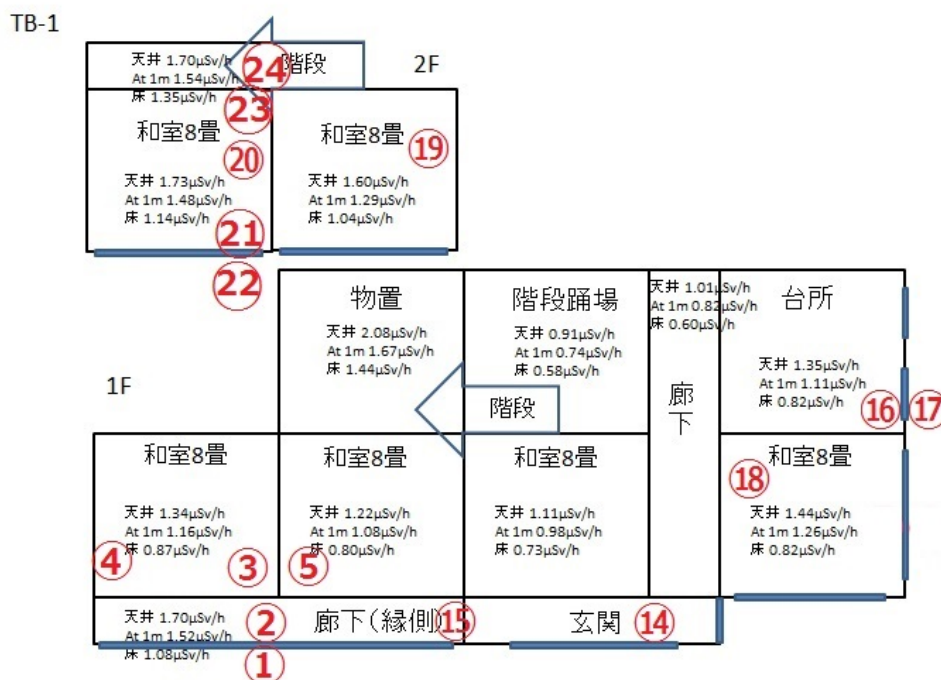


図 3.2-18 被災建築物内（TB-1 母屋）空間線量率測定結果



図 3.2-19 母屋 1 階東側和室



図 3.2-20 母屋 2 階西側和室

表 3.2-16 TB-1 の表面汚染密度測定結果

試料番号	採取場所	計数率(cpm)	表面汚染密度(Bq/cm <sup>2</sup> )(* <sup>1</sup> )
1	1F 南側窓外側	98.4	ND
2	1F 南側窓内側	73.2	ND
3	1F 和室畳表面	44.8	ND
4	1F 床の間横棚表面	127.8	1.02E-2
5	1F 和室畳表面	75.8	ND
14	玄関板張り表面	78.4	ND
15	1F 縁側表面	83.8	ND
16	1F 東側ガラス内側	99.4	ND
17	1F 東側ガラス外側	168	6.50E-2
18	1F 南東じゅうたん床	57	ND
19	2F 東側畳表面	51.4	ND
20	2F 西側床の間表面	107	2.65E-2
21	2F 西側窓ガラス内側	108	2.73E-2
22	2F 西側窓ガラス外側	53.4	ND
23	2F 西側廊下窓ガラス内側	60	ND
24	2F 西側廊下窓ガラス内側	113	3.00E-2

(\*<sup>1</sup>) 拭き取り効率(表面付着物がスミアろ紙に拭き取りにより移動する割合)は金属などの平滑な面ではないため 10%として評価した(JIS Z 4504 参照)。ND は不検出を表す。



図 3.2-21 母屋南西側から撮影



図 3.2-22 母屋南東側から撮影

TB-1 は健全性が比較的保たれていただけでなく、解体作業前に所有者が片付けをして家財を運び出していたことから比較的清浄に保たれており、室内の表面汚染密度はほぼ検出されないレベルであった。採取試料について放射性セシウム濃度を測定した。このうち代表的な試料について図 3.2-23～24 に示し、放射性セシウム濃度の測定結果を表 3.2-17～19 に示す。



図 3.2-23 母屋南側瓦下ダスト



図 3.2-24 母屋北側側瓦上ダスト

表 3.2-17 TB-1 内部及び外部の構造材等の放射性セシウム濃度結果

試料番号	試料名	採取量(g)	放射エネルギー(Bq) <sup>(*)</sup>
18-1	南側雨樋上	72.5	750
18-2	南側雨樋下	51.5	592
18-3	北側雨樋上	59.5	14,800
18-4	北側雨樋下	44.5	1,007
18-5	1F 廊下床材	25.5	6.18
18-6	1F 畳	11.5	50.2
18-7	1F 障子	15.5	17.4
18-8	1F ふすま	18.5	16.5
18-9	1F 床柱	23.5	3.32
18-10	1F 押入れ板材	22.5	2.70
18-15	1F 壁材	106.5	1.70
18-16	1F 天井板	24.5	69.8
18-17	1F カーテン	21.5	216
18-18	1F 台所じゅうたん	50.5	81.6
18-19	1F~2F 階段壁材	97.5	118
18-20	2F 畳御座	14.5	0.577
18-22	2F 畳下	12.5	55.4
18-23	2F 押入れ板材	29.5	3.64
18-25	2F 柱材	16.5	0.721
18-26	2F ガラス	124.5	2.36
18-27	2F 壁材	101.5	8.88
18-28	2F 階段上じゅうたん	8.5	104
18-29	2F カーテン	27.5	56.1
18-30	2F 天井板	20.5	52.4
18-31	2F 柱	18.5	1.11

(\*) 試料採取日に減衰補正した Cs134 及び Cs137 の放射エネルギーの和を放射エネルギーとした。

表 3.2-18 TB-1 内部及び外部の構造材等の放射性セシウム濃度結果

試料番号	試料名	採取量(g)	放射エネルギー(Bq) <sup>(*)</sup>
18-32(外)	トタン外壁	88.5	77.2
18-33(外)	外壁ボード	18.5	80.1
18-34(外)	木くず	18.5	189
18-35(外)	雨樋下土間コンクリート	126.5	3,851
18-36(外)	外壁コンクリート	125.5	22.5
18-37(外)	プラ屋根波板	37.5	344
18-38(外)	基礎コンクリート(家屋下)	138.3	14.4
18-39(外)	土間コンクリート(廊下下基礎)	142.4	104
18-40(外)	土間軒下コンクリート基礎	139.8	101

(\*) 試料採取日に減衰補正した Cs134 及び Cs137 の放射エネルギーの和を放射エネルギーとした。

表 3.2-19 TB-1 瓦上下ダスト中の放射性セシウム濃度結果

試料番号	試料名	採取量(g)	放射エネルギー(Bq) <sup>(*)</sup>
18-41	母屋北側屋根瓦下ダスト①	34.14	4,092
18-42	母屋北側屋根瓦下ダスト②	17.25	1,684
18-43	母屋北側屋根瓦上ダスト①	2.43	4,176
18-44	母屋北側屋根瓦上ダスト②	1.05	753
18-45	母屋南側屋根瓦下ダスト①	28.64	5,078
18-46	母屋南側屋根瓦下ダスト②	11.82	502
18-47	母屋南側屋根瓦下ダスト③	27.48	2,807
18-48	母屋南側屋根瓦上ダスト①	19.16	9,822
18-49	母屋南側屋根瓦上ダスト②	0.49	198
18-50	母屋南側屋根瓦上ダスト③	1.46	1,244

(\*) 試料採取日に減衰補正した Cs134 及び Cs137 の放射エネルギーの和を放射エネルギーとした。

採取試料の放射性セシウム濃度について、瓦下ダスト（瓦付着ダスト）は少量であるが非常に高濃度であった。屋外で採取した試料では、付着物のある雨樋等水平に向いた部材や多孔質の部材で高濃度であり、逆に垂直に向いた部材には高濃度のものは少なかった。屋内で採取した試料では、カーテン、網戸、じゅうたんなど空気が通過し粒子を吸着しやすい部材、雨漏りの影響のあった天井材で比較的高濃度であった。その他の構造材や家財は、低濃度のものが多かった。今回確認された高濃度試料は量的には少ないものであり、解体廃棄物全体の放射エネルギーを押し上げる可能性は低いと推測された。

TA-1、TA-2 及び TB-1 の解体作業により分別後にフレコンバッグ充填され搬出された廃棄物の量は、重量で 1 戸当たり 55.3～61.5 t、容積（フレコン 1 個＝1 m<sup>3</sup>で換算）で 191～231 m<sup>3</sup>であっ

た。廃棄物の分類では、木くずや瓦を含む陶磁器が多かった。表面線量率の高いフレコンは、可燃物や廃プラを入れたフレコンに多い傾向であった。

#### 4) 被災家屋及びその周囲の放射能蓄積分布（調査 E）

被災家屋の解体前及び解体後に、ガンマカメラを用いて被災家屋及びその周囲の放射能蓄積分布測定を行った。

ガンマカメラによる放射能蓄積分布は、256 素子の CdTe 半導体検出器に入射したガンマ放射線入射数を平面画像と重ねあわせ、平面的な放射能蓄積分布を可視化することが可能である（高橋ら、2013；吉田ら、2014）。今回の調査では、ガンマカメラを水平方向に 360 度回転させ、対象建築物及びその周囲からの放射線の寄与の測定（パノラマ測定という。）を 1 地点（TB-1）、より近い距離での対象建築物からの放射線の寄与の測定（ショット測定という。）を 2 地点（TB-2 及び TB-3）で行った。

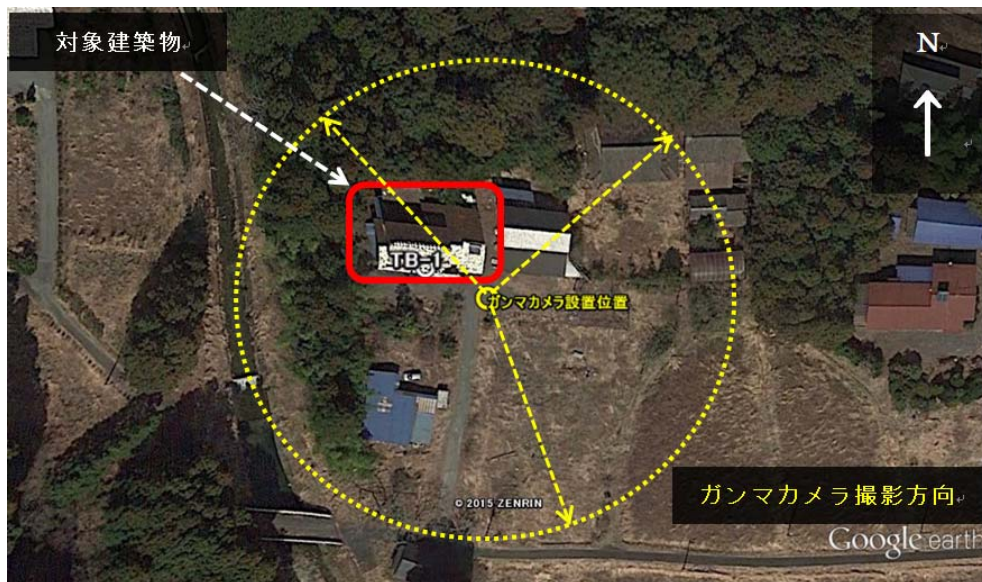


図 3.2-25 解体前の対象家屋（TB-1）外観

##### (a) 対象建築物位置及び結果結果（TB-1：パノラマ測定）

解体前の TB-1 の周囲北側と西側には高さ 5m 以上の雑木林、母屋南側には植木、南東側には除染されていない農地があった。解体作業前後の被災建築物及びその周囲からの放射線の寄与を確認するため、ガンマカメラを TB-1 母屋の南東方向 10m の距離に設置し、その位置を中心に水平方向に回転して測定した。解体作業前(除染作業前)の測定は、平成 26 年 12 月 11 日に実施した。設置場所 1m 高さの空間線量率は  $2.5 \mu\text{Sv/h}$ 、解体撤去作業後（除染作業後）の測定は、平成 27 年 3 月 4 日に実施し、設置場所 1m 高さの空間線量率は  $1.43 \mu\text{Sv/h}$  であった。





図 3.2-26 解体前の対象家屋 (TB-1)



図 3.2-27 解体撤去後の対象家屋跡地 (TB-1)

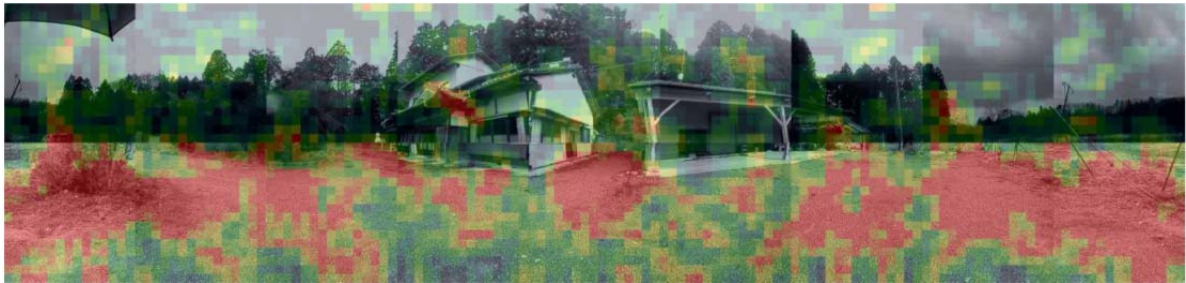


図 3.2-28 解体前の対象家屋及びその周囲の放射能蓄積分布 (TB-1)

(注)フルスケールを  $1.0\mu\text{Sv/h}$  (赤色) 表示であり、オーバースケールしたものは赤色呈色で表示

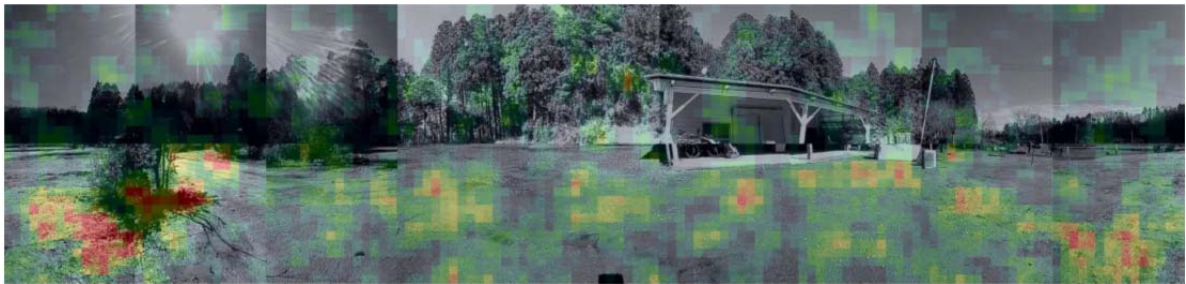


図 3.2-29 解体撤去後の対象家屋跡地及びその周囲の放射能蓄積分布 (TB-1)

(注)フルスケールを  $1.0\mu\text{Sv/h}$  (赤色) 表示であり、オーバースケールしたものは赤色呈色で表示

図 3.2-26 及び図 3.2-28 に示すように、母屋玄関の上部に強い放射能蓄積が確認できた。母屋の雨樋や瓦、その他母屋上部からの放射線の寄与が強く確認されることから、ガンマカメラ設置場所に近い地表部の放射能の蓄積よりも、放射能の蓄積の程度が高い可能性が示された。解体作業前の測定から、農地表面の土壌及び草木類に放射能の蓄積が広がっていることが確認できたため、環境放射線については地表付近の寄与が大きいことが示唆された。一方、解体及び農地除染後の測定結果を図 3.2-27 及び図 3.2-29 に示すが、家屋の解体や農地除染により放射線源が除去（または客土により被覆）されたことにより、環境放射線への寄与は、除染対象でなかった敷地内植木

の周囲や地表、雑木林などの影響が大きくなった。パノラマ撮影により得た画素情報の解析による各媒体の環境放射線への寄与割合について、表 3.2-20 に示す。

表 3.2-20 パノラマ測定による各媒体の環境放射線への寄与割合

	解体作業前 (除染前) μSv/h	割合 (%)	解体作業 後 (除染後) μSv/h	割合 (%)
設置場所線量率	2.50	-	1.43	-
視野内線量率	2.41	100	1.02	100
母屋	0.122	5	NA	NA
庭地(地表)	1.30	54	0.582	57
農地(地表)	0.456	19	0.163	16
物置・植栽	0.067	3	0.040	4
雑木林	0.225	9	0.147	14
倉庫	0.088	4	0.028	3
空	0.149	6	0.063	6

(注)取得画像上の方向にある対象物であり、その対象物のみ放射能蓄積を示すものではなく、対象物方向から入射する散乱線を含めた環境放射線の全てを検出した値である。

環境放射線の寄与は、解体・除染作業前では、母屋や庭地、農地からの寄与割合が 78%、解体・除染作業後にはこれらの寄与は 73%となったが、空間線量率は 2.41 μSv/h から 1.02 μSv/h まで低減されていた。

解体や除染の対象でない物置・植栽、雑木林、倉庫は放射能の変動はなく、母屋の解体や農地の除染後にこれらからの寄与が増加する筈である。解体・除染後に寄与が増加したのは、雑木林の方向のみであった。母屋の解体によりこれまで遮蔽されていた雑木林からの散乱線の影響が増加したことによると考えられた。

## 2) 対象建築物位置及び結果結果 (TB-2: ショット測定)

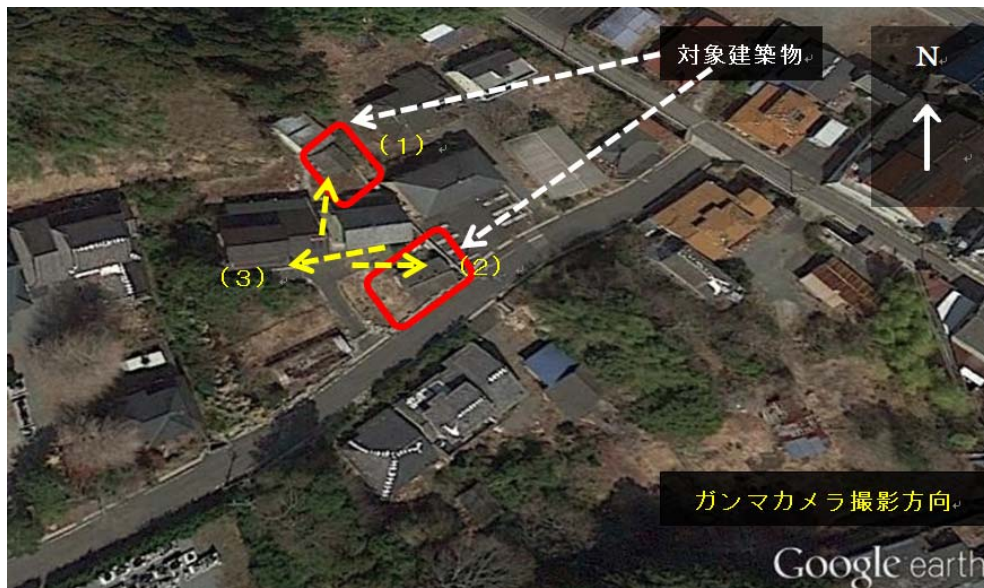


図 3.2-30 解体前の対象家屋 (TB-2) 外観

居住制限区域の調査対象家屋 TB-2 については、敷地内の物置小屋 2 棟が解体対象であったが、TB-1 と同様に解体前及び解体後の建物及びその周囲の放射能蓄積分布の測定を行った。TB-2 では、解体作業前に敷地内除染作業が実施済であったため、解体撤去前のガンマカメラ測定を行った平成 26 年 12 月 15 日時点での敷地内の空間線量率は  $0.75\sim 1.05\mu\text{Sv/h}$  であった。なお、解体工事は、除染済みの敷地に養生等を施した後に実施した旨確認している。

図 3.2-31~図 3.2-32、図 3.2-36 に解体作業前のガンマカメラによるショット測定の結果を示す。図 3.2-31~32 は、セメント瓦葺物置であるが、セメント瓦は除染しておらず、物置(1)及び物置(2)の瓦表面の線量率は  $1.05\sim 1.25\mu\text{Sv/h}$ 、物置の雨樋端より雨水が流下する敷地土壌付近の線量率は最大  $4.80\mu\text{Sv/h}$  であった。ショット撮影により、除染後の降雨により雨水が流下する部位付近に放射能蓄積を確認できた。



図 3.2-31 解体前の被災建築物（TB-2：物置）（1）からの放射能蓄積分布

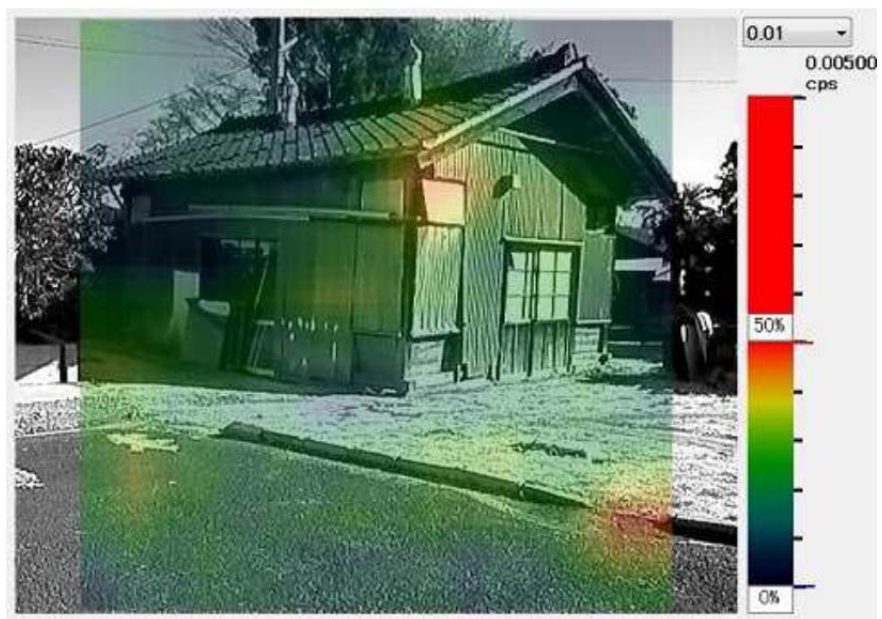


図 3.2-32 解体前の被災建築物（TB-2：物置）（2）からの放射能蓄積分布



図 3.2-33 被災建築物 (TB-2) (3) からの放射能蓄積分布

また、敷地の母屋前 (図 3.2-33) はアスファルト舗装されていたが、表層のうち雨水が集水・滞留しやすいクラックや縁石周辺に、粒度の細かい粘土質土壌や植物片等とともに放射性物質が移動・蓄積し、放射能が高蓄積した部位として可視化された。

### 3) 対象建築物位置及び結果結果 (TB-3: ショット測定)

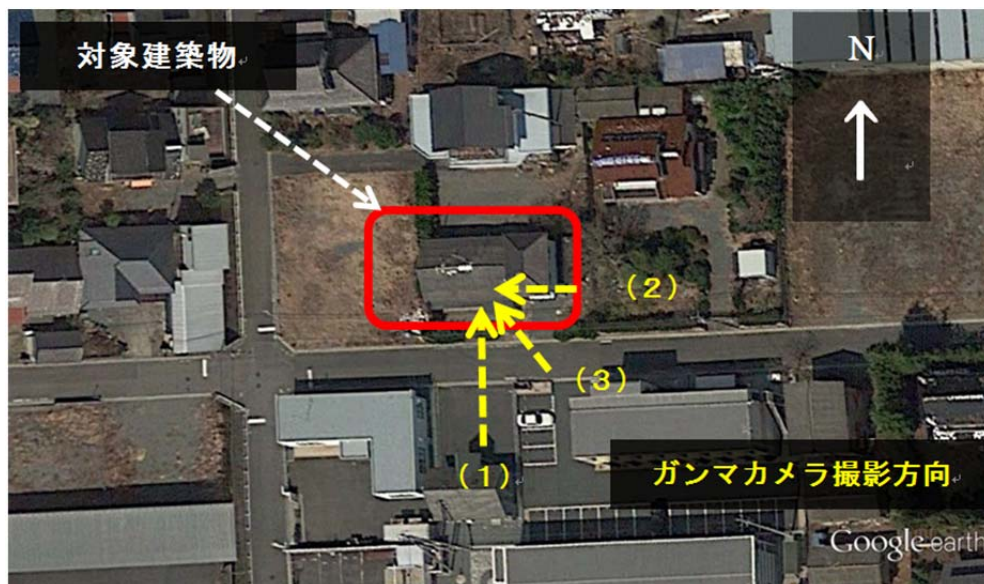


図 3.2-34 解体前の対象家屋 (TB-3) 外観

図 3.2-34 に示すように、TB-3 について放射能蓄積分布をショット測定した。TB-2 と同様に、解体作業前に敷地内除染作業が実施済であったため、解体撤去前のガンマカメラ測定を行った平成 26 年 12 月 12 日時点の空間線量率は  $0.68\sim 0.79\mu\text{Sv/h}$  であった。なお、なお、解体工事は、除染済みの敷地に養生等を施した後に実施した旨確認している。

図 3.2-35 に示すように、解体対象家屋 TB-3 とその周囲では、アスファルトやコンクリートに被覆された部位より、土壌や植栽が残っている部位に放射能の高蓄積がみられた。また家屋については、瓦及び雨樋、また敷地内の植込みの一部に放射能の蓄積が確認された。



図 3.2-35 解体前の被災建築物 (TB-3) 正面 (1) からの放射能蓄積分布

瓦と雨樋付近に放射能の蓄積が確認されたため、被災建築物の 2 階から瓦屋根 (図 3.2-36) のショット測定を試みた。被災建築物 2 階の空間線量率は  $0.62\mu\text{Sv/h}$  であり、屋外の 1m 高さの空間線量率とほぼ同じ空間線量率であったため、建築物上部に放射能蓄積の可能性があると示唆された。

図 3.2-37 に示すように、瓦屋根及び雨樋堆積物に顕著な放射能蓄積が確認された。瓦屋根付近の表面線量率は  $1.75\mu\text{Sv/h}$ 、玄関上の雨樋上部 (堆積物有) の表面線量率が  $1.50\mu\text{Sv/h}$  であり、特に水平方向に敷設された雨樋内容物の放射能蓄積が顕著であることが示唆された。

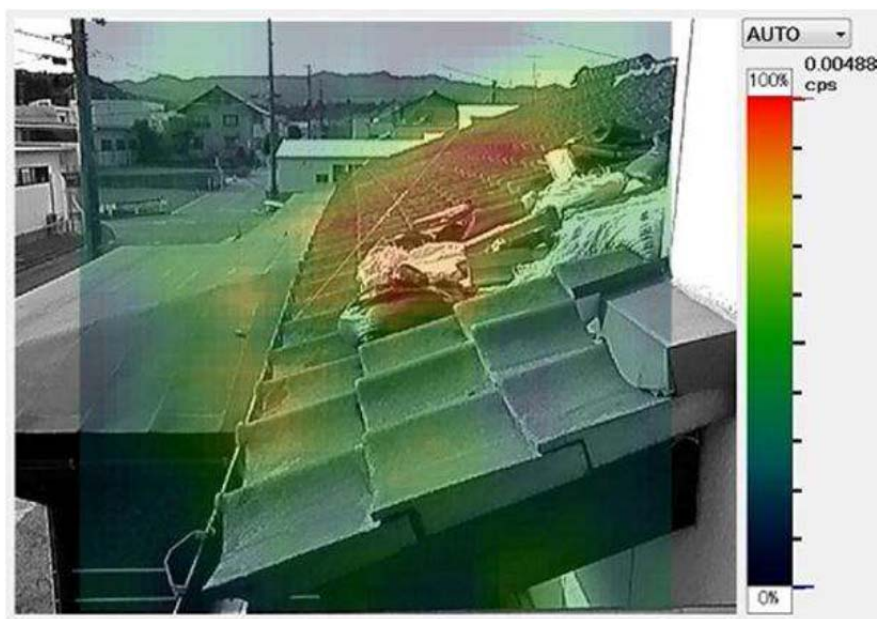


図 3.2-36 解体前の被災家屋（TB-3）2階ベランダ（2）からの放射能蓄積分布

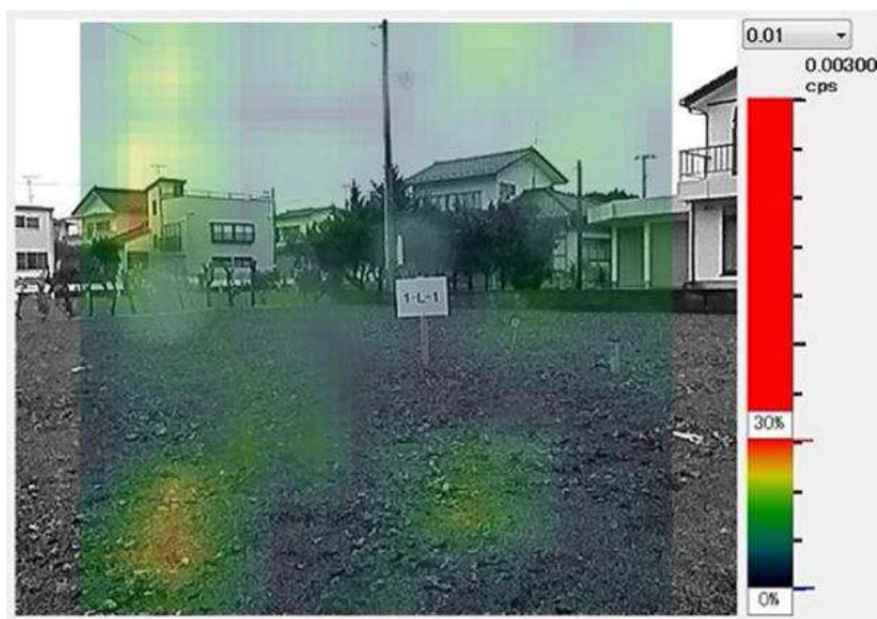


図 3.2-37 解体後の被災建築物（TB-3）正面（3）からの放射能蓄積分布

解体前に玄関付近の位置に確認された、放射能が残留していた部位（空間線量率が 1.80 及び 1.35  $\mu\text{Sv/h}$ ）は、解体後の覆土によって空間線量率が 0.35～0.52  $\mu\text{Sv/h}$  まで低下していた。

5) 敷地境界等空間線量率測定（調査 F）

(a) 富岡町 TA-1 及び TA-2 の測定結果

調査F：家屋解体に伴う空間線量率変化に関する測定結果

調査家屋管理番号	TA-1、TA-2
測定機器	ALOKA $\gamma$ SURVEY METER TCS172

測定状況

	家屋解体作業着手前	家屋解体作業終了後
測定日	2014 年 11 月 8 日(土)	2015 年 3 月 4 日(水)
測定時間	14 : 00 ~ 15 : 00	9 : 40 ~ 10 : 10
測定高さ	1m	1m
天候	晴れ 曇り 雨	晴れ 曇り 雨

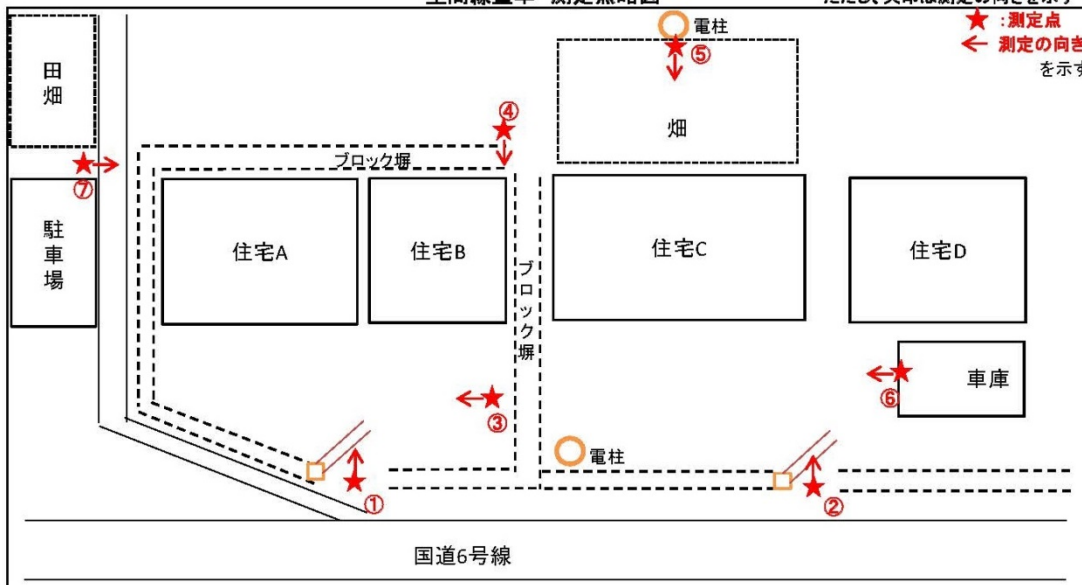
空間線量率 測定結果

時定数: 30s 90s後読取	家屋解体作業着手前 ( $\mu$ Sv/h)				家屋解体作業終了後 ( $\mu$ Sv/h)				変化率 (%)
	1回目	2回目	3回目	平均値	1回目	2回目	3回目	平均値	
測定点①	0.85	0.85	0.85	<b>0.85</b>	0.73	0.73	0.74	<b>0.73</b>	-14%
測定点②	0.81	0.81	0.81	<b>0.81</b>	0.73	0.72	0.74	<b>0.73</b>	-10%
測定点③	0.73	0.74	0.70	<b>0.72</b>	0.55	0.54	0.55	<b>0.55</b>	-24%
測定点④	0.89	0.89	0.90	<b>0.89</b>	0.71	0.70	0.71	<b>0.71</b>	-21%
測定点⑤	0.91	0.94	0.93	<b>0.93</b>	0.90	0.90	0.90	<b>0.90</b>	-3%
測定点⑥	0.65	0.64	0.64	<b>0.64</b>	0.39	0.37	0.36	<b>0.37</b>	-42%
測定点⑦	0.68	0.67	0.68	<b>0.68</b>	0.65	0.66	0.65	<b>0.65</b>	-3%
測定点⑧	/ / / / / / / / / /								
測定点⑨	/ / / / / / / / / /								
測定点⑩	/ / / / / / / / / /								
備考	③、⑥客土あり								

ただし、測定点は居住者等が多くの時間を過ごす生活空間を中心に決定する。(除染関係ガイドライン 平成25年5月 第2版 p2-14参照)

空間線量率 測定点略図

ただし、矢印は測定の向きを示す





(b) 富岡町 TB-1 の測定結果

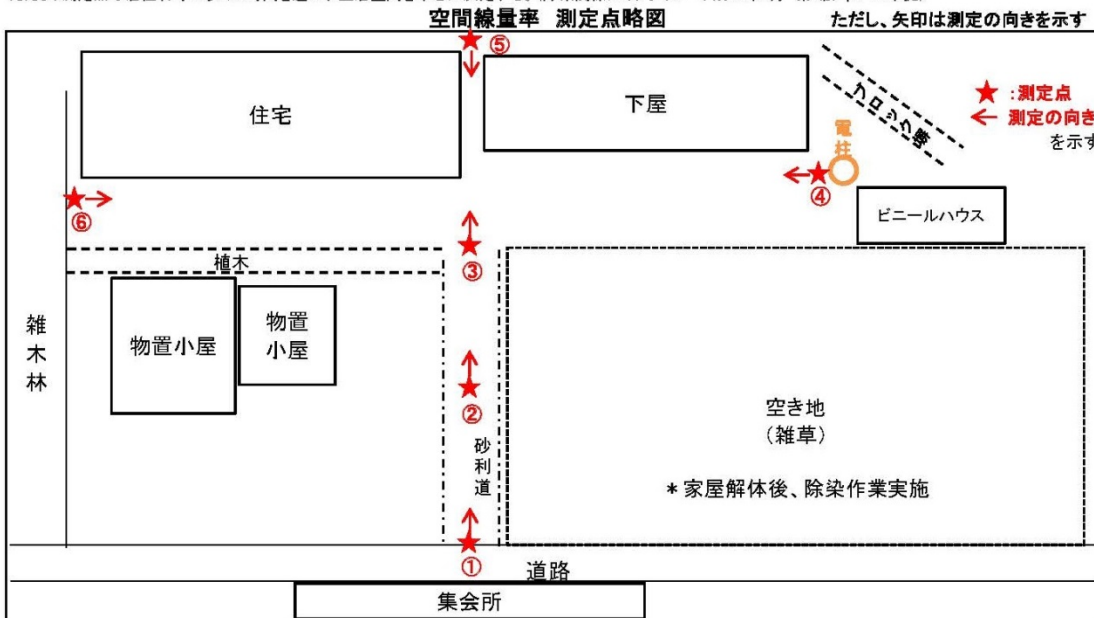
調査F: 家屋解体に伴う空間線量率変化に関する測定結果

調査家屋管理番号	TB-1
測定機器	ALOKA $\gamma$ SURVEY METER TCS172

測定状況		
家屋解体作業着手前	家屋解体作業終了後	
測定日	2014年12月17日(水)	2015年3月4日(水)
測定時間	13:10 ~ 14:00	10:55 ~ 11:25
測定高さ	1m	1m
天候	晴れ (曇り) 雨	晴れ (曇り) 雨

時定数: 30s 90s後読取	家屋解体作業着手前 ( $\mu\text{Sv/h}$ )				家屋解体作業終了後 ( $\mu\text{Sv/h}$ )				変化率 (%)
	1回目	2回目	3回目	平均値	1回目	2回目	3回目	平均値	
測定点①	2.26	2.30	2.29	<b>2.28</b>	1.16	1.18	1.17	<b>1.17</b>	-49%
測定点②	2.09	2.07	2.08	<b>2.08</b>	1.58	1.61	1.60	<b>1.60</b>	-23%
測定点③	2.32	2.33	2.33	<b>2.33</b>	1.56	1.58	1.57	<b>1.57</b>	-33%
測定点④	3.05	3.02	2.99	<b>3.02</b>	2.57	2.54	2.60	<b>2.57</b>	-15%
測定点⑤	2.42	2.45	2.43	<b>2.43</b>	2.20	2.18	2.23	<b>2.20</b>	-9%
測定点⑥	2.96	2.95	2.96	<b>2.96</b>	1.56	1.60	1.57	<b>1.58</b>	-47%
測定点⑦	/ / / / / / / / / /								
測定点⑧	/ / / / / / / / / /								
測定点⑨	/ / / / / / / / / /								
測定点⑩	/ / / / / / / / / /								
備考	⑥客土あり、下図の空き地(雑草)は剥ぎ取り除染実施								

ただし、測定点は居住者等が多くの時間を過ごす生活空間を中心に決定する。(除染関係ガイドライン 平成25年5月 第2版 p2-14参照)



(c) 富岡町 TB-3 の測定結果

調査F: 家屋解体に伴う空間線量率変化に関する測定結果

調査家屋管理番号	TB-3
測定機器	ALOKA $\gamma$ SURVEY METER TCS172

測定状況

	家屋解体作業着手前	家屋解体作業終了後
測定日	2014年12月10日(水)	2015年3月4日(水)
測定時間	13:55 ~ 14:30	10:20 ~ 10:50
測定高さ	1m	1m
天候	晴れ (曇り) 雨	晴れ 曇り (雨)

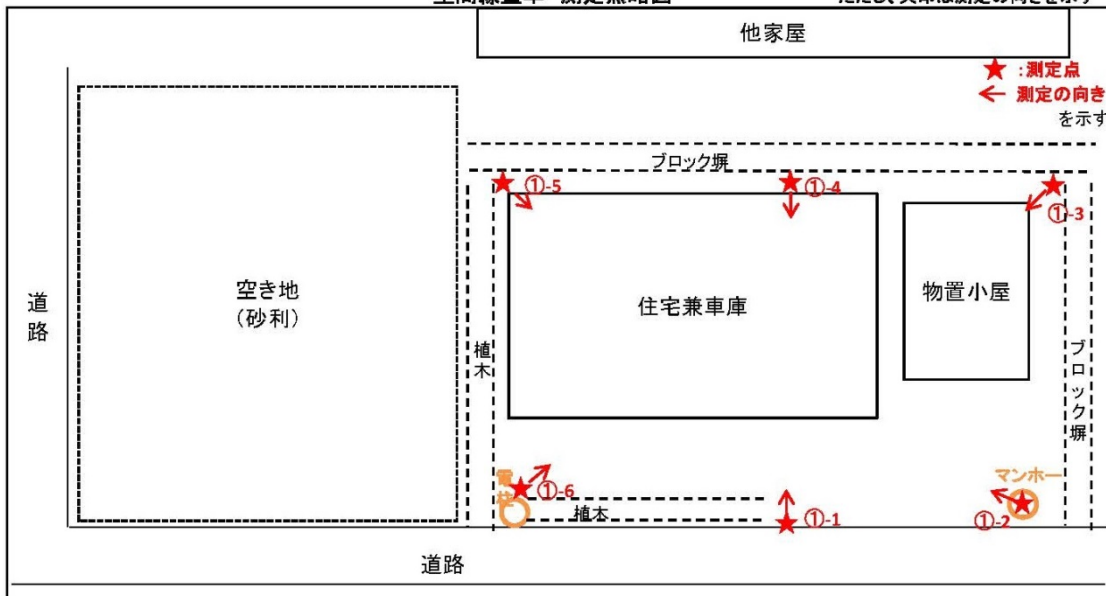
空間線量率 測定結果

時定数: 30s 90s後読取	家屋解体作業着手前 ( $\mu\text{Sv/h}$ )				家屋解体作業終了後 ( $\mu\text{Sv/h}$ )				変化率 (%)
	1回目	2回目	3回目	平均値	1回目	2回目	3回目	平均値	
測定点①	0.72	0.72	0.71	<b>0.72</b>	0.51	0.51	0.50	<b>0.51</b>	-29%
測定点②	0.83	0.83	0.83	<b>0.83</b>	0.77	0.79	0.79	<b>0.78</b>	-6%
測定点③	0.66	0.64	0.65	<b>0.65</b>	0.53	0.51	0.52	<b>0.52</b>	-20%
測定点④	0.49	0.50	0.49	<b>0.49</b>	0.36	0.35	0.35	<b>0.35</b>	-28%
測定点⑤	0.51	0.52	0.52	<b>0.52</b>	0.40	0.39	0.40	<b>0.40</b>	-23%
測定点⑥	1.20	1.22	1.23	<b>1.22</b>	1.10	1.10	1.13	<b>1.11</b>	-9%
測定点⑦	/								
測定点⑧	/								
測定点⑨	/								
測定点⑩	/								
備考	①、③、④、⑤客土あり								

ただし、測定点は居住者等が多くの時間を過ごす生活空間を中心に決定する。(除染関係ガイドライン 平成25年5月 第2版 p2-14準拠)

空間線量率 測定点略図

ただし、矢印は測定の向きを示す



## (5)まとめ

解体作業従事者の被ばく線量の評価を行った研究はこれまでほとんど存在しなかった。本調査では、被災建築物の解体作業における解体作業従事者の放射線被ばくの低減、粉じん作業防護及び作業工程について検証し、被災建築物の内装及び外装品の片付け・取り外し、瓦降ろしなどの高所作業、重機による建築物の解体及び廃棄物の破碎・粉碎など、作業工程上留意すべき点を明らかにした。

重機操縦者は、廃棄物の取扱上作業工程を通じて従事するため、一日当たりの外部被ばく線量は少ないが全体の積算線量としては大きくなる傾向があった。また、重機操縦者ではない発生廃棄物との距離が近い玉掛作業、その他手作業従事者は、重機操縦者よりも一日当たり被ばく線量が大きくなる傾向があり、防じんマスクへの放射性セシウム付着量も重機操縦者より多かった。

また、発じんを伴う作業のうち、瓦下ろし等瓦下粉じんの発じんに関連する作業は、特に注意すべきである。発じんが相対的に大きい重機解体以前に、高圧洗浄等による粉じん除去が可能であれば、作業従事者の被ばく低減や発じんによる放射性セシウムの拡散防止に有効と思われる。しかしながら、廃水の回収と処理、作業工程の長期化や高所作業における湿式作業の危険性についても考慮すべきであり、実作業の選択は、被災建築物の健全性や建築工法に依存せざるを得ない。

さらに、従事者全員の被ばく低減を図るのであれば、作業従事者を増員し、時間短縮と被ばく線量の分散について考慮することを勧める。しかしながら、増員は当然解体コストの上昇につながり、また意思疎通や作業の効率的の妨げになるおそれがあり、被ばく線量の低減と効率的な解体の両立は難しいかも知れない。今回示した考え方は、数戸程度の解体作業での被ばく状況調査に基づくものであり、今後数千戸を対象に行われるとされる被災建築物解体全体を俯瞰した解体作業従事者の被ばく対策については、更なる検証が必要である。

被災建築物の解体により、蓄積した放射線源の除去が期待できる反面、発じんによる放射性セシウムの拡散が懸念される。敷地内の大気粉じんのモニタリングによると、作業場所における空気中放射性セシウム濃度は一般環境空気より1桁から2桁高いことが確認された。作業期間中の大気降下物についても、作業前よりも作業中の降下物量が高い傾向となったが、季節的な変動による冬季や春季特有の乾燥と風速が大きくなる状況もあり、解体作業のみに、降下物量や放射性セシウム降下量の増加の原因を帰することは困難であった。

家屋内の汚染状況調査や屋内外部材の放射性セシウム濃度測定により、家屋上部の瓦下粉じんや瓦付着物、雨樋内容物等に放射能が高濃度で蓄積され、その影響が家屋内での線量率分布や、雨どいからの雨水が流入する土壌での高線量率として現れていることが分かった。また、柱や梁、基礎コンクリートや外装材といった排出量の多い家屋構造体の放射能濃度はそれほど高くはないことも示された。

今後、本調査で得られた知見に基づき、家屋上部の放射能濃度の高い瓦下粉じん等の優先的な除去、建築物に付着した放射能の除去、建築物の解体撤去、敷地内高線量土壌のはぎ取りと覆土を上記の順に実施することで、建築物解体後の放射線量の低減がより効果的になるものと期待する。

家屋除染に関して、除染関係ガイドライン（2014）の「建物等の工作物の除染等の措置」に、手作業除去、拭き取り、ブラシ洗浄、高圧洗浄、ブラスト作業による屋根瓦や建材からの表面汚染の除去について、詳細に記載されている。また、山口ら（1989）や古田ら（2014）は、典型的な日本家屋において、放射性プルームや放射性降下物が沈着した後の居住環境の被ばく評価を行っている。これらの研究では、プレハブ家屋よりも木造家屋、木造家屋よりも鉄筋コンクリート家屋の方が、外部放射線による被ばく及び放射性物質の家屋侵入による被ばくを防ぐ遮蔽性能や線量低減効果が優れていることを示している。

本調査により、避難指示解除準備区域、居住制限区域等の被災家屋の立地によらず、屋根瓦下にある粉じん中に放射性セシウムが多く残存していることが定量的また可視的に確認された。今後家屋除染を進める上で、現在用いられている手法以外に、屋根瓦下の粉じん及び瓦付着物等の除去、水平方向に降雨などの流水が留まり、放射性セシウムが蓄積される雨樋内容物などの効果的な除去により、更に家屋内の線量低減がなされる可能性が示唆された。

建物周囲の敷地除染において、表層土壌のはぎ取りや植栽の伐採により線量の低減がなされても、その後の降雨等により住居屋根から放射能が敷地内に移動することが定量的にも可視的にも確認されたことから、作業手法の改善が望まれる。

## 参考文献

- 環境省（2014）、除染関係ガイドライン 平成 25 年 5 月 第 2 版（平成 26 年 12 月 追補）、  
[http://josen.env.go.jp/material/pdf/josen-gl-full\\_ver2\\_supplement1412.pdf](http://josen.env.go.jp/material/pdf/josen-gl-full_ver2_supplement1412.pdf)
- 原子力規制委員会（2014）、福島県及びその近隣県における航空機モニタリング、  
[http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/9000/8909/24/362\\_20140307.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/9000/8909/24/362_20140307.pdf)
- 厚生労働省（2013）、東日本大震災により生じた放射性物質により汚染された土壌等を除染するための業務等に係る電離放射線障害防止規則（略称「除染電離則」）、  
<http://law.e-gov.go.jp/htmldata/H23/H23F19001000152.html>
- 高橋勲、茂呂栄治、長島賢一、上野雄一郎、他（2013）、CdTe を用いた放射能分布測定技術、Isotope News 2013 年 10 月号 No.714
- 独立行政法人原子力安全基盤機構（2011）、災害廃棄物の放射能汚染状況の調査報告（平成 23 年度）、JNES-EV-2011-9007
- 日本工業規格（2008）、JIS Z 4504(2008) 放射性表面汚染の測定方法-β線放出核種（最大エネルギー0.15 MeV 以上）及びα線放出核種
- 福島県（2015）、平成 26 年度福島県内の月間降下物環境放射能測定結果（暫定値）、  
[http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec\\_file/monitoring/etc/gekkankoukabutu26nendo.pdf](http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec_file/monitoring/etc/gekkankoukabutu26nendo.pdf)
- 福島県（2015）、平成 26 年度福島県内の大気浮遊じん環境放射能測定結果（暫定値）、  
[http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec\\_file/monitoring/etc/kennai-taiki26nendo.pdf](http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec_file/monitoring/etc/kennai-taiki26nendo.pdf)
- 古田琢哉、高橋史明（2014）、環境に沈着した事故由来の放射性セシウムからのガンマ線に対する建物内の遮蔽効果及び線量低減効果の解析、JAEA-Research 2014-003、独立行政法人 日本原子力研究開発機構

山口恭弘、南賢太郎（1989）、原子炉事故時における日本の典型的な家屋の放射線遮蔽効果、保健物理、24、11～19（1989）

吉田晃、森久起、新宮康之、佐野健一郎、村田隆志（2014）、ガンマカメラ「パノラマ測定機能」を用いた除染計画作成支援手法の実証、環境放射能除染学会誌 Vol.2, No4, 251-261

### 3.2.2 福島市における大気降下物等環境試料における放射性物質等の分析

#### (1) 研究目的

本研究は、福島市内における放射性物質（放射性セシウム）を含む大気降下物の降下量について調査を行い、その発生源について考察することを目的としている。ここでは、平成25年2月から平成26年12月にかけて、主に福島市内で採取した一般大気環境中の降下ばいじん等の大気降下物や採取場所周辺の表層土壌の放射性セシウムを対象とした核種濃度分析、併せて発生源推定のためのダイオキシン類分析や元素分析、放射性セシウムの存在状態を把握するイメージングプレートを実施して得られた調査結果を報告する。最終的な目標は、高線量地域での廃棄物処理施設からの排出実態調査において、放射性セシウムの拡散という観点で着目すべき事象や調査法を提示することにある。

#### (2) 研究方法

##### 1) 試料採取

##### (a) 大気降下物

大気降下物には、大気中に排出されたばいじんや風によって地表から舞い上がった粉じん等のうち、比較的粒径が大きく重いため大気中で浮遊してはならず降下する乾性降下物や、雨や雪等に取り込まれて降下する湿性降下物がある。本調査では、平成25年2月から平成26年12月にかけて、つくば市1地点と福島市4～6地点においてデポジットゲージ法（ポリエチレン製容器）とダストジャー法（ステンレス製容器）により、約1ヶ月間の大気降下物を採取した。ダストジャーには、降下物の再飛散を防止するため、10%ジエチレングリコール水溶液（v/v）を1000ml入れた。大気降下物の採取風景、採取時期及び採取場所を図3.2-38、表3.2-21及び図3.2-39に示す。大気降下物の採取地点を次に示す：1) つくば市：国立環境研究所循環廃棄物棟の3階屋上、2) 福島市A地点：福島市北沢又字成出の調査協力施設の4階屋上、3) 福島市B地点：福島市金谷川1の調査協力施設の1階屋上、4) 福島市C地点：福島市吉倉字吉田の調査協力施設の5階屋上、5) 福島市D地点：福島市東浜の調査協力施設の3階屋上、6) 福島市E地点：福島市土湯温泉町の調査協力施設の5階屋上。

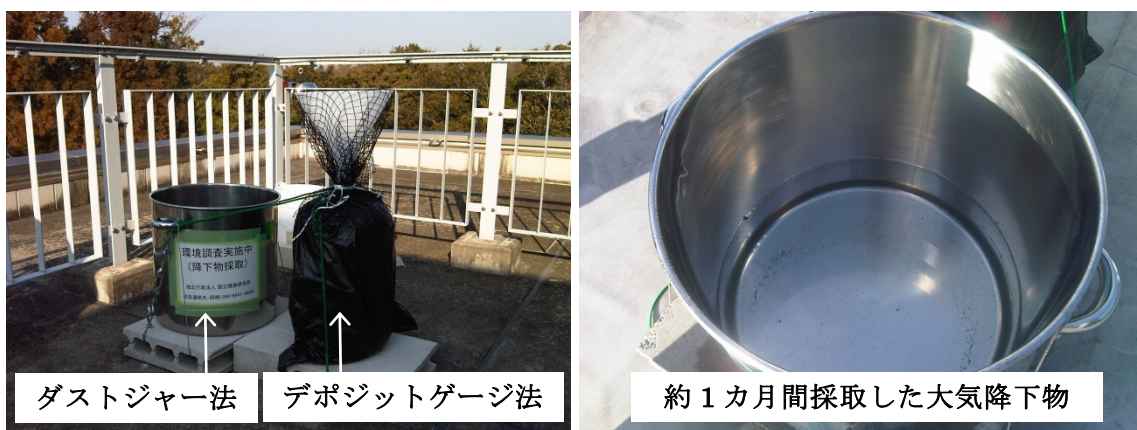


図 3.2-38 大気降水物の採取風景

表 3.2-21 つくば市と福島市における大気降水物の採取時期

採取地点	平成 25 年			平成 26 年			
	2/3 月	9/10 月	11/12 月	2/3 月	6/7 月	9/10 月	11/12 月
つくば市	○	○	○	○	○	○	○
福島市 A 地点	○	○	○	○	○	○	○
福島市 B 地点	○	○	○	○	○	○	○
福島市 C 地点	○	○	○	○	○	○	○
福島市 D 地点	○	○	○	○	○	○	○
福島市 E 地点		○	○	○	○	○	○

○ : 採取

測定機器：NaI シンチレーションサーベイメータ  
 測定高さ：1 m  
 測定対象：区画内の 3 地点 (n=5)

- 0.23  $\mu$  Sv/h 未満
- 0.23 以上 0.5  $\mu$  Sv/h 未満
- 0.5 以上 0.75  $\mu$  Sv/h 未満
- 0.75 以上 1.0  $\mu$  Sv/h 未満
- 1.0 以上 1.25  $\mu$  Sv/h 未満
- 1.25 以上 1.5  $\mu$  Sv/h 未満
- 1.5 以上 1.75  $\mu$  Sv/h 未満

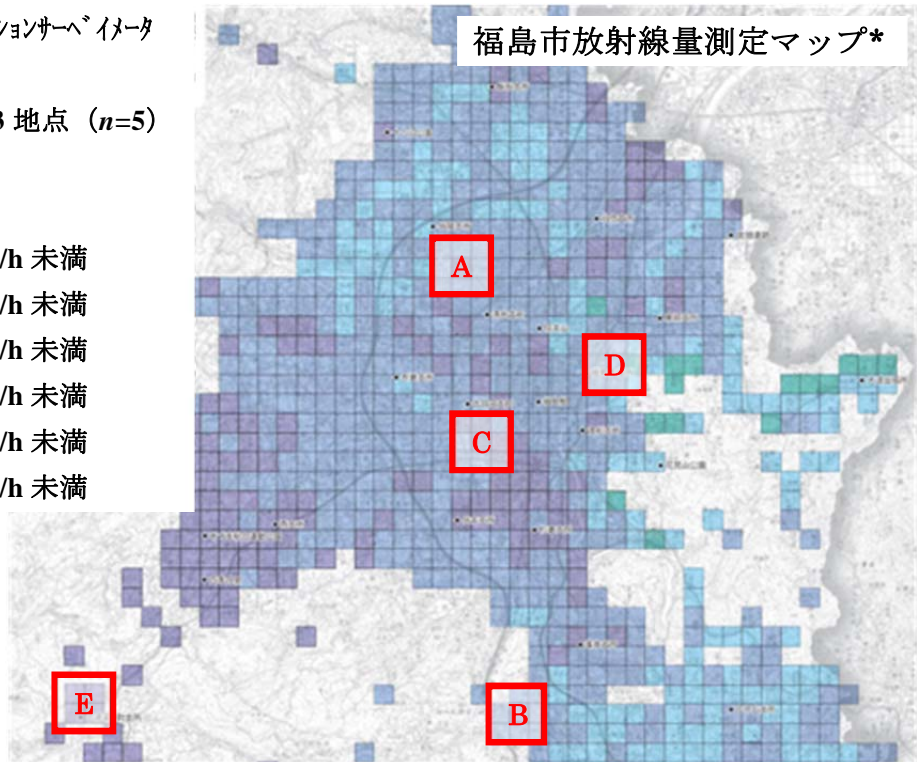


図 3.2-39 福島市内における大気降下物の採取場所

\*福島市ふくしまウェブ (<http://www.city.fukushima.fukushima.jp>) を参照

## (b) 表層土壌

平成 25 年 9 月につくば市内国立環境研究所敷地及び福島市内 A~E 地点において、スクレーパープレート (0.3m×0.15m) を用いて表層土壌 (0~5 mm) を採取した。採取時には、予め小石等を取り除いた。草本については、地上部をハサミで除去して、根部を土壌と共に採取した。いずれの地点についても、大気降下物捕集装置を設置した施設の周囲 2~4 カ所から、100~300 g 程度ずつ採取して、風乾作業まで冷蔵庫 (4℃) で保管した。本調査では、合計 20 箇所から表層土壌 20 試料を採取した。

## 2) 試料前処理

### (a) 大気降下物

大気降下物には、ダストや土壌等の不溶性成分と、硫酸イオンや塩化物イオン等の水溶性成分がある。本研究では、不溶性と水溶性の大気降下物を雨水等と共にダストジャーから捕集ビンに回収した。積雪のある冬季の回収時には、蒸留水によるダストジャーの洗い込みも行った。植物等の異物を除去した後、回収した大気降下物を含む水溶液は、秤量して容量を求めた。さらに孔径 0.45 $\mu$ m のセルロース混合メンブレンフィルター (以下、ろ紙) を通して、大気降下物の不溶性成分をろ紙上に回収した。ろ液には、大気降下物の水溶性成分が含まれている。ろ紙は、炭酸カリウム飽和水溶液によって密閉容器 (デシケータ) 内を約 50%の湿度に調整した雰囲気下で、一晚放置後秤量したものを使用した。不溶性成分を含むろ紙上残留物は風乾した後、先述の 50%

湿度雰囲気デシケータに入れ、一晚放置後秤量した。秤量したろ紙上残留物は、全ての採取試料について放射性セシウム ( $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$ ) を対象とした核種濃度分析、平成 25 年 2/3 月、平成 25 年 9/10 月、平成 25 年 11/12 月及び平成 26 年 2/3 月採取試料についてダイオキシン類分析、平成 25 年 2/3 月採取試料について元素分析に供した。また、ろ液は、平成 25 年 2/3 月採取試料について放射性セシウムを対象とした核種濃度分析に供した。

#### **(b) 表層土壌**

表層土壌は、硫酸紙を敷いたステンレス製バットに入れて室温下で風乾した。風乾処理は、1 日あたりの重量減少が、前回計測時 (2~3 日前) の重量変化 1%以下になるまで行った。風乾した表層土壌は、全量を 2 mm の開き目のステンレス製ふるいを通して、ふるい下とふるい上に分級した。全ての表層土壌ふるい下試料について、放射性セシウムを対象とした核種濃度分析に供した。また、放射性セシウム濃度結果に基づいて、各地点から 1 試料ずつふるい下試料を選定して元素分析に供した。

### **3) 放射性セシウムを対象とした核種濃度分析**

#### **(a) 大気降下物**

不溶性成分であるろ紙上残留物の放射性セシウムは、秤量したろ紙を重ねてねじ口 U 型容器 (U-8 容器) に入れ、Ge 半導体検出器 (ORTEC GEM30、SEIKO EG&G 社製) を用いたガンマ線スペクトロメトリーによる核種分析法で測定した。水溶性成分を含むろ液の放射性セシウムは、2l 以上の試料は磁性皿で煮沸濃縮を行い 2l マリネリ容器に入れて、また 2l 未満の試料は 90ml まで同様に煮沸濃縮を行い U-8 容器に入れて、それぞれ Ge 半導体検出器で測定した。ろ紙上残留物の放射性セシウム濃度は、50%湿度雰囲気下で求めた重量あたりで求めた。本調査で得られた測定値は、放射性セシウムの半減期 ( $^{134}\text{Cs}$  [2.0652 年]、 $^{137}\text{Cs}$  [30.1 年]) を考慮して試料採取終了時に減衰補正した。また、大気降下物の採取および前処理に使用したジエチレングリコールおよびろ紙については、U-8 容器に入れて Ge 半導体検出器で測定し、放射性セシウムが検出されていないことを確認した。

#### **(b) 表層土壌**

表層土壌のふるい下試料は、U-8 容器に 30mm の高さになるように詰めて、Ge 半導体検出器 (SEG-EMS、SEIKO EG&G 社製) を用いたガンマ線スペクトロメトリーによる核種分析法で測定した。表層土壌の放射性セシウム濃度は、風乾重量と試料採取の単位面積あたりで求めた。本調査で得られた測定値は、放射性セシウムの半減期を考慮して同様に試料採取時に減衰補正した。

### **4) 元素分析**

#### **(a) 大気降下物**

不溶性成分であるろ紙上残留物の元素分析のための前処理は、マイクロウェーブ分解法で実施した。具体的には、ろ紙を含めて約 250~300mg の残留物をテフロン製分解用容器に分取し、硝酸 7ml を入れて一晚静置した。これに塩酸 2ml を入れて、表 3.2-22 のステップ 1 の条件でマイクロウェーブ分解を行った。放冷後、硝酸 1ml、過塩素酸 1ml およびフッ化水素酸 2.5ml を加え、



表1のステップ2の条件でマイクロウェーブ分解を行った。放冷後、4%ホウ酸溶液 25ml を加え、表1のステップ3の条件でマイクロウェーブ分解を行い、残存するフッ化水素酸をマスキングした。放冷後、分解液を 50ml に定容した。分解液はさらに適宜希釈し、ICP 発光分析法 (Vista-pro、セイコーインスツルメンツ) で土壌の主要成分を含む Al、As、Ba、Be、Ca、Cd、Cr、Cu、Fe、K、Mg、Mn、Mo、Na、Ni、Pb、Sb、Se、Sn、Sr、Ti、V、Zn 濃度を定量した。ろ紙上残留物の元素濃度は、50%湿度雰囲気下で求めた重量あたりで求めた。また、日本分析化学会が頒布する土壌認証標準物質 (JSAC0401 褐色森林土壌、JSAC0411 火山灰土壌) について試料と同様に分解、測定することで、測定の精度管理を行った。認証値は、As、Be、Cd、Cr、Cu、Mn、Ni、Pb、Se、V、Zn の 11 成分に与えられている。日本分析化学会が推奨する供試料量 (100mg 以上) を考慮して 250mg~300mg を対象として先述の手順で測定した結果、JSAC0401 ( $n=1$ ) で Be、Cr、Mn、V、Zn の 5 成分、JSAC0411 ( $n=2$ ) で Cr、Cu、Mn、V、Zn の 5 成分が定量下限以上であった。本調査で得られた測定値は、認証値の±15%であった。

表 3.2-22 マイクロウェーブ分解法の条件

ステップ	時間 (分)	出力 (w)	温度 (°C)
1	2	1000	50
	3	0	30
	25	1000	210
	1	0	180
	4	1000	210
	15	1000	210
2	30	1000	230
	15	0	230
3	30	800	180
	15	800	180

#### (b) 表層土壌

表層土壌のふるい下試料の元素分析の前処理は、混酸分解法で実施した。具体的には、風乾ふるい下試料 5g を分取して、乳鉢で微粉碎した。乾燥重量を算出するため、微粉碎した土壌試料の一部を 105°C で 2 時間加熱し、重量減少分を水分含量として乾燥重量を求めた (含水率: 0.82%~4.3%)。微粉碎した土壌試料 300mg をテフロン製分解容器に分取し、硝酸 5ml を入れた後に時計皿で蓋をしてホットプレート上で 80°C で 1 時間加熱した。次に 140°C で 6 時間加熱分解した。橙褐色の蒸気が殆ど発生しなくなってから、時計皿を外して分解液を濃縮した。放冷後、これに硝酸 3ml と過塩素酸 2ml を入れた。160°C で 1~2 時間加熱し、更に 180°C まで温度を上げて、時計皿を外して蒸発濃縮した。過塩素酸を除去するため、濃縮した分解液に硝酸 1~2ml を入れ

て蒸発濃縮を数回行った。残渣を 0.3mol/L 硝酸で 100g に希釈して分解液とし、孔径 0.45 $\mu$ m の酢酸セルロース性フィルターでろ過後、さらに適宜希釈して ICP 発光分析法 (Vista-pro、セイコーインスツルメンツ) で土壌の主要構成成分を含む Al、As、Ba、Be、Ca、Cd、Cr、Cu、Fe、K、Mg、Mn、Mo、Na、Ni、Pb、Sb、Se、Sn、Sr、Ti、V、Zn 濃度を定量した。表層土壌のふるい下試料の元素濃度は、乾燥重量あたりで求めた。米国 National Institute of Standard and Technology (NIST) が頒布する土壌認証標準物質 (SRM 2709a San Joaquin Soil) について試料と同様に分解、測定することで、測定の精度管理を行った。測定した 23 成分のうち、認証値が Al、Ba、Ca、Cd、Fe、K、Mg、Mn、Na、Pb、Sb、Sr、Ti、V の 15 成分に、参考値が As、Cu、Ni、Zn の 4 成分に与えられている。NIST が推奨する供試料量 (250mg) を考慮して 300mg を対象として先述の手順で測定した結果、Al、Ba、Ca、Cr、Cu、Fe、K、Mg、Mn、Na、Ni、Sr、Ti、V、Zn の 15 成分が定量下限以上であった。本調査で得られた測定値は、Al ( $\pm 18\%$ ) を除くと、認証値の $\pm 15\%$ であった。

## 5) ダイオキシン類分析

### (a) 大気降下物と表層土壌

大気降下物については不溶性成分であるろ紙上残留物 (ダストジャー法採取試料) に、表層土壌についてはふるい下試料に、それぞれ前処理操作における対象物質の損失を確認・補正するためにクリーンアップスパイクを添加した後、トルエン-ソックスレー法により 16 時間以上抽出した。トルエン粗抽出液を濃縮して定容し、一部分取してヘキサンに転溶した。ヘキサン粗抽出液は、多層シリカゲルカラムと活性炭シリカゲルカラムを繋げた連結カラムに展開して、ヘキサンを流下した。次に連結カラムを分離して、活性炭シリカゲルカラムにトルエンを流下して溶出したものをダイオキシン類 (Polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins/ dibenzofurans [PCDD/Fs] および coplanar- polychlorinated biphenyls [Co-PCBs]) 画分とした。ダイオキシン類画分は、窒素パージで濃縮し、先述のクリーンアップスパイクと同様の目的でシリンジスパイクを添加した後、さらに濃縮して測定供試料とした。

ダイオキシン類の定性・定量分析は、高分解能 GC-MS [Auto Spec (Micromass 社製)] を用いて EI (Electron Ionization) 法で実施した。GC 分離カラムは、PCDD/Fs について BPX-DXN (60 m  $\times$  0.25 mm i.d.、関東化学社製)、Co-PCBs について RH-12ms (60 m  $\times$  0.25 mm i.d.、INVENTX 社製) を用いた。注入方法はスプリットレス、注入口温度は 280~300 $^{\circ}$ C とした。MS の各種条件は、イオン化エネルギーを 30~40 eV、イオン源温度を 290~300 $^{\circ}$ C とした。試料溶液中のダイオキシン類は、モニターした 2 つのイオンにおけるクロマトグラム上のピーク面積の比が標準物質のものと同程度であり、塩素原子の同位体存在比から推定されるイオン強度比に対して $\pm 15\%$ 以内であることを確認することで同定した。本研究のモニターイオンは、環境省「ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル」<sup>1)</sup>を参照した。標準物質溶液と同様に、内部標準物質に対する相対ピーク面積を求め、検量線と比較して得られた濃度比から内部標準法に基づき定量値を求めた。ろ紙上残留物のダイオキシン類濃度は、50%湿度雰囲気下で求めた重量あたりで求めた。本調査の<sup>13</sup>C ラベル化ダイオキシン類の回収率は、65~119%であった。

本研究では、焼却施設排ガスが放射性セシウムの発生源になると懸念されていることを踏まえ、焼却排ガスに含まれるばいじん中の放射性セシウムと PCDD/Fs が挙動を共にすると仮定して、大

気降下物中の PCDD/Fs の由来を推定することで、大気降下物中の放射性セシウムの由来を考察した。具体的には、各種試料中の PCDD/Fs 同族体データを対象として、主成分分析 (SYSTAT 13, SYSTAT) を実施した。PCDD/Fs 同族体データは、本研究の表層土壌の他、福島市内の焼却排ガス、PCDD/Fs の発生源とされている PCB 製品<sup>2)</sup>、農薬ペンタクロロフェノール (PCP)<sup>3,4)</sup>及び農薬クロロニトロフェン (CNP)<sup>3,4)</sup>を解析対象とした。また、福島市内で採取された環境大気及び発生源周辺環境大気も解析対象とした。焼却排ガスは、平成 24 年 8 月と 9 月に焼却炉 2 基で採取された試料のデータを使用した。発生源周辺環境大気は、平成 24 年 7 月と 12 月に発生源の風上 1 地点と風下 2 地点で採取された試料のデータをそれぞれ使用した。環境大気は、平成 24 年 11 月、平成 25 年 6 月、8 月、11 月、平成 26 年 1 月に採取された試料のデータを使用した。焼却排ガス、発生源周辺環境大気及び環境大気のダイオキシン類データは、福島市生活環境部水・大気環境課から提供を受けた。

### 6) イメージングプレートによる試料中放射能の面的分布の可視化

本研究では、採取試料のうち、大気降下物の不溶性成分を捕集したフィルターについて、イメージングプレート (IP, BAS IP MS 2040E 或いは BAS IP SR 2040 ESR) を用いて放射能分布を測定した。具体的には、鉛で遮蔽された試料室内で、フィルターを IP に接触させ、大気降下物について 7 日間曝露した。曝露後の IP は、画像解析装置 Typhoon FLA 7000 IP を用いて試料中放射能の面的分布画像を取得した。

## (3) 結果と考察

### 1) 大気降下物量

大気降下物量については水溶性成分と不溶性成分を併せて求めるのが一般的であるが、本調査では「2)放射性セシウム(a)大気降下物」に記述する通り放射性セシウムのほとんどが不溶性成分で検出されることを考慮して、不溶性成分を対象として降下ばいじんを含む大気降下物を測定した。調査期間における大気降下物の 1 日あたりの降下量を図 3.2-40 に示す。降下量は、つくば市で 0.012~1.3 g/m<sup>2</sup>/d (中央値 0.017 g/m<sup>2</sup>/d、n=10)、福島市 A 地点で 0.0066~0.15 g/m<sup>2</sup>/d (中央値 0.015 g/m<sup>2</sup>/d、n=10)、福島市 B 地点で 0.0066~0.20 g/m<sup>2</sup>/d (中央値 0.011 g/m<sup>2</sup>/d、n=10)、福島市 C 地点で 0.0092~0.24 g/m<sup>2</sup>/d (中央値 0.016 g/m<sup>2</sup>/d、n=9)、福島市 D 地点で 0.0060~0.37 g/m<sup>2</sup>/d (中央値 0.017 g/m<sup>2</sup>/d、n=10)、福島市 E 地点で 0.0037~0.13 g/m<sup>2</sup>/d (中央値 0.010 g/m<sup>2</sup>/d、n=9) であり、福島市 E 地点でやや低めであるが地点間に大きな差はみられなかった。試料採取時期では、2/3 月期について大気降下物量が多くなる傾向であった。採取時期における風速、風向、降水日数・量、積雪日数・量等の気象データ<sup>5)</sup>と比較したところ、大気降下物量と風速に関連性がみられた (図 3.2-40 と図 3.2-41)。即ち、風速が強くなることで、大気降下物量が増えることが考えられた。

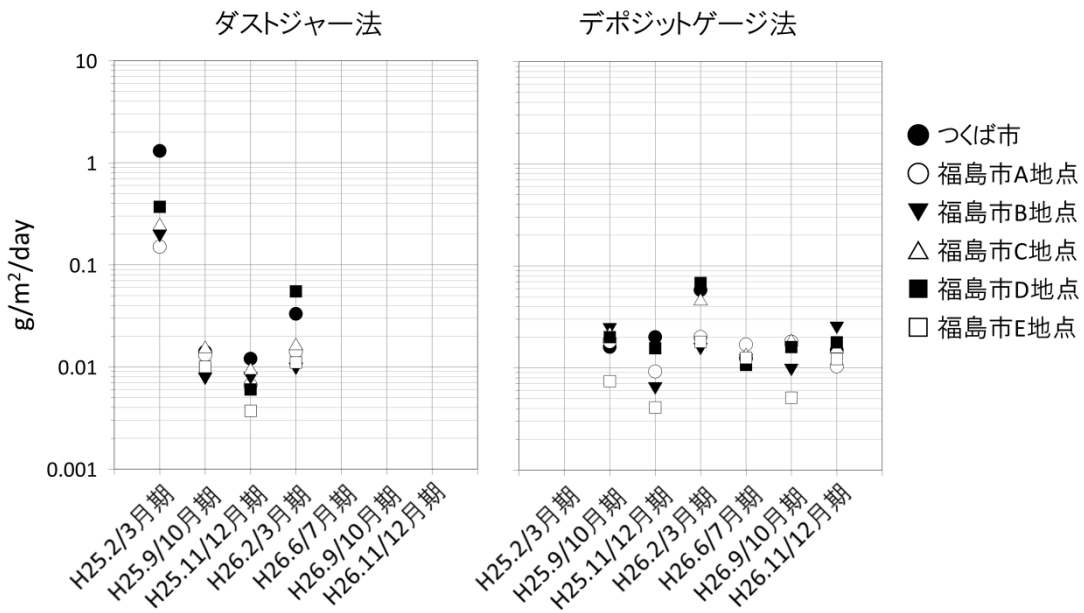


図 3.2-40 調査期間における大気降水物の1日あたりの降水量

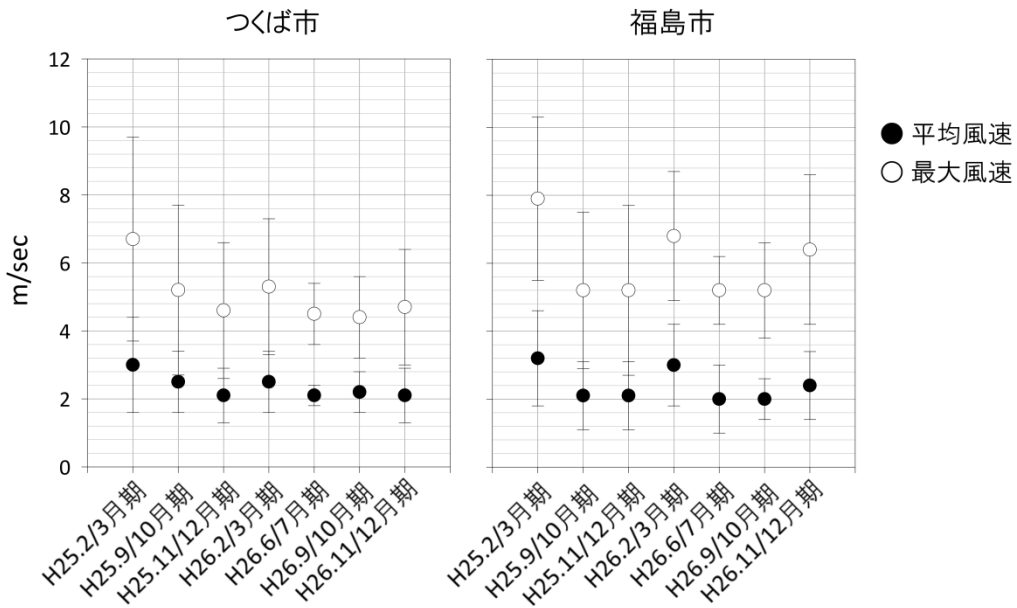


図 3.2-41 調査期間におけるつくば市及び福島市の平均風速と最大風速

## 2) 放射性セシウム

### (a) 大気降水物

本研究では、初期調査で採取した平成25年2/3月期の大気降水物について、水溶性成分および不溶性成分の放射性セシウムを測定した。その結果、放射性セシウムの大気降水量は、水溶性成

分と比較して不溶性成分で圧倒的に高く、96%~98%が不溶性成分由来であった。そこで本研究では、これ以降の大気降下物については、不溶性成分を評価することとした。調査期間における大気降下物の不溶性成分の放射性セシウム濃度と降下量を表 3.2-23 に示す。中央値ベースで比較すると、不溶性成分の放射性セシウム濃度 ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ , Bq/kg) の順位は、福島市 D 地点 > 福島市 B 地点 > 福島市 A 地点 > 福島市 C 地点 > 福島市 E 地点 > つくば市の順であり、つくば市と福島市では 4.5 倍~24 倍程度の濃度差がみられた。また、放射性セシウムの大気降下量 ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ , Bq/m<sup>2</sup>/d) の順位は、中央値ベースで福島市 D 地点 > 福島市 B 地点 > 福島市 C 地点 > 福島市 A 地点 > 福島市 E 地点 > つくば市の順であり、つくば市と福島市では 1.5 倍~16 倍程度の降下量の差がみられた。放射性セシウムの大気降下量は、濃度と比較して、つくば市と福島市で差が小さかった。これは大気降下物量が福島市よりも、つくば市で多い傾向であることを反映している。採取期間における放射性セシウムの大気降下量の推移を図 3.2-42 に示す。採取時期では大気降下物量の増える 2/3 月期に放射性セシウムの大気降下量が増える傾向であった。また、採取地点では大気降下物量に加えて大気降下物の放射性セシウム濃度が高い地点で放射性セシウムの大気降下量が高かった。これらを反映して、福島市 D 地点では、採取期間を通じて放射性セシウムの大気降下量が高い傾向であった。本研究の放射性セシウムの大気降下量は、原子力規制委員会の同時期の定時降下物のモニタリング結果<sup>6)</sup>のうち、茨城県ひたちなか市で得られた結果と概ね同程度であったが、福島市 D 地点のみ高めであった。

**表 3.2-23 採取期間における大気降下物の不溶性成分の放射性セシウム濃度と降下量**

採取地点	データ数	Bq/kg ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ )			Bq/m <sup>2</sup> /d ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ )		
		中央値	最小値	最大値	中央値	最小値	最大値
つくば市	9	1,950	819	3,490	0.0395	0.0175	1.12
福島市 A 地点	9	16,600	5,340	55,300	0.201	0.0940	4.25
福島市 B 地点	9	17,400	12,200	81,200	0.448	0.0992	7.1
福島市 C 地点	9	13,200	9,100	32,900	0.258	0.120	4.11
福島市 D 地点	9	47,300	13,700	208,000	0.646	0.222	52.4
福島市 E 地点	8	8,870	2,420	35,800	0.06085	0.0237	0.734

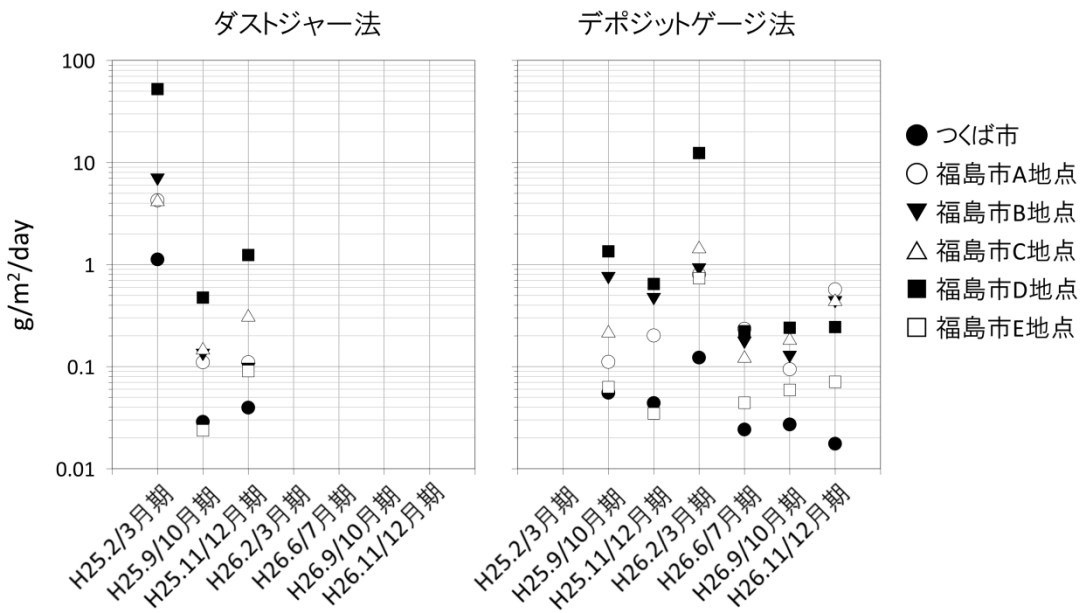


図 3.2-42 採取期間における放射性セシウムの大気降下量の推移

## (2) 表層土壌

表層土壌の放射性セシウム濃度 ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ ) を表 3.2-24 に示す。表層土壌については各地点 2~4 試料について放射能セシウム測定を行っており、濃度順位 ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ ) は、中央値ベースで福島市 D 地点 > 福島市 C 地点 > 福島市 A 地点 > 福島市 B 地点 > つくば市 > 福島市 E 地点の順であった。大気降下物の放射性セシウム濃度の高かった福島市 D 地点では、表層土壌も高かった。福島市 A 地点、B 地点及び C 地点については、大気降下物と同じく、地点間で濃度が同等であった。福島市 E 地点を除くと、いずれの地点についても表層土壌と大気降下物の放射性セシウム濃度は同程度であり、両者の関連性を示唆している。表層土壌の単位面積当たりの放射性セシウムの存在量(スクレーパープレート の面積:  $0.3 \text{ m} \times 0.15 \text{ m} \times 2 \text{ 枚} = 0.090 \text{ m}^2$ 、採取した表層の厚さ  $0.005 \text{ m}$  は考慮していない。)は、中央値ベースで福島市 D 地点 > 福島市 C 地点 > 福島市 A 地点 > 福島市 B 地点 > つくば市 > 福島市 E 地点の順であり、表層土壌の濃度順位と一致していた。放射性セシウムについて、単位面積あたりの大気降下量と表層土壌の存在量を中央値ベースで比較すると、単位面積に降下する大気降下物量よりも表層土壌量が圧倒的に多いことを反映して、少なくとも 1,000 倍~100,000 倍の差がみられた。

表 3.2-24 表層土壌 (0~5mm) の放射性セシウム濃度と単位面積あたりの存在量

採取地点	データ数	Bq/kg ( <sup>134</sup> Cs+ <sup>137</sup> Cs)			Bq/m <sup>2</sup> ( <sup>134</sup> Cs+ <sup>137</sup> Cs)		
		中央値	最小値	最大値	中央値	最小値	最大値
つくば市	3	3140	92.9	3500	2740	66.0	2740
福島市 A 地点	4	14,500	11,100	25,600	15,700	10,800	34,700
福島市 B 地点	3	14,200	115	36,000	8,840	331	23,500
福島市 C 地点	4	22,200	15,000	38,200	46,500	13,800	161,000
福島市 D 地点	4	43,500	21,000	99,600	85,800	24,500	133,000
福島市 E 地点	2	113*	91.6	135	272*	225	318

\*平均値

### 3) 元素

#### (a) 大気降下物と表層土壌の構成元素

大気降下物中の放射性セシウムは、不溶性成分に 96%~98%が存在するため、発生源推定のための元素分析も、大気降下物の不溶性成分を対象とした。本調査では ICP 発光分析法で測定を行い、測定対象とした 23 元素のうち 14 元素を定量した。各地点とも不溶性の大気降下物中の主要な構成元素は、Al、Ca、Fe、K、Mg、Mn、Na の 7 元素であり、全体の 90%~92%を占めていた。表層土壌についても ICP 発光分析法で測定を行い、測定対象とした 23 元素のうち 14 元素を定量した。各地点とも表層土壌の主要な構成元素は、Al、Ca、Fe、K、Mg、Mn、Na の 7 元素であり、全体の 93%~95%を占めており、大気降下物よりもこれらの組成割合が微増していた。本調査で得られた主要な構成元素は、大気降下物と表層土壌で共通しており、大気降下物が巻き上げられた土壌に由来する可能性が高いことを示している。大気降下物と表層土壌で測定された元素を、構成元素ごとにプロットしたものを図 3.2-43 に示す。両媒体で定量された構成元素は、比較的良く一致しており、両媒体の関連性を示した。

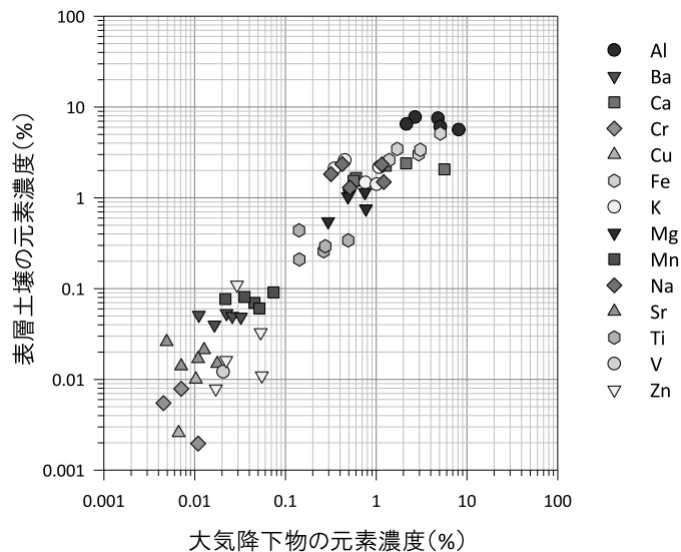


図 3.2-43 大気降下物と表層土壌の元素濃度

#### 4) ダイオキシン類

##### (a) 大気降下物と表層土壌の WHO-TEQ

発生源推定のためのダイオキシン類分析についても、大気降下物の不溶性成分を対象として実施した。大気降下物の不溶性成分のダイオキシン類濃度と降下量を表 3.2-25 に示す。ダイオキシン類濃度 (pg WHO-TEQ/g) の順位は、中央値ベースでつくば市>福島市 E 地点>福島市 A 地点>福島市 B 地点>福島市 C 地点>福島市 D 地点の順で、濃度差は最大で 2.5 倍程度であり放射性セシウムの結果と異なり接近した値であった。ダイオキシン類の大気降下量 (pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d) は、中央値ベースでつくば市>福島市 B 地点>福島市 A 地点>福島市 E 地点>福島市 C 地点>福島市 D 地点の順であり、福島市と比較してつくば市で高くなる傾向であった。平成 10 年度に環境庁 (現環境省) が実施した「ダイオキシン類緊急全国一斉調査結果」<sup>7)</sup>では、降下ばいじんを対象としてダイオキシン類濃度 (WHO-TEF [1997]<sup>8)</sup> を使用) を調査しており、発生源周辺で中央値 21 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d (0.34~66 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d, n=103)、大都市地域で中央値 23 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d (0.82~53 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d, n=28)、中小都市地域で中央値 11 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d (0.92~66 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d, n=20)、バックグラウンドで中央値 3.8 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d (0.34~8.6 pg WHO-TEQ/m<sup>2</sup>/d, n=7) と報告されている。本研究の各地点におけるダイオキシン類の大気降下量は、不溶性大気降下物のみを対象としておりあくまで参考値であるが、バックグラウンド地域のデータ範囲内であり、福島市で特に低い値であった。環境省の調査によると<sup>9)</sup>、ダイオキシン類排出量は、当該一斉調査<sup>7)</sup>が実施された平成 10 年度で 2,650 g WHO-TEQ/y であったが、平成 15 年度に 145 g WHO-TEQ/y となり、平成 23 年度に 59 g WHO-TEQ/y まで減少した。これは、平成 14 年 12 月 1 日に排出基準が強化され、バグフィルターの設置など排ガス高度処理対策を行った焼却施設が増加<sup>9)</sup>したことに起因すると考えられる。これらを考慮すると、少なくとも福島市内の大気降下物採取地点の周辺に立地する焼却施設については排ガス高度処理対策を行いダイオキシン類が吸着しているばいじんを除去できており、その結果として大気降下物中のダイオキシン類濃度が低いと考えられた。表層土壌のダイオキシン類濃度は、国立環境研究所で 8.6~11 pg WHO-TEQ/g (n=2)、福島市 A 地点で 0.67~11 pg WHO-TEQ/g (n=4)、福島市 B 地点で 0.0011~4.0 pg WHO-TEQ/g (n=2)、福島市 C 地点で 3.3~6.2 pg WHO-TEQ/g (n=3)、福島市 D 地点で 0.53~19 pg WHO-TEQ/g (n=4)、福島市 E 地点で 0.00043~0.0022 pg WHO-TEQ/g (n=2) であり、環境基準 (1,000 pg WHO-TEQ/g) と比較するとかなり低い濃度であった。

表 3.2-25 大気降下物の不溶性成分のダイオキシン類濃度 (WHO-TEQ) と降下量

採取地点	データ数	pg-WHO-TEQ*/g			pg WHO-TEQ*/m <sup>2</sup> /day		
		中央値	最小値	最大値	中央値	最小値	最大値
つくば市	4	69	12	140	1.9	1.0	16
福島市 A 地点	4	56	3.3	100	0.66	0.53	0.85
福島市 B 地点	4	51	4.8	81	0.68	0.25	1.0
福島市 C 地点	4	35	1.5	69	0.54	0.37	0.63
福島市 D 地点	4	25	1.2	55	0.40	0.33	0.75
福島市 E 地点	3	61	43	150	0.55	0.41	0.68

\*WHO-TEF (2005)<sup>10)</sup>を用いて算出



**(b) 大気降下物と表層土壌の PCDD/Fs 同族体組成**

大気降下物の不溶性成分と表層土壌の平均 PCDD/Fs 同族体組成を図 3.2-44 と図 3.2-45 に示す。大気降下物については、つくば市と福島市で大きく異なり、福島市内 5 地点で類似していた。表層土壌については、大気降下物と異なり、採取地点間で同族体組成が比較的似る傾向であった。福島市 E 地点の表層土壌については、検出下限以下の同族体があったため、同族体組成を示していない。ダイオキシン類の発生源としては、廃棄物等の燃焼・焼却過程や、熱媒体、絶縁油、可塑剤、溶剤等に使用され POPs として国際的に規制管理されている PCBs や、水田除草剤として使用され既に農薬登録が失効している PCP および CNP が良く知られている。福島市内焼却施設の排ガス（平成 24 年夏採取）と、PCBs<sup>2)</sup>、PCP および CNP<sup>3,4)</sup>で報告されている PCDD/Fs 同族体組成を図 3.2-46、図 3.2-47 および図 3.2-48 にそれぞれ示す。清家ら<sup>4)</sup>によると、燃焼・焼却過程で PCDD/Fs は全異性体が生成するが（図 3.2-46）、PCBs では主に PCDFs 異性体が（図 3.2-47）、PCP では OCDD/F や HpCDD/Fs といった塩素数が多い異性体が、CNP では 1,3,6,8-TeCDD や 1,3,7,9-TeCDD といった塩素数の少ない異性体がそれぞれ特徴的に含まれている（図 3.2-48）。PCP や CNP 中の PCDD/Fs については、図 3.2-48 に示すように特徴的な同族体組成が得られており、つくば市で採取した大気降下物については、PCP 中の PCDD/Fs 同族体組成に類似していた。一方、福島市で採取した大気降下物については、いずれの発生源の PCDD/Fs 同族体組成とも似ていなかった。PCDD/Fs 同族体組成の比較において留意すべき点として、焼却施設由来の PCDD/Fs 同族体組成は、投入物や炉の種類、排ガス処理設備等に影響を受ける可能性があるため、対象施設や採取時期によってプロファイルが変動することが挙げられる。大気降下物や表層土壌中のダイオキシン類については、福島市内で採取した環境大気の影響を受けると考えられるため、福島市内で採取された環境大気及び発生源周辺環境大気との比較も行った（図 3.2-49 及び図 3.2-50）。福島市内で採取した大気降下物の PCDD/Fs 同族体組成は、上述の発生源よりも、福島市内で採取された環境大気及び発生源周辺環境大気と似る傾向であった。

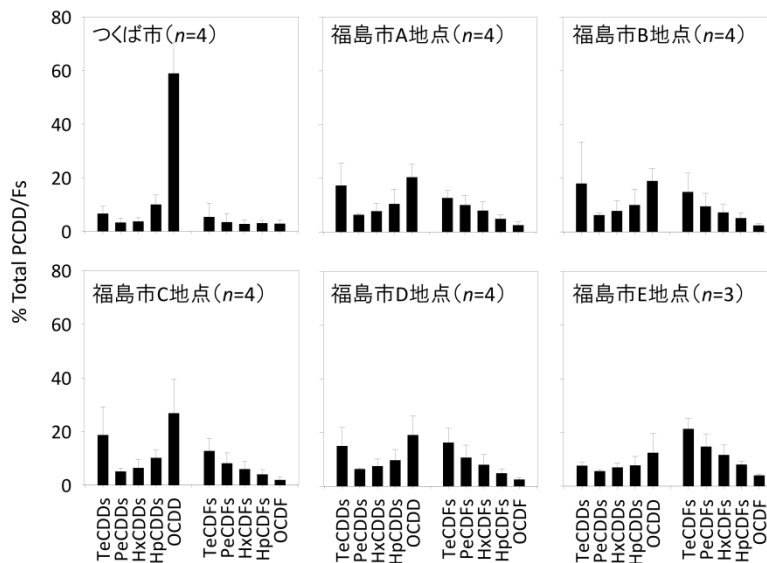


図 3.2-44 大気降下物の不溶性成分の PCDD/Fs 同族体組成

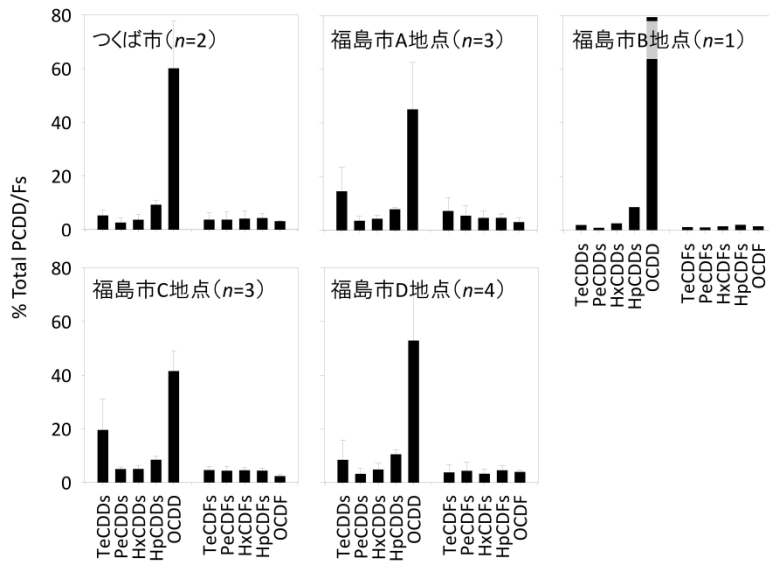


図 3.2-45 表層土壌の PCDD/Fs 同族体組成

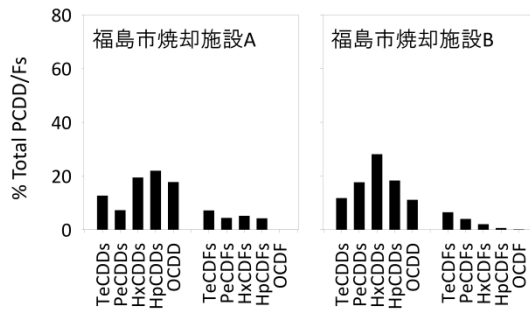


図 3.2-46 福島市内焼却施設の排ガスの PCDD/Fs 同族体組成

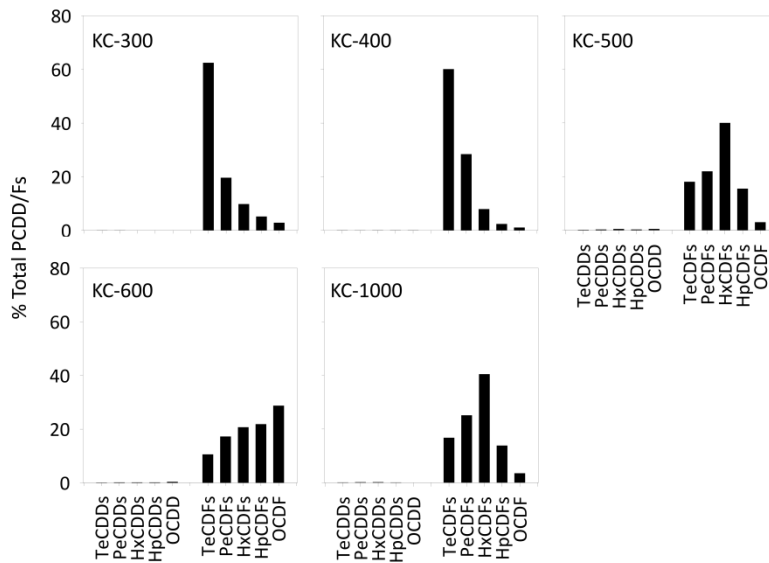


図 3.2-47 PCB 製剤の PCDD/Fs 同族体組成

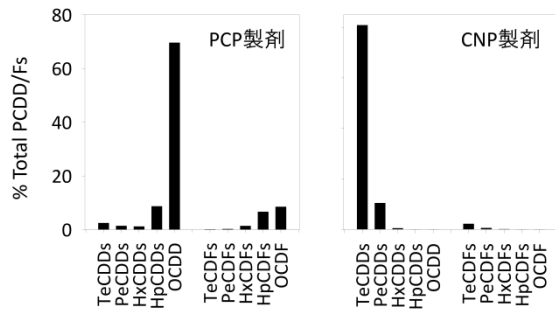


図 3.2-48 PCP 製剤及び CNP 製剤の PCDD/Fs 同族体組成

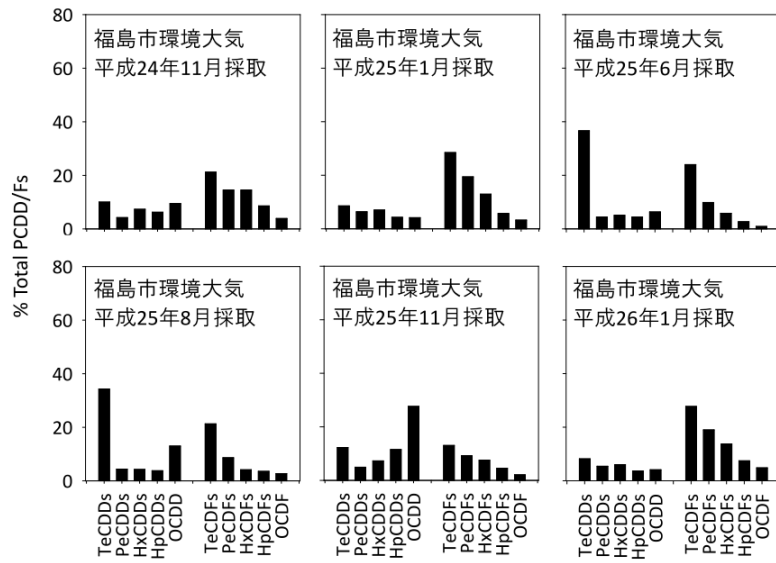


図 3.2-49 福島市内で採取された環境大気中の PCDD/Fs 同族体組成

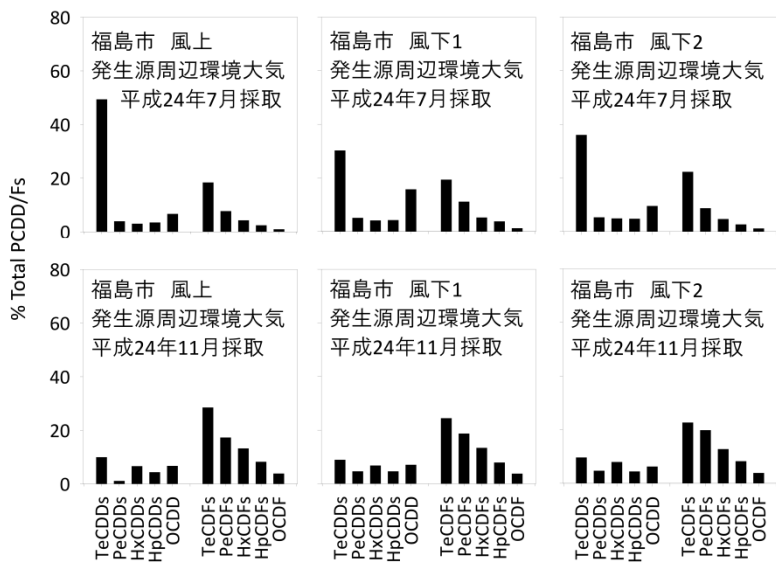


図 3.2-50 福島市内で採取された発生源周辺環境大気中の PCDD/Fs 同族体組成

### (c) 主成分分析

本研究では、大気降下物中の PCDD/Fs の発生源を推定するため、福島市の環境大気、発生源周辺環境大気及び焼却排ガスと、PCBs<sup>2)</sup>、PCP および CNP<sup>3,4)</sup>の PCDD/Fs 同族体組成のデータについて主成分分析を行った。PCDD/Fs 同族体を変数として主成分分析を行った結果（各種成分の寄与率、累積寄与率、固有値）を表 3.2-26 に、各データの主成分得点をプロットしたものを図 3.2-51 に示す。固有値が 1 以上の主成分が 4 つ得られた。主成分負荷量から、PC1 は、正が TeCDFs～HpCDFs、負が TeCDDs (CNP 製剤由来?)、PC2 は、正が TeCDDs、PeCDDs、TeCDFs と PeCDFs、負が HpCDDs、OCDD (PCP 製剤由来?) と OCDF、PC3 は、正が HxCDDs と HpCDDs、負が OCDF、PC4 は、正が PeCDDs、HpCDFs と OCDF であった。由来が推定できる PC は多くなかった。図 3.2-51 をみると、第 1 主成分については、焼却排ガス、PCP 製剤、表層土壌で正の値を取り、第 2 主成分については、CNP 製剤や TeCDDs にピークを持つ環境大気が正の値を取っている。大気降下物は、第 1 主成分と第 2 主成分の正の付近にプロットされていることから、焼却排ガス、PCP 製剤、表層土壌、CNP 製剤、一部の環境大気との関連性が示された。これは、大気降下物中の PCDD/Fs が、焼却排ガスだけでなく、表層土壌や環境大気等のその他の媒体からも広く影響を受けていることを示唆している。即ち、大気降下物中の放射性セシウムについても、これらの複数の環境媒体を由来とする可能性が考えられる。

表 3.2-26 PCDD/Fs 同族体の主成分分析結果

変数	固有ベクトル			
	PC1	PC2	PC3	PC4
TeCDDs	-0.639	0.618	-0.208	0.190
PeCDDs	-0.360	0.535	0.273	0.465
HxCDDs	0.252	0.006	0.886	0.233
HpCDDs	0.155	-0.506	0.777	0.133
OCDD	-0.205	-0.871	-0.009	-0.359
TeCDFs	0.669	0.512	0.087	-0.327
PeCDFs	0.870	0.429	0.042	-0.173
HxCDFs	0.845	0.224	-0.103	0.012
HpCDFs	0.762	-0.326	-0.273	0.407
OCDF	0.363	-0.473	-0.495	0.510
固有値	3.30	2.51	1.85	1.02
寄与率	33.0	25.1	18.5	10.2
累積寄与率	33.0	58.1	76.6	86.8

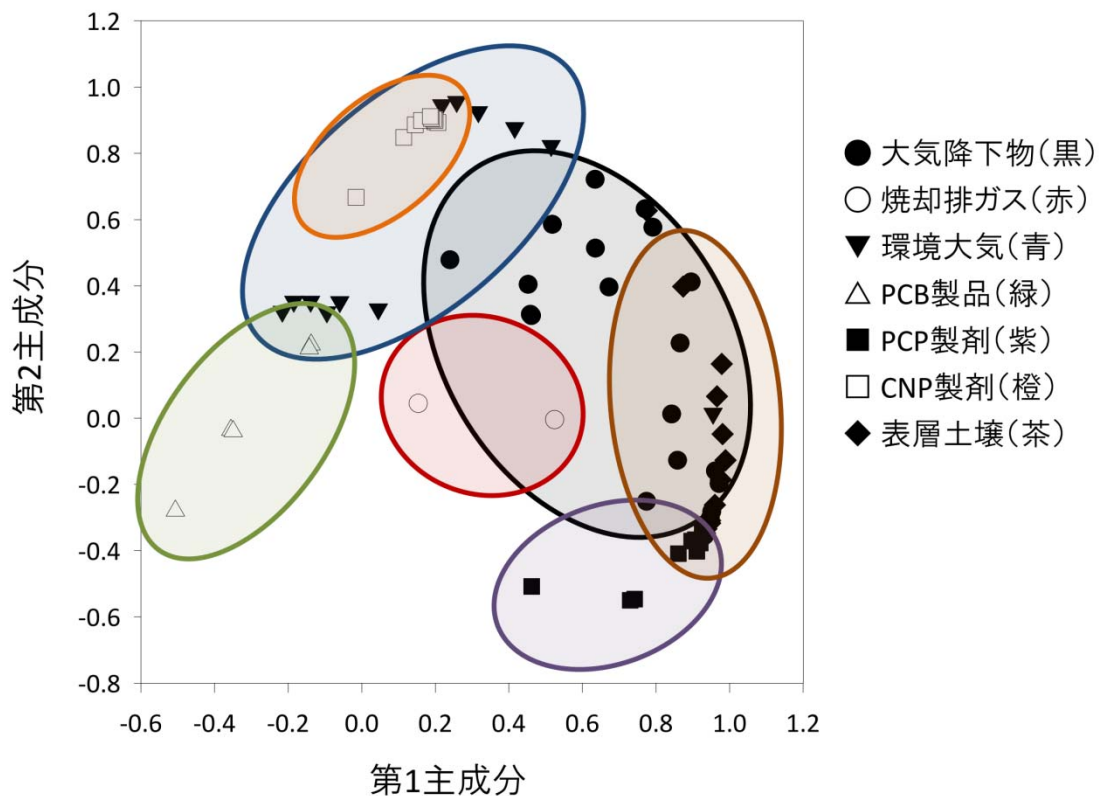


図 3.2-51 各データの主成分スコアの散布図

### 5) イメージングプレート

これまでに得られた結果を総合すると、大気降下物中の放射性セシウムは、焼却排ガスが主要な発生源でなく、風で巻き上げられた表層土壌が主な発生源であると推察された。そこで次に表層土壌の放射性セシウムの由来を把握することを目的として、放射性セシウムの存在状態をイメージングプレートで評価した。対象とした大気降下物試料は平成 26 年 2/3 月期に採取した試料であり、濃度順位 ( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ ) は福島市 D 地点 (165,000 Bq/kg) > 福島市 B 地点 (54,000 Bq/kg) > 福島市 A 地点 (36,900 Bq/kg) > 福島市 C 地点 (28,100 Bq/kg) > 福島市 E 地点 (35,800 Bq/kg) > つくば市 (1,900 Bq/kg) の順であった。イメージングプレートで得られたこれら大気降下物 (ろ紙上の不溶性成分) の放射能分布を図 3.2-52 に示す。大気降下物中の放射性セシウムは、ろ過されたフィルター上に均一に分布しているわけではなく、高濃度粒子として偏在していた。定量的な評価は難しいものの、概ね大気降下物の放射性セシウム濃度の高い順に、放射性セシウム含有粒子が多く検出される傾向であった。放射性セシウム含有粒子は、茨城県つくば市で放射性プルームを捉えたハイボリュームエアサンプラー上に 1~数  $\mu\text{m}$  の球状で存在することが既に明らかにされている<sup>10)</sup>。また、大型放射光施設 Spring-8 のシンクロトン放射光  $\mu$  ビーム X 線で元素マッピングを実施した結果、放射性セシウム含有粒子はウランを含んでおり、原発事故由来である可能性が高いと報告されている。これらを考慮すると、表層土壌中に原発由来の放射性セシウム含有粒子が存在しており、それが風によって土壌と一緒に巻き上げられて、大気降下物となっている可能性が高い。今後、福島市内で採取した試料中に含まれる放射性セシウム含有粒子について、起源や由来等を明らかにするアプローチを取る予定である。

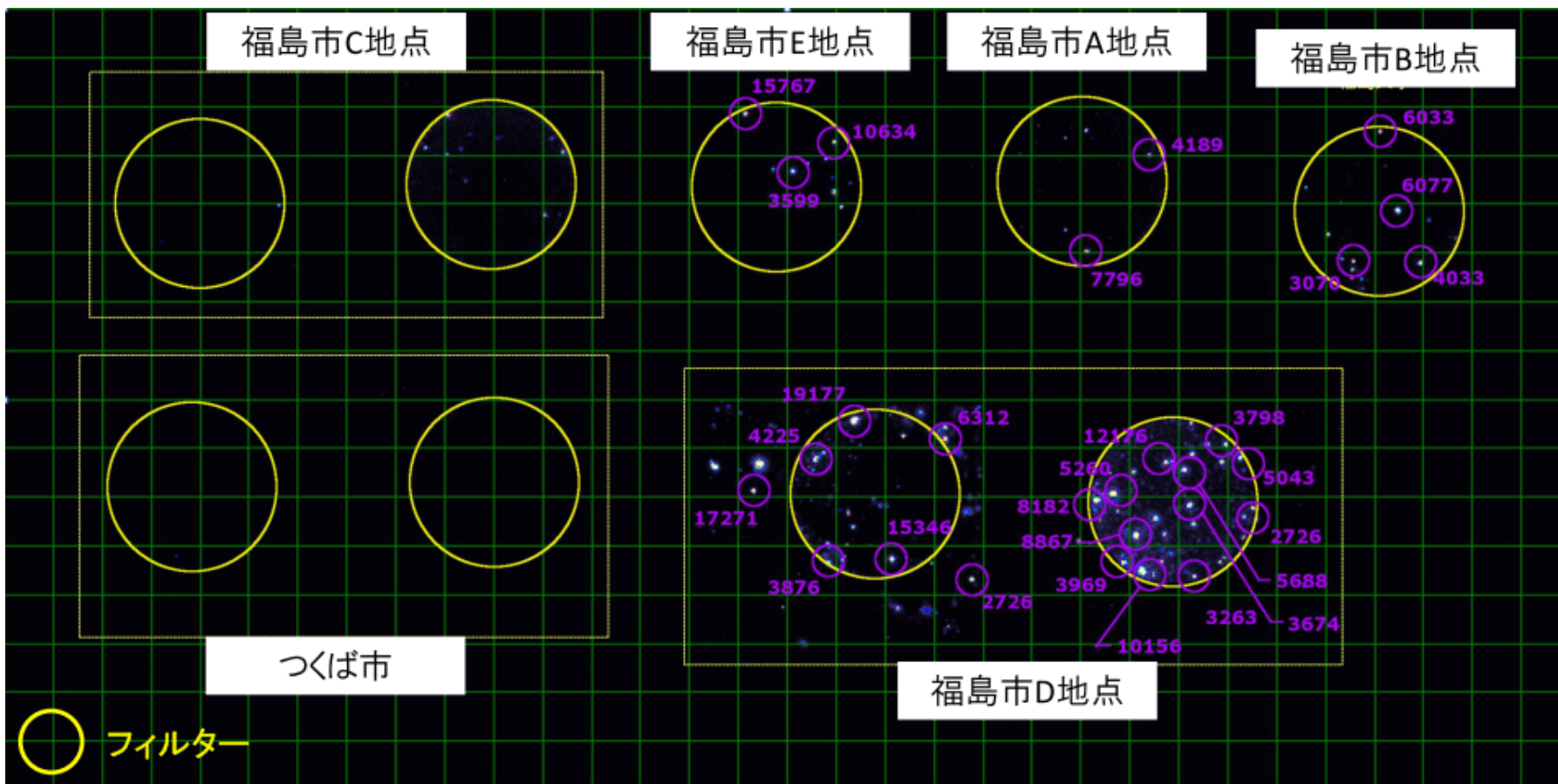


図 3.2-52 イメージングプレートによる大気降下物（ろ紙上の水不溶性成分）の放射能分布の可視化

## 参考文献

- 1) 環境省. ダイオキシン類に係る土壌調査測定マニュアル, 2009年3月
- 2) 野馬幸生, 石川紫, 能勢和聡, 峯戸松勝秀, 滝上英孝, 酒井伸一, 泉澤秀一, 鎗木儀郎. 保管 PCB 廃棄物の PCBs およびダイオキシン類. 環境化学 2004, 14, 501-518.
- 3) Masunaga, S., Takasuga, T., Nakanishi, J. Dioxin and dioxin-like PCB impurities in some Japanese agrochemical formulations. Chemosphere 2001, 44, 873-885.
- 4) 清家信康, 大谷卓, 上路雅子, 高菅卓三, 都築伸幸. 水田土壌中ダイオキシン類の起源と推移. 環境化学 2003, 13, 117-131.
- 5) 国土交通省気象庁. 過去の気象データ検索 (<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>)
- 6) 原子力規制委員会. 放射線モニタリング情報 (<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/195/list-1.html>)
- 7) 環境庁(現環境省). ダイオキシン類緊急全国一斉調査結果について(平成10年度実施). 報道発表資料 1999年9月
- 8) Van den Berg, M., Birnbaum, L., Bosveld, A.T.C., Brunström, B., Cook, P., Feeley, M., Giesy, J.P., Hanberg, A., Hasegawa, R., Kennedy, S.W., Kubiak, T., Larsen, J.C., Rolaf van Leeuwen, F.X., Liem, A.K.D., Nolt, C., Peterson, R.E., Poellinger, L., Safe, S., Schrenk, D., Tillitt, D., Tysklind, M., Youness, M., Waern, F., Zacharewski, T. Toxic equivalency factor (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs, for humans and wildlife. Environ. Health Perspect. 1998, 106, 775-792.
- 9) 環境省. 一般廃棄物焼却施設の排ガス中ダイオキシン類濃度等について. 記者発表資料 2013年3月
- 10) Abe, Y., Iizawa, Y., Terada, Y., Adachi, Kouji, Igarashi, Y., Nakai, I. Detection of uranium state analysis of individual radioactive microparticles emitted from Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analysis. Anal. Chem. 2014, 86, 8521-8525.
- 11) Van den Berg, M.; Birnbaum, L.S.; Denison, M.; De Vito, M.; Farland, W.; Feeley, M.; Fiedler, H.; Hakansson, H.; Hanberg, A.; Haws, L.; Rose, M.; Safe, S.; Schrenk, D.; Tohyama, C.; Tritscher, A.; Tuomisto, J.; Tysklind, M.; Walker, N.; Peterson, R.E.. The 2005 World Health Organization reevaluation of human and Mammalian toxic equivalency factors for dioxins and dioxin-like compounds. Toxicol. Sci. 2006, 93, 223-241.

### 3.2.3 焼却灰等に含まれる放射性ストロンチウム等他核種の評価

#### (1)はじめに

##### 1)背景

2011年3月の福島第一原発事故により様々な放射性核種が環境中に放出された。放射性物質汚染対処特措法では、これらのうち、放出量が多く半減期の比較的長いセシウム134と137(Cs-134、Cs-137)を対象としている。事故後4年が経過し、今後福島県内の旧警戒区域の復旧復興を進めてゆく上で、放射性Cs以外の長寿命核種の濃度や廃棄物処理過程での濃縮傾向といった挙動の把握は、重要な課題の一つである。例えば、ストロンチウム90(Sr-90)は半減期が28.8年とCs-137(半減期30.2年)にほぼ等しい長寿命の放射性核種である。Sr-90の大気への放出量は $1.4 \times 10^{14}$  Bqと放射性Csの1/100程度であり<sup>1)</sup>、土壌への沈着量はCs-137の1/1000程度とされている<sup>2)</sup>。なお、ストロンチウム89(Sr-89)は大気への放出量が $2.0 \times 10^{15}$  BqとSr-90よりも大きい、半減

期が 50.5 日と短いため、現在では重要は低いと考えられる。一方で、Sr-90 は壊変過程で  $\gamma$  線を放出しないことから、放射性 Cs の測定等に用いられるゲルマニウム半導体検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリーでは放射性 Sr を検出できず、放射化学分析により放射性 Sr を単離した後に  $\beta$  線計数装置で測定することになる。国内で通常用いられている文部科学省の放射性ストロンチウムの分析法<sup>3)</sup> (以下、公定法という。) は、煩雑で 2 週間程度の時間を要する方法である。

廃棄物分野での放射性 Sr の測定事例は、上述のように放射性 Sr の測定が困難であるためか、非常に少ない。環境省の第 13 回災害廃棄物安全評価検討会で報告された福島県内の一般廃棄物焼却施設で 2012 年 2 月に実施した調査では、飛灰中濃度が 9.7 Bq/kg (Sr-89 と Sr-90 の和)、主灰中濃度が 13.9 Bq/kg (同) であった<sup>4)</sup>。また、国立環境研究所の平成 24 年度環境省委託業務において、同一施設で 2012 年 12 月に採取した焼却灰試料を公定法により測定したところ、Sr-90 の濃度は飛灰で 11.0 Bq/kg、主灰で 9.2 Bq/kg であった<sup>5)</sup>。新潟県柏崎市が 2012 年に実施した岩手県大槌町の災害廃棄物の試験焼却では、試験焼却前 (8 月 14 日採取) の濃度が 2.6 Bq/kg、試験焼却中 (10 月 12 日) の濃度が 2.9 Bq/kg であったとしている<sup>6)</sup>。ともあれ、放射性 Sr の焼却過程での挙動や焼却灰中濃度の地域差、採取時期による濃度変化等を議論するには、測定事例が不足している。

## 2) 目的

上述の背景を踏まえ、放射性 Sr の焼却過程での挙動や焼却灰中濃度の地域差を議論する前提となる測定データの収集を進めるべく、焼却灰中放射性 Sr の測定を行った。また、国立環境研究所の平成 25 年度環境省委託業務で開発した簡易法<sup>7)</sup>の信頼性についても検証するため、一部試料について公定法による併行測定を行うこととした。

## (2) 方法

### 1) 試料

今回対象とした焼却灰 14 試料について表 3.2-27 にまとめた。焼却施設 8 施設の炉の形式は、ガス化溶融炉の 1 施設を除きストーカ炉であった。焼却施設の立地は福島県中通りが 3、浜通りが 3、栃木県が 1、千葉県が 1 であり、採取時期は 2011 年 7 月から 2013 年 11 月までであった。焼却施設はほとんどが一般廃棄物焼却施設であるが、災害廃棄物仮設焼却炉が 1 施設あった。公定法、簡易法それぞれ 8 試料ずつ測定し (表中○で示した試料)、2 試料については併行測定した。

表 3.2-27 焼却灰試料の一覧

No.	公定法	簡易法	焼却施設	炉の形式	焼却施設の立地	試料種類	採取日	Cs-134+Cs-137 (Bq/kg)
1		○	A	ストーカ	福島県中通り	BF 灰	2013/1/23	59,900
3	○	○	B	ストーカ	福島県中通り	飛灰	2012/3/15	8,460
4	○	○	B	ストーカ	福島県中通り	主灰	2012/3/15	1,590
5	○		C	ストーカ	福島県中通り	飛灰	2013/2/20	28,600
6	○		C	ストーカ	福島県中通り	主灰	2013/2/20	2,660
7	○		D	ストーカ	千葉県	飛灰	2011/12/28	21,000
8	○		D	ストーカ	千葉県	主灰	2011/12/28	3,600



9		○	D	ストーカ	千葉県	飛灰	2012/4/25	35,700
10		○	D	ストーカ	千葉県	主灰	2012/4/25	3,170
14		○	E	ガス化熔融	栃木県	BF 灰	2012/12/21	6,700
16		○	F	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2011/8/11	18,200
17		○	G	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2011/7/27	10,800
18	○		H	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2013/11/7	3,810
19	○		H	ストーカ	福島県浜通り	主灰	2013/11/7	739

## 2) 方法

焼却灰試料中の放射性 Sr の測定は、公定法と平成 25 年度環境省委託業務で開発した簡易法により実施した。以下に各法の測定手順について示す。

### (a) 公定法

(乾燥・篩い分け・酸分解) 送付された試料をアルミ容器に分取し、乾燥・ふるい処理した。送付された試料量に応じて灰試料を分取し、Sr 担体を 50mg 添加後、王水、 $H_2O_2$  により酸分解した。分解後、希 HCl にて溶解し、不溶物を吸引ろ過した。

(炭酸塩分離・しゅう酸分離) ろ液に NaOH を加えて  $pH > 10$  とし、 $Na_2CO_3$  を加えて炭酸塩沈殿を生成して Cs 等を除去した。沈殿を HCl に溶解し、炭酸塩分離を繰返した。炭酸塩沈殿を遠心分離後、HCl に溶解し  $H_2C_2O_4$  を加え、 $NH_4OH$  により  $pH$  を 4.0~4.2 に調節してしゅう酸塩沈殿を生成し、Fe 等を除去した。沈殿を HCl に溶解し、再度しゅう酸塩分離を繰返した。しゅう酸塩沈殿は吸引ろ過後、 $600^\circ C$  で一晚以上灰化した。

(水酸化物分離法によるカルシウム除去) 灰化物を HCl で溶解・ろ過し、ろ液に NaOH を加えて  $pH$  を 13.5 に調節し、水酸化物沈殿を生成した。傾斜法及び遠心分離により上澄み液と水酸化物沈殿に分け、水酸化物沈殿に温 NaOH を加えて洗い、沈殿物中に残った Sr を回収し、水酸化物沈殿 (Ca 等) を除去した。回収液は先の上澄みに合わせ、 $Na_2CO_3$  を加えて炭酸塩沈殿を生成・一晚静置した。

(発煙硝酸処理・クロム酸処理・スカベンジング) 炭酸塩沈殿をガラスフィルター (1G4) でろ過、 $HNO_3$  で溶解し、発煙硝酸を用いて硝酸塩を生成・分離した。さらに  $BaCrO_4$  の沈殿を生成して Ra 等を除去し、 $Fe(OH)_3$  共沈により Y-90 を除去した (スカベンジング)。

回収率は、前処理溶液から少量分取して ICP-AES 測定により求めた。また、回収率計算に必要な試料に含まれる安定 Sr 濃度は、灰 1 g を酸分解し、適当な濃度に希釈して ICP-AES にて測定して求めた。

(測定) スカベンジングから 2 週間以上経過後、Sr-90 から生成し放射平衡に達した Y-90 を  $Fe(OH)_3$  に共沈させ (ミルクキング)、低バックグラウンド  $2\pi$  ガスフローカウンタにより測定時間 100 分にて  $\beta$  線計測を行った。また、測定は複数回行い、Y-90 の減衰を確認した。

(計算) Sr の回収率は次式により求めた。

回収率 (%) = (前処理済み溶液中の Sr 量 (mg、回収率用に分取した溶液分は差引く)) ÷ (添加した担体 Sr 量 (mg) + 供試した灰試料中に含まれる Sr 量 (mg)) × 100

測定時点における Sr-90 濃度 (Bq/kg-DW) は次式から算出し、採取日時まで減衰補正した。

$$\text{Sr-90 (Bq/kg)} = (\text{正味計数率 (cps)}) \div (\text{計数効率 (\%)}) \times 100 \times 100 \div (\text{回収率 (\%)}) \times 1000 \\ (\text{g/kg}) \div (\text{供試量 (g)})$$

### (b) 簡易法

試料を精秤し、濃硝酸 50ml を加え 12 時間静置して抽出した。抽出液を孔径 0.45 $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルターでろ過した。これに水酸化ナトリウムを加えて pH を 9~10 に調整し、12 時間静置した。これを孔径 0.45 $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルターでろ過した。これにクロム酸を添加し、沈殿が生成するまでホットプレートで加熱濃縮した。沈殿生成後放冷し、孔径 0.45 $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルターでろ過した。これに硝酸濃度が 2mol/L となるように硝酸を加え、コンディショニング、洗浄したラドディスク・ストロンチウム(米 3M 社製)に約 50mL/分の流速で通液して Sr を回収した。試料通液後のラドディスク・ストロンチウムは 2mol/L の硝酸 20mL を約 50mL/分の流速で通液して洗浄した後、純水で洗浄液が中性となるまで酸を洗浄し、洗浄後の時刻を Y-90 の成長開始点とした。ガスフロー型  $\beta$  線計数装置を用いてラドディスク・ストロンチウムに回収された放射性核種の  $\beta$  線を測定した。

### (3) 結果及び考察

#### 1) Sr-90 の測定結果

焼却灰試料中 Sr-90 濃度の測定結果を表 3.2-28 に示した。Sr-90 の濃度は 2.3~7.75 Bq/kg であり、「(1)はじめに」に掲載した報告例と大差ない値であった。

公定法による測定において、Sr の回収率は 62.7~82.5%であった。また、安定 Sr 濃度は 0.145~0.404 mg/kg であった。辰市らは一般廃棄物焼却施設 9 施設で採取した焼却灰中の安定 Sr 濃度について、主灰で 0.257~0.987 mg/g (平均 0.419 mg/g)、飛灰で 0.212~0.705 mg/g (平均 0.282 mg/g) と報告しており<sup>8)</sup>、今回の安定 Sr 濃度は辰市らの報告と同レベルであった。このことから、公定法による Sr-90 の測定については、特段の問題はなかったと考えられた。

表 3.2-28 焼却灰試料中 Sr-90 濃度の測定結果一覧

No.	公定法	簡易法	供試量 (g)	安定 Sr (mg/g 乾重)	回収率 (%)	Sr-90 濃度 (Bq/kg 乾重)	
						濃度	検出下限値
1		○	5.0	—	—	5.5	4.22
3	○		50.0	0.220	80.9	2.71 $\pm$ 0.20	0.29
		○	10.0	—	—	2.5	2.11
4	○		50.0	0.404	82.5	7.23 $\pm$ 0.29	0.27
		○	10.0	—	—	N.D.*	2.11
5	○		40.0	0.225	76.5	7.75 $\pm$ 0.35	0.36
6	○		80.0	0.280	76.2	6.09 $\pm$ 0.22	0.19
7	○		50.0	0.224	75.3	4.14 $\pm$ 0.24	0.30
8	○		80.0	0.320	79.7	3.11 $\pm$ 0.15	0.17
9		○	10.0	—	—	2.3	2.11
10		○	10.0	—	—	N.D.	2.11

14		○	10.0	—	—	N.D.	2.11
16		○	10.0	—	—	2.9	2.11
17		○	10.0	—	—	N.D.	2.11
18	○		40.0	0.199	62.7	3.49±0.28	0.45
19	○		80.0	0.145	72.5	3.19±0.16	0.19

\* N.D.: 不検出。

## 2) 考察

### (a) 簡易法の評価

簡易法と公定法で併行測定した試料の Sr-90 の測定結果は、No.3(飛灰)について簡易法では 2.5 Bq/kg、公定法では 2.71 Bq/kg、No.4 (主灰) について簡易法では不検出、公定法では 7.23 Bq/kg であった。また、簡易法により測定した全ての主灰で Sr-90 は不検出であった。検出下限値は公定法では 0.19~0.45 Bq/kg であるのに対し、簡易法では 2.11~4.22 Bq/kg と一桁高かった。しかし、供試量が公定法では 40.0~80.0 g であるのに対し簡易法では 5.0~10.0 g と少なく、実質的には簡易法が 2 倍程度高いものとなった。

No.4 の公定法での Sr-90 の測定結果は簡易法の検出下限値よりも高く、簡易法でも Sr-90 が検出できる筈であるが、他の主灰も不検出であったことから、主灰に対しては現状の測定手順の適用は困難と判断される。簡易法では Sr の回収に選択吸着固相ディスク (ラドディスク・ストロンチウム) を使用しているが、Ca や Ba 等のアルカリ土類金属元素が試料中に大量に存在する場合には、吸着妨害により Sr の回収率が顕著に低下することや<sup>7)</sup>、主灰やスラグのように Si の組成比が高い試料では、酸分解時にゲル状沈殿を生成して以後のろ別操作等の障害となることが、過去の簡易法の検討で分かっている<sup>5)</sup>。前者についてはクロム酸処理を追加する等で対応したが、後者については酸分解の方法(用いる酸の種類等)について再度検討する必要がある。また、簡易法の検出下限値は、今回の測定結果から考えると十分とは言えず、選択吸着固相が破過しない範囲で供試量を多くし、検出下限値を低くする必要がある。No4 について、Ge 半導体検出器を用いた $\gamma$ 線核種分析を行った際、放射性 Cs だけでなく、Bi-214、Pb-214、Pb-210、Ra-226 等の U 系列、Pb-212、Ac-228、Tl-208 等の Th 系列及び K-40 といった天然放射性核種を検出している。K-40 濃度は主灰よりも飛灰で高く、U 系列および Th 系列の天然核種は飛灰よりも主灰で高濃度である傾向にあった。ラドディスク ストロンチウムによる Sr の妨害元素である Pb や Ra 等の存在については Ge 半導体検出器を用いた $\gamma$ 線核種分析により確認することが可能であり、今後 Sr-90 のより精度ある前処理と分析のために、U 系列や Th 系列の天然核種の確認も必要であろう。

### (b) 放射性 Sr の焼却過程での挙動

放射性 Cs は焼却時に容易に揮発し、排ガス処理工程において凝集して飛灰へと移行することが知られている<sup>6)</sup>。放射性 Cs の飛灰中濃度と主灰中濃度の比を表 3.2-29 に示したが、5.16~11.3 であり、放射性 Cs は飛灰に濃縮されていることが分かる。一方、Sr-90 の飛灰中濃度と主灰中濃度の比は 0.375~1.33 であり、顕著な差はないことが分かる。Sr の融点と沸点はそれぞれ 1,042 °C、1,630°C であり、Cs の融点と沸点がそれぞれ 301°C、963°C であるのに対して 700°C 以上高温である<sup>9)</sup>。また、Sr の蒸気圧は Cs の蒸気圧より 3 桁程度低かった。Sr はアルカリ土類金属元素であ

り、焼却過程では雰囲気中の Cl 等と反応して塩化物 SrCl<sub>2</sub> 等として存在していると考えられるが、塩化物の融点や沸点は単体のそれらより高く、蒸気圧も単体のそれより低くなっていると考えられることから、焼却過程における揮発と飛灰への濃縮は起こりにくいと考えられる。

**表 3.2-29 Sr-90 と放射性 Cs (Cs-134+Cs-137) の飛灰と主灰の濃度比**

焼却施設	飛灰と主灰の濃度比	
	Sr-90	Cs-134+Cs-137
B	0.375	5.32
C	1.27	10.8
D (2011/12/28 採取)	1.33	5.83
D (2012/4/25 採取)	—	11.3
H	1.09	5.16

**(c) 焼却灰中放射性 Sr 濃度の地域的特徴**

以下の考察は試料数が少ない中で行った暫定的なものであり、今後 Sr-90 の測定事例の収集を重ねてゆく上で、より良い考察ができるようになることを最初に述べておきたい。

Sr-90 濃度と半減期が Sr-90 と比較的近い Cs-137 濃度の比は  $1.9 \times 10^{-4} \sim 7.8 \times 10^{-3}$  (平均値  $2.2 \times 10^{-3}$ ) であり、「(1) はじめに」で述べた土壌への沈着量の比 (およそ  $10^{-3}$ ) と概ね同程度であった。試料中の Cs-137 濃度を X 軸に、放射性 Sr 濃度を Y 軸にプロットしたものの図 3.2-53 に示した。Cs-137 の濃度が高くなると Sr-90 の濃度も高くなるように見えるが、近似曲線の相関係数は大きいものではなかった。

図 3.2-54 に地域毎の焼却灰中 Sr-90 濃度を示した。それぞれ採取時期が異なることに注意する必要があるが、主灰、飛灰ともに福島県中通りの焼却施設で比較的濃度が高く、福島県浜通りと千葉県焼却施設で同程度であった。土壌中の Sr-90 の分析結果によると<sup>3)</sup>、福島県浜通りおよび中通り以外での Sr-90 検出例は少なく、放射性 Cs と比較して測定事例が充分あるとは言えない。Sr-90 は放射性 Cs とは異なった物理化学的挙動を示すため、これまでの除染作業や廃棄物減容化によって発生した廃棄物についても、今後注目してゆく必要があろう。

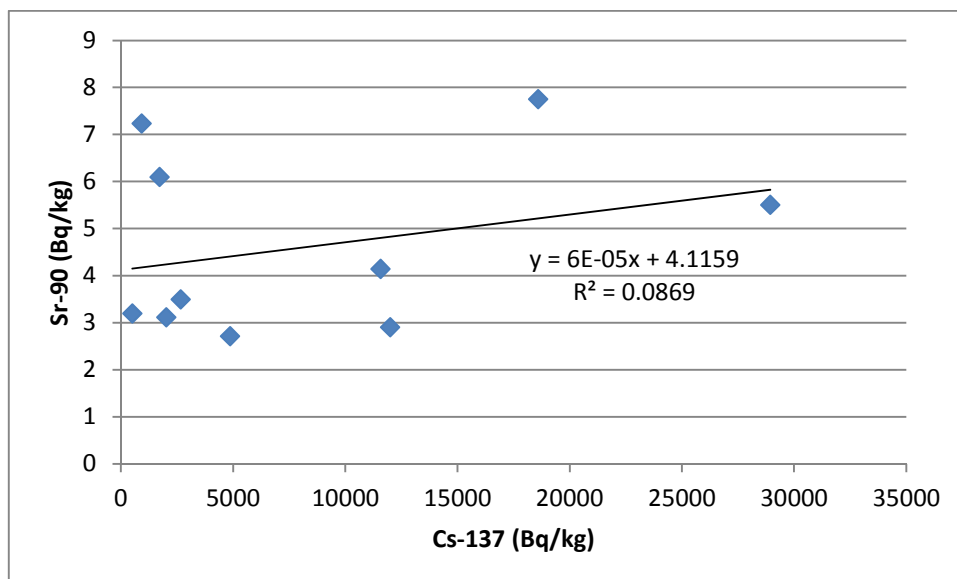


図 3.2-53 焼却灰中 Cs-137 濃度と Sr-90 濃度との関係

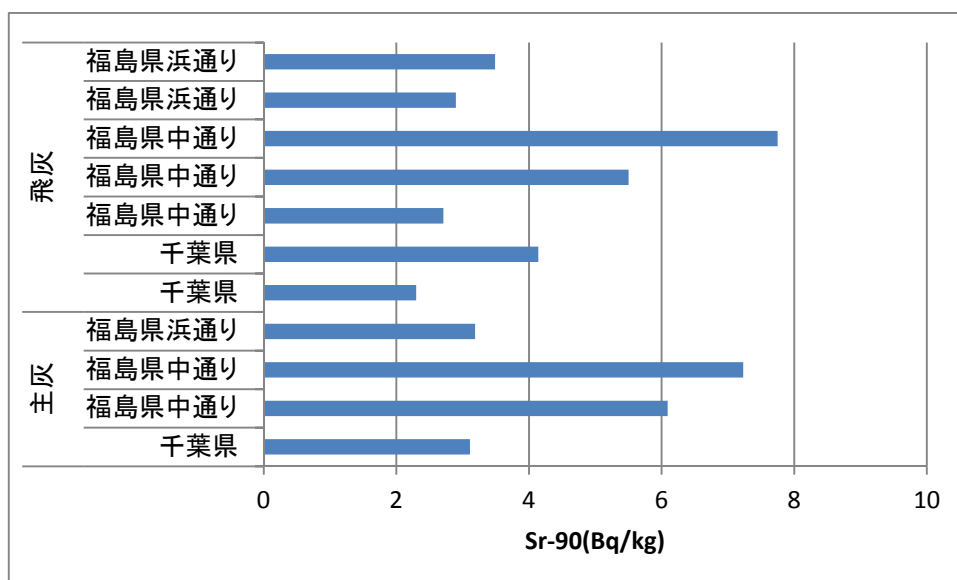


図 3.2-54 焼却灰中 Sr-90 の地域毎の濃度

#### (4)まとめ

2011年7月から2013年11月に福島県、栃木県、千葉県で採取した焼却灰14試料中の放射性Sr(Sr-90)濃度を公定法と簡易法により測定した。Sr-90濃度は2.3~7.75 Bq/kgであった。簡易法によるSr-90の測定では主灰で不検出となる例が多く、主灰に対しては適用が困難であった。放射性Cs(Cs-134+Cs-137)の飛灰中濃度と主灰中濃度の比が5.16~11.3であるのに対し、Sr-90の飛灰中濃度と主灰中濃度の比は0.375~1.33であり、焼却過程での飛灰への濃縮傾向は見られなかった。Sr-90濃度とCs-137濃度の比は $1.9 \times 10^{-4} \sim 7.8 \times 10^{-3}$ であり、土壌への沈着量の比(およそ $10^{-3}$ )と概ね同程度であった。採取時期が異なる試料同士での比較であるが、地域毎のSr-90濃度は、主灰、飛灰ともに福島県中通りの焼却施設で高く、福島県浜通りと千葉県の焼却施設で同程度で

あった。

## 参考文献

- 1) 経済産業省報道発表：放射性物質放出量データの一部誤りについて、平成 23 年 10 月 20 日、  
<http://www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/20111020001.html> (2015 年 3 月 31 日閲覧)
- 2) 文部科学省報道発表：文部科学省による、①ガンマ線放出核種の分析結果、及び②ストロンチウム 89、90 の分析結果（第 2 次分布状況調査）について、平成 24 年 9 月 12 日、  
[http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6213/24/6213\\_20120912\\_rev20130701.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6213/24/6213_20120912_rev20130701.pdf) (2014 年 3 月 31 日閲覧)
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 2－放射性ストロンチウム分析法、平成 15 年 7 月
- 4) 環境省：福島県内の焼却施設における放射性ストロンチウム及びプルトニウムの核種分析の結果について、第 13 回災害廃棄物安全評価検討会参考資料 4、  
[http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikiyouka\\_kentokai/13-mat\\_4.pdf](http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikiyouka_kentokai/13-mat_4.pdf) (2015 年 3 月 31 日閲覧)
- 5) 国立環境研究所：平成 24 年度環境中の放射性廃棄物の動態解明および放射性物質に汚染された廃棄物等の効率的な処理処分等委託業務報告書（2013）
- 6) 新潟県柏崎市報道発表：東日本大震災による災害廃棄物の試験焼却に係るストロンチウム及びプルトニウムの測定結果について（報告）、平成 24 年 12 月 21 日、  
[http://www.city.kashiwazaki.lg.jp/haiki/kurashi/gomi/shisetsu/documents/201305091616035\\_1.pdf](http://www.city.kashiwazaki.lg.jp/haiki/kurashi/gomi/shisetsu/documents/201305091616035_1.pdf)  
(2015 年 3 月 31 日閲覧)
- 7) 国立環境研究所：平成 25 年度環境中の放射性廃棄物の動態解明および放射性物質に汚染された廃棄物等の効率的な処理処分等委託業務報告書（2014）
- 8) 辰市祐久、茂木敏、井上宏：都市ごみ等に含まれる金属資源の挙動に関する研究（2）－蛍光 X 線及び ICP-MS による希少金属等の分析、東京都環境科学研究所年報、2012、70-75
- 9) 国立環境研究所：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）改訂版、平成 26 年 4 月 14 日

### 3.3 リスクコミュニケーション社会開発

#### 3.3.1 指定廃棄物処分場の立地問題に関する一考察～東日本大震災後の廃棄物処理施設の立地問題に関する一考察～仮置場の立地を例として～<sup>注1)</sup>

##### (1)はじめに

福島第一原発事故に由来する放射性物質の影響を被った地域では、住民の放射線リスクを低減するための除染活動等が進められている。除染においては放射性物質を含む大量の除染廃棄物等が発生するため、一時保管あるいは最終処分するための施設が必要となるが、これらの施設の設置に係わる反対意見の表明や住民紛争が各地域で発生しており、これらが除染作業の進捗に影響を与えている。例えば、川崎（2014）は、福島県内の市町村を調査し、汚染状況重点調査地域に指定されている40市町村等が除染を進めるうえでの課題として認識している事項は、多いものから「中間貯蔵施設の早期決定」90%、「仮置き場の確保」70%であり、「中間貯蔵施設が具体化しないために住民の不安感と不信感が払拭できず、仮置場を確保できない」<sup>注2)</sup>としている。

このような状況を踏まえ、本稿では、除染廃棄物等の保管・最終処分施設の設置過程の検証を通し、今後の災害時における廃棄物処理施設立地に際して有用な知見を得ることを目的とする。なお、除染廃棄物等の保管・最終処分に係る施設には、表3.3-1に示す、仮置場（除染）、中間貯蔵施設、指定廃棄物最終処分場等があるが、ここでは今後の災害時における廃棄物処理においても類似施設の必要性が高いと考えられる仮置場に焦点を当てることとし、除染、仮置場の設置が先行している福島県伊達市の状況をインタビュー調査により整理した。

表 3.3-1 除染廃棄物等の一時保管・最終処分施設の特徴

	仮置場（除染）	中間貯蔵施設	指定廃棄物最終処分場
規模	大小さまざま	容量：約 1,600～2,200 万 m <sup>3</sup> 敷地面積：約 16km <sup>2</sup>	各数 ha 程度（例えば、宮城県 の必要面積は約 2.5ha）
設置場所	市町村、コミュニティ単位 <b>仮置場：799 か所</b> <b>現場保管：64,308 か所</b> (福島県、H26.6)	福島県双葉町、大熊町	5 県（宮城・茨城・栃木・群馬・ 千葉）の <b>各県一か所</b>
貯蔵物	・除染で生じた土壌、草木、 落葉・枝、側溝の泥等	・仮置場などに保管されてい る除染に伴い発生した土壌 や廃棄物 ・1kg あたり 10 万 Bq を超え る放射性セシウム濃度の焼 却灰など ・いずれも <b>福島県内で発生し たものに限る</b>	・各県内で分散保管されてい る指定廃棄物（8,000Bq/kg 超の放射性セシウムを含 み、環境大臣が指定したも の） ・ <b>他県で発生した指定廃棄物 の持ち込みはなし</b>
構造	フレコンや大型土嚢に入れ、 遮水シートの上に置き、通気 性防水シートで覆う	土壌貯蔵施設（I 型） 土壌貯蔵施設（II 型 A・B） 廃棄物貯蔵施設	コンクリート壁で囲んだ地下 埋設型遮断型構造
貯蔵期間	<b>3 年程度で中間貯蔵施設に搬 入（福島県）</b>	貯蔵開始後 <b>30 年以内に福島 県外で最終処分を完了</b>	期限なし

## (2) 調査方法

福島県内で除染が先行している伊達市において、行政職員（除染業務担当）1名、市民3名（以下、「市民A」「市民B」「市民C」という。）を対象に、2014年6月から7月にかけて個別にインタビュー調査を行った（表3.3-2）。調査対象市民は市役所からの紹介であり、伊達市の除染に懐疑的な市民（市民B）、仮置場の地権者（市民C）など立場の異なる市民が含まれている。調査内容は、行政職員については、「全体の経緯」「除染、仮置場に関する経緯」「現在の除染事業」「住民の動向」等、市民については、「事故当時の状況」「放射性物質・放射能」「除染、仮置場」「行政の評価」等である。

表 3.3-2 インタビュー調査対象者

日時	場所	対象者
2014年6月20日（金） 13:00～15:30	伊達市役所	伊達市市民生活部理事兼放射能対策政策監 半澤隆宏氏 以下、「行政」
2014年7月30日（水） 11:00～13:00	小国ふれあいセンター	伊達市民 A （男性、農家、5年前に地元へ帰郷） 以下、「市民 A」
2014年7月30日（水） 15:30～18:00	保原中央公民館	伊達市民 B （女性、市の除染について懐疑的） 以下、「市民 B」
2014年7月31日（木） 10:00～11:30	C氏宅	伊達市民 C （男性、農家、最初にできた仮置場の地権者） 以下、「市民 C」

## (3) 調査結果

インタビュー調査により聞き取った内容のうち、仮置場の設置に関連する事項を抜き出して整理した結果を示す。

### 1) 除染の経緯について

- ・ 〈行政〉 小学校の除染の取り組みを受けて説明会を実施した。実際に効果があるし、放射能を生活空間から離せばいいし、住民は除染をやってくれるだろうと思ったがやってくれなかった。市役所が実施すると言っても受け入れない。市民が「やってくれ」と要望してくる普段の事業とは逆だった。理由は二つ。一つは、国と東電への怒りで、「除染とそれは別」と言っても無駄。もう一つは、「除染をして仮置場に集めると放射能が高くなって危険になる」「危険なものを作る」と言われた。「誰もいないところに集めて仮置きする」「自分の家にある放射能をそこから外に持っていくのだ」と言っても分かってもらえなかった。
- ・ 〈市民 C〉 勧奨地点の選定は7月末、モデル除染は8月、その後すぐ仮置場が決まる。当初は勧奨地点になっても（補償の話がなかったの）特に地域分断はなし。除染が始まってから補償の話が出てきて、地域の分断ということになった。
- ・ 〈行政〉 最初に10件程度の集落が除染の実施に提供してもよいということになった。仮置場も探してきてもらった。これがきっかけとなり、その周囲から「仮置場があれば除染ができ



るのか？」との認識や除染実施の興味が伝染していき、仮置場の話も含めて、放射能の高い地域から住民が「なんとかしなければ」ということになり除染事業が進んだ。

当初、除染は受け入れられなかったものの、モデル除染の実施と最初の仮置場の設置により、徐々に進み出した様子がうかがえる<sup>注3)</sup>。怒り（不信感）とリスク認知が除染の推進の阻害要因である一方、ベネフィット認知と責任感・自分事の意識が促進要因であった。

## 2) 現在の除染の状況について

- ・ 〈行政〉当初は（住民も含めて）線量が除染実施の主なインセンティブ。現在は、行政サービスをやる・やらないという話になってしまった。2011年当時と今では意識が全く違う。
- ・ 〈行政〉除染をしてほしいのは放射能を心配しているからではない。除染をやらなくていいと思っている人は過半数。心配はないが、除染という行政サービスを受けていないことに「不満」な人はたくさんいる。
- ・ 〈行政〉本来、放射能のリスクが地域間で不公平なのを公平にしたのが除染。しかし、住民の意識は、「リスクの公平」→「サービスの公平」になってしまった。
- ・ 〈行政〉中間貯蔵について、元々のリスクがそんなに高くないということが伝わっていない。中間貯蔵の話が出たときに、かえって除染の足を引っ張られた。「管理」を強調することで、除染による除去物が危険なものだと思われた。
- ・ 〈市民 B〉除染に関する A エリア、B エリア、C エリアという区分は、行政からみると合理性ということだが、住民からみたら切り捨てと思う。
- ・ 〈市民 B〉市長は C エリアを除染すると言っていたが、実際はする気がない。
- ・ 〈市民 B〉行政は「除染を安心のためにやっている」と言っている。「安心という言葉の使い方が間違っているのではないか」と思っている。
- ・ 〈市民 B〉行政は「住民は除染をやっている姿をみて安心だと思っている」と思っている。そんなことではない。そんな目で見られていると思うことで悲しくなる。

行政と市民（の一部）には、除染が進んでいるにもかかわらず、あるいは進んでいるが故に起きている認識の差がある。市民の論点（リスク）と行政の論点（公平感）に齟齬があり、かつ互いにそのことを理解はしているものの未解決であった。

## 3) 仮置場設置の経緯について

- ・ 〈行政〉除去物の自宅保管は最初からあまり考えていなかった。仮置場を作った方が合理的。後々のことを考えると、各自宅で保管していると大変なことになる。
- ・ 〈市民 C〉当事、「除染」「仮置場」は初めての言葉だった。8月のモデル除染のすぐ後に仮置場の話が出た。「遊んでいる土地があるからそこを使ってくれるのはどうか」と市職員に。山で見えない、人が通らないところ。
- ・ 〈市民 A〉C氏による土地の提供があった。集落で会議を開いて、その土地が集落で受け入れられるかどうかを確認し、皆「お願いします」ということになった。市職員が現地を視察して OK。

- ・ 〈市民 C〉 集落は、すんなり「いいよ」と賛成した。除染をすれば、自分の宅地をきれいにしてもらえる。ただし、「他の地区からはゴミを持ってくるな」「持ってきても道を通させない」ということになった。
- ・ 〈行政〉 1 個目の仮置場ができて膠着状態は緩和された。
- ・ 〈市民 C〉 土地の利用については事後承諾。借地料などの契約はずっと後。当初は、借地料がどのくらいになるのか分からなかった。2 年目くらいから仮置場の借地はこのくらいという話が出た。これで他のところもうまく進むようになった。

当初は仮置場に対するリスク認知が高く、仮置場設置は難航したが、初めの仮置場設置による「見える化」の効果、ベネフィット認知が促進要因となった。

#### 4) 現在の仮置場設置の状況について

- ・ 〈行政〉 自治会（町内会）、町内会連合会単位。単一もあれば、複数町内会で 1 か所ということもある。
- ・ 〈行政〉 仮置場ができるまでは、「反対」「危険」「危ない」という話が多いが、一旦できてしまえばそれは忘れてしまう。現在、仮置場には、今の線量が書かれているが、それだけの対応。クレームも特にない。
- ・ 〈行政〉 伊達市では仮置場は約 100 か所。今はほとんど危険だと感じておらず、もはや風景になってしまっている。実際のリスクを肌で感じて、そんなに危ないものじゃないと分かっている。中間貯蔵は必要を感じない。
- ・ 〈市民 A〉 仮置場 3 年という約束だったが、それは無理だろうと思っている。
- ・ 〈市民 C〉 下小国の方は、仮置場に隙間はない。上小国の方は、（スペースの割りにごみが少なく）隙間が多い。
- ・ 〈市民 A〉 仮置場ができてしまうと、神経質な人と、無頓着な人とが離れていく。神経質の人は、（正しいかどうかは別として）勉強している。無頓着な人は、諦めの精神もある。気になっているが話題にできない、言っても仕方ないということも。
- ・ 〈市民 A〉 文部省や農林省によって仮置場が違う。縦割りを感ずる。学校ではグラウンドに埋めた。県道、国道で仮置場が違う。農林省も違う。

（別調査によると）当初は合併前の旧町単位で数か所ずつの予定であったが、結局 100 か所になった。仮置場設置が進み、除染の制約条件とされていないところは大きな進展であるが、合理的な設置という観点では課題も残る。慣れによりリスク認知が低くなった一方、納得の他にも諦めの要素もみられる。

#### 5) 仮置場設置の進め方について

- ・ 〈行政〉 「仮置場をここに作らせてください」という説得はうまくいかない。仮置場はこういうものだ、危なくはないという話をして、現物を見てもらったが、場所探しは住民に任せた。
- ・ 〈行政〉 仮置場の場所探しについて、場所を指定して何回か失敗している。「ここはどう？」と聞くと、「もっといいところはないのか？」と言われ、どこでも反対される。

- ・ 〈行政〉 総論賛成、各論反対を役所で調整するのは難しいが、地元で調整となるとどうにかなり易い。 地元は除染をやりたいので、自分たちで考えてやらないとどうにもならない。 成功体験もあり、このように進めないといけないと思った。
- ・ 〈行政〉 説明会の経験では、30~40人いると声の大きい人に引っ張られてしまう。そのような人も、説明会終了後、役員が膝を交えて話すと分かってもらえる（さらには、町内の説明も引き受けてくれる）。
- ・ 〈行政〉 1つの町内会でも班単位に細分化して、2か所、3か所になったところもある。30件の町内会が5つ集まって1つというのものもある。それは住民の決めることで、こちらでコントロールすることではない。例えば、「町内会で1つでなければいけない」と言ったら進まない。
- ・ 〈行政〉 仮置場を決めるためには、地域の人（キーパーソン）が大切。複数の町内会で仮置場を決めることができたところは、そういう人がいたからやれた。
- ・ 〈行政〉 町内会が持っている力を発揮したのだと思う。
- ・ 〈行政〉 「他所から持ってくるな」という声が、こんなに大変になるとは思わなかった。 仮置場を決めるには大変な苦労が必要だが、他の地域から自分の所に1つに集めるとなると、「他所は苦勞してないではないか」と不公平感が募る。 プロセスの共有が大切。それが無い自治会は、（どんなに合理的と思っても）その仮置場には置けない。道路の除染も地域ごと。学校の除染は共有物なので、関係する自治会に平等に配分という話になる。
- ・ 〈行政〉 信頼関係を作ろうという意識はあった。説明会ごとに担当者が変わる、言っていることの整合が取れない、のはやめようと思った。やれないことはやれない、と一貫して言わなければならない。
- ・ 〈行政〉 普段から自分たちの地域を自分達で作っている町内会は早く仮置場を決めることができた。 一方、行政が決める、と言っていた町内会は遅い。そのような地域力の違い、それが発揮されるところと発揮されないところの違いがあった。
- ・ 〈行政〉 「中間貯蔵ができないから仮置場ができない」という理屈は全くない。 中間貯蔵ができたとしても仮置場はできないだろう。直接持って行けばよいという話になる。
- ・ 〈市民 A〉 住民の何人かは（仮置場が出来ることが）嫌だろうと思っただろうが、一番嫌なことは仮置場を作らないと除染してくれないことだったと思う。
- ・ 〈市民 A〉 最小単位の集落ごとが話がし易い。 そうでないと、自分ごとにならない。
- ・ 〈市民 A〉 「他所に持って行ってくれ」と言っても受け入れられないのは分かっていた。
- ・ 〈市民 A〉 人間対人間の問題が難しい。具体的なリスクの話はあまり出てこない。
- ・ 〈市民 A〉 仮置場をめぐる大きな問題は、「除染してほしいければ、仮置場を持ってこい」という市の高圧的な態度。順番が違う。（この地域は）たまたま土地の提供あったから仮置場ができたが。
- ・ 〈市民 A〉 「仮置場に金が出る」という話が出る前に C氏が土地を提供してくれたのはよかった（金に絡むごたごたが避けられた）。 その後、仮置場には市から補償金が出るようになった。現在、多くの仮置場は広い土地に少しのゴミしか置いていない。

従来の廃棄物処理施設立地問題の論点が表明されつつ、自区意識、責任感あるいは自分事の意

識という新たな視点が見出される。行政が住民に、責任感・自分事の意識の必要性を問うており、住民自身もまたそのことを自覚している一方、それと裏返しの排他的傾向がみられる。

#### (4) 考察

仮置場の受容モデルの検討を通して、仮置場設置問題における責任論を考察する。

##### 1) 廃棄物処理施設の受容モデル

本稿での考察の対象は、除染廃棄物等の仮置場であるが、まずは一般的な平時の廃棄物処理施設について考える。このとき、施設の受け入れに対する態度を表す「施設受容」は図 3.3-1 のようモデル化できる（秋山、2013）。ここで、「施設受容」に影響を与えるのは、施設の存在に起因する「ベネフィット認知」「リスク認知」、施設立地主体への「信頼感」、施設立地計画における「手続き的公正感」の4つの要素（要因）であり、加えて、これら4つの要素間にも、例えば、「手続き的公正感」が「信頼感」を醸成する（「+」に作用する）などの関係性があるとしている。

実際には、状況によって各要素から施設受容への影響の大きさ（パス係数）は変化する。よく言われる総論賛成各論反対、いわゆる NIMBY（Not In My BackYard）がこの典型であり、ごみ処理政策における施設の必要性を問う総論的な状況と、施設立地を想定した具体的各論の状況では、施設に対する態度を決定する要因は異なっている。前者では施設の「ベネフィット認知」が、後者では「リスク認知」が受容に最も大きく、次に「手続き的公正感」が大きく影響を及ぼす要因であるとされており、社会的判断が求められる場面が異なれば、判断を下す心理的要因も異なっている。

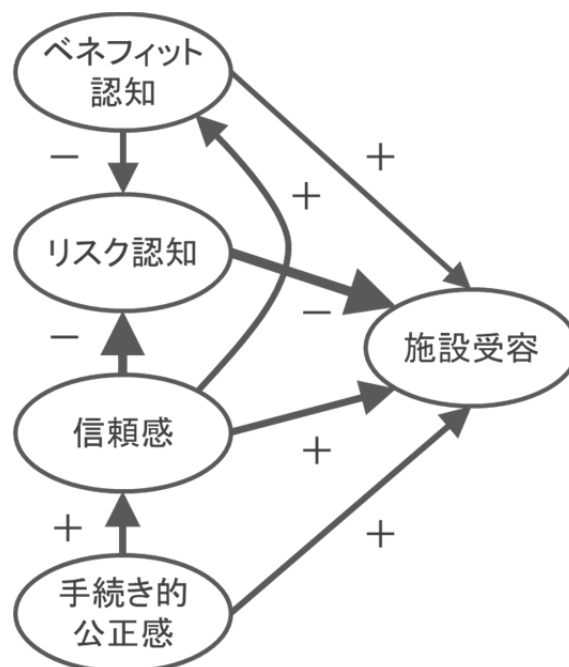


図 3.3-1 廃棄物処理施設の受容モデル（基本モデル）

## 2) 仮置場（除染）の受容モデル

除染で発生した廃棄物を保管するという性質上、仮置場に対する態度は、基本的には通常の廃棄物処理施設に対するものと同様である。すなわち、「仮置場に危険性は感じるものの、ないと除染ができないので受け入れに葛藤する」「除染の進め方に疑問があって行政に信頼がおけず、仮置場を受け入れられない」等の認識であり、これらの態度は図 3.3-1 のモデルにより理解することができる。

しかし、先のインタビュー調査の結果からは、図 3.3-1 の 4 つの要素（要因）とは異なる要素が見出される。それは、自区意識、責任感あるいは自分事とされる意識であり、以下の発言にみられる。

- ・ 〈行政〉…仮置場の話も含めて、放射能の高い地域から住民が「なんとかしなければ」ということになり除染事業が進んだ。
- ・ 〈行政〉総論賛成、各論反対を役所で調整するのは難しいが、地元で調整となるとどうにかなり易い。…自分たちで考えてやらないとどうにもならない。
- ・ 〈行政〉普段から自分たちの地域を自分達で作っている町内会は早く仮置場を決めることができた。一方、行政が決める、と言っていた町内会は遅い。そのような地域力の違い、それが発揮されるところと発揮されないところの違いがあった。
- ・ 〈市民 A〉最小単位の集落ごとが話がし易い。そうでないと、自分ごとにならない。
- ・ 〈市民 A〉「他所に持って行ってくれ」と言っても受け入れられないのは分かっていた。

これらの発言と、廃棄物分野におけるこれまでの知見を勘案すると、仮置場に関する「施設受容」は、現時点では仮説ではあるが、図 3.3-2 のようにモデル化される。これは、廃棄物処理に係わる「制度（法律等）」や地域に対する「愛着・帰属意識」が廃棄物処理の単位としての「自区意識（廃棄物）」を促し、それが「責任感（自分事）」を高めることを表現している。

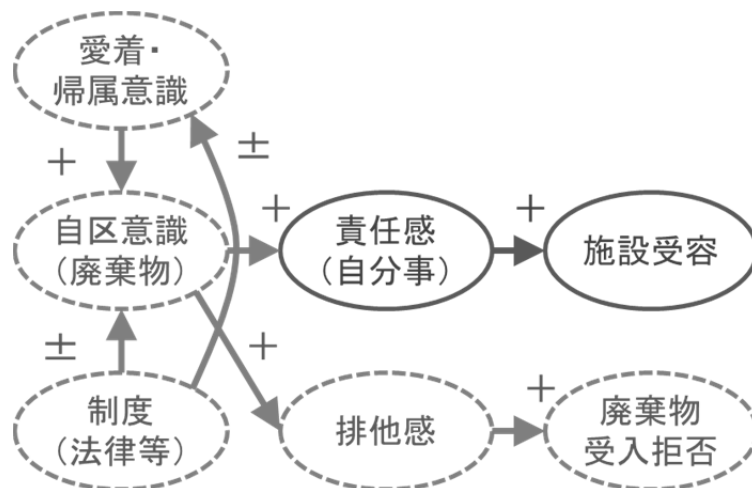


図 3.3-2 仮置場の受容モデル（追加モデル）

ただし、これは図 3.3-1 と対置されるものではなく、先の 4 つの要素（要因）に、「責任感（自分事）」から「施設受容」へのパスを付加することを意図したモデルであり、説明のため、責任感到る心理的要素を付加している。これより、仮置場の受容モデルは、最終的に図 3.3-3 のように表される。

インタビュー調査の結果からは、基本モデル（図 3.3-1）と比較して、ベネフィット認知は「大」、リスク認知は「小」、責任感は「大」であることが想定されるが、いずれも検討を要するところである。また、責任感（自分事）とその他の各要素との関係性は現時点では不明である。

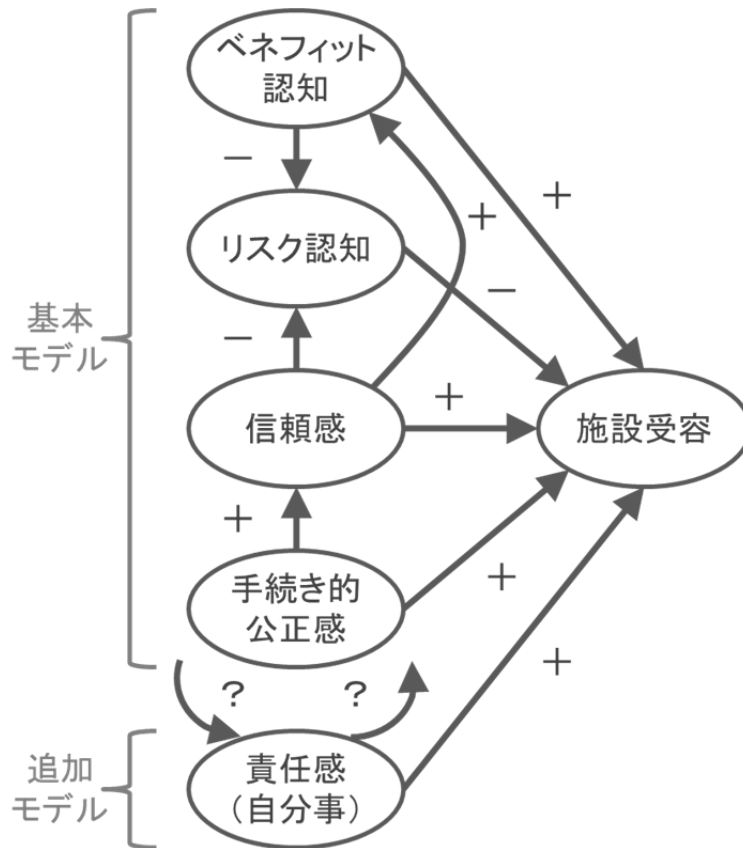


図 3.3-3 仮置場の受容モデル

### 3) 仮置場設置問題における責任論

前項では仮置場（除染）立地における責任感について言及した。平時の廃棄物処理施設立地問題においてもごみ排出者としての責任が問われることは皆無ではないが、必ずしも強調はされてこなかった。これはある意味では当然のことである。何故ならば、一般廃棄物の処理責任は市(区)町村、産業廃棄物の処理責任は排出事業者であることから、住民への説明に際して、施設の引き受け手とみなされる住民の責任を強調すれば強い反発を受けるのは自明だからである。そのため、総論では「必要性」、各論では「リスク」「手続き」が重視されてきたのである。つまり、潜在的な被害者である住民が責任を感じる動機は希薄であったといえる。加えて、施設立地問題では、同一自治体内でも施設周辺とそれ以外の地域の負担の格差が生じる、受苦圏・受益圏の問題が発

生するために、受け入れ地域にのみ責任を問うことはそもそも困難といえる。

他方、同じ廃棄物問題でも責任が前面で出る場合もある。一般廃棄物の3R（リデュース、リユース、リサイクル）促進施策導入に当たっては、ごみ排出者としての住民の責任感の自覚や意識啓発が重視される。これは、住民自身の取り組みが重要であることに加え、全ての住民に一樣あるいは応分に負担が掛かるために責任論を出し易いことが指摘できる。

このように、廃棄物問題では場面によって責任の問われ方が異なっている。それでは、現在課題となっている除染廃棄物の仮置場、さらに先をみて、今後課題となるであろう災害時の廃棄物の仮置場設置についてはどのように考えるべきであろうか。

一案としては、「(2) 仮置場（除染）の受容モデル」で見出された、自区意識、責任感あるいは自分事の意識の自覚を積極的に打ち出して住民との意見交換を行う方法がある。伊達市においても、仮置場設置が進んだ理由として借地料の存在が指摘されることから、必ずしも責任感が駆動力となるとまでは言い切れないものの、やはり自分事として理解することは対話の第一歩としては重要であるといえる。より大きな枠組みで論じるなら、廃棄物問題に限らず、住民自治の根幹の問題として捉えることが可能である。もっとも現実には、反発が大きいことが予想される。これを裏付けるように、地震や水害等を対象とした一般的な災害廃棄物処理計画に係わる弊所のヒアリング調査では、「ほとんどの自治体が発災前に周辺住民に説明しても理解を得るのが難しい」として、仮置場のリストの公開は行わない」との結果が得られている。しかし、そうではあっても、困難は覚悟しつつ、より積極的な住民との対話により責任感を醸成していくことが必要ではないだろうか。

その反面、自区意識や責任感を刺激することには短所も存在する。インタビュー調査からも、自区意識は排他感を増す可能性が指摘され（図 3.3-2）、

- ・ 〈行政〉「他所から持ってくるな」という声が、こんなに大変になるとは思わなかった。仮置場を決めるには大変な苦勞が必要だが、他の地域から自分の所に1つに集めるとなると、「他所は苦勞してないではないか」と不公平感が募る。
- ・ 〈市民 C〉「他の地区からはゴミを持ってくるな」「持ってきても道を通させない」ということになった。

等の意見に顕著である。東京電力、国への反発であれば理解されるが、同じ被害者同士においても排他感が存在するという、回避したい事態を引き起こしている。

このように、責任論を前面に押し出した立地論は危うさも抱えている。しかしながら今後の廃棄物処理施設の立地問題を考える上では避けては通れない、議論を深めることが必要な論点であると考えられる。

## (5) まとめ

本稿では、インタビュー調査の結果を踏まえ、今後の災害時の廃棄物処理において類似施設の必要性が高いと考えられる仮置場の設置について検討した。その結果、仮置場受容の促進要因として、通常はあまり強調されない論点である、自区意識、責任感・自分事の意識の重要性が見出された。このことから、困難があることは覚悟しつつ、より積極的な住民対話により責任感を醸成していくことが必要ではないかとの指摘を行った。もちろん、住民、特に今般の福島第一原発

事故においては被害者である住民の責任感を問うことには違和感や批判があると思われる。しかし、ここでいう責任感は、他の場所で「責任感・自分事の意識」「責任感（自分事）」と表現しているように、「引き受けなければいけない」というよりは「引き受ける覚悟を持つ」という意味合いであり、また、除染先進自治体の伊達市においては、行政も住民も「反対や要求をしても結局誰もやってくれない。自分達でやるしかない。」との意識があり、結局のところそれが現実を進めたとの認識は必要である。そこには怒りや諦めの感情も垣間見られるが、国が、東電が事態を解消すべきという「べき論」にこだわり結果的に現状を甘受することと、わだかまりがあっても自ら引き受け進むことを天秤にかけたうえで、後者を選んだ（ようにみえる）伊達市の意思決定を振り返ってみることは、今後も困難が伴うであろう廃棄物処理施設の立地問題を考えるうえで重要である。

## 注

注 1) 本稿は、宮城崇志（上智大学）、木村浩（NPO 法人パブリック・アウトリーチ）、竹中一真（東京大学）、堀越秀彦（(株) ペスコ）と行った福島リスクガバナンス研究の一部である。

注 2) 著者の大会口頭発表時の見解による。

注 3) 伊達市の除染の詳細は中西（2014）を参照。

## 参考文献

- 1) 秋山貴（2013）、リスクコミュニケーションの場としての住民説明会、廃棄物研究 財団・3R だより、No.85、14-18.
- 2) 川崎興太（2014）、福島県内の市町村の除染特別地域と汚染状況重点調査地域等における除染に関する課題認識、第 3 回環境放射能除染研究発表会要旨集、4.
- 3) 中西準子（2014）、原発事故と放射線のリスク学、日本評論社.

### 3.3.2 情報源と信頼度からみるリスクコミュニケーションの課題

#### (1)はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故から 3 年半が経つ。筆者はこれまで、発災直後の混乱期に飛び交った不確実な情報、過度に危険を強調した情報、デマ情報などがその後の状況判断にどのような影響を与えているのかを調査してきた<sup>1)</sup>。

メディアの報道によってリスクが広く一般に知られるようになると、リスク認知に大きな影響を及ぼし<sup>2)</sup>、リスクに対する不安が偏って増幅されることは昨年も指摘した。相対的に小さなリスクであっても、繰り返し報道されることで過度に恐れるようになる<sup>3)</sup>。インターネットや SNS が普及した現代の特徴として、ここでいう「報道」の役目を果たす媒体が増えていることもこの問題を大きくしているのではないだろうか。昨年度は、こういった過度に危険を強調した（多くは科学的な根拠がない）言説の認知度および信頼度を Web アンケートによって調査した結果を基に、初期の報道の影響が事故から 2 年半（当時）を経た段階でリスク認識にどのような影響を与えているのかを考察した<sup>4)</sup>。

本年度は、放射能や放射性物質の情報に限らず、普段の情報源として利用している媒体（人や



組織など含む)の信頼度と普段からの印象を元に、信頼される情報媒体に必要な要素を検討したので報告する。

## (2) 方法

### 1) 調査対象

株式会社インテージリサーチの Web モニターに対し、「情報の信頼度に関するアンケート」と題した Web アンケート調査を行った。調査実施期間は 2014 年 3 月 24 日～26 日。日本全国、20～60 代の男女（性別 2 区分、年代 5 区分ごとに均等割り付け、各区分当たり 200 サンプル目標）を対象とした。最終サンプル数は 2099 だった。

### 2) 質問内容および分析方法

調査項目は、情報源となる人・機関・メディア 15 項目【(1) テレビ、(2) ラジオ、(3) 新聞（インターネット版を含む）、(4) 本・雑誌、(5) インターネット（ホームページ、ブログなど）、(6) SNS（Twitter、Facebook、LINE など）、(7) 家族、(8) 職場の人、(9) ママ友・パパ友、(10) 近所の人、(11) 友人、(12) 学校や保育所の先生や職員、(13) 大学や研究機関の専門家、(14) 国の機関（学会や省庁など）の刊行物など、(15) 自治体（県や市区町村）の刊行物など】を選び、それぞれに対する**利用度**および**信頼度**を 5 段階のリッカード尺度法で尋ねた。

また、**普段からの印象**についてを 30 の形容詞【①公平である、②正確である、③速報性がある（迅速である）、④欠かせない、⑤役立つ、⑥専門性がある、⑦楽しい、⑧何度も読み返せる・聞き返せる（保存性がある）、⑨話題性がある・最先端である、⑩親しみやすさがある、⑪手に入れやすい、⑫コストがかからない、⑬分かりやすい、⑭オーダーメイドな情報・ローカルな情報が得られる、⑮双方向性がある、⑯親身になってくれる、⑰権威的である、⑱頼りになる、⑲独自性がある、⑳癒される、㉑代表性がある・多くの人の意見と同じである、㉒情報量が多い、㉓情報の更新性が高い、㉔自分の意見と同じである、㉕ブランド力がある、㉖影響力が強い、㉗誠実さがある、㉘オピニオンリーダーである、㉙便利である、㉚仲間意識を抱く】の中から選ぶ複数回答方式で尋ねた。

アンケート調査の結果の解析には、IBM SPSS Statistics Version 22.0 を用いた。

### (3) 結果および考察

6071 の調査依頼に対し、2099 の有効回答を得た。回収率は 34.6%であった。

まず、情報源 15 項目同士の関係性について、因子分析を行ったところ 4 つのグループに大別された（表 3.3-3）。情報源の中でも、人属性の項目がグループ 1 に、メディア媒体属性の項目がグループ 3 と 4 に分かれ、インターネットと SNS が非常に近いグループとなった。人と媒体の混在したグループ 2 は、公的な機関の情報源が分類される形となり、調査対象者の情報源に対する大まかな区分が、似たような媒体ごとにグルーピング化されていることが分かる。

情報源の利用度は、テレビ、インターネットを非常によく利用すると回答した割合が56%を超えていて最も高く、家族、新聞がそれに続いた（図 3.3-4）。逆に、国の機関の刊行物、大学や研究機関の専門家をよく利用すると答えた割合は極めて少なく、情報源としては活用しにくい状況にあることが伺えた。情報源を、メディア等の媒体（テレビ、ラジオ、新聞、本・雑誌、インターネット、SNS、国の機関の刊行物、自治体の刊行物）と人（家族、職場の人、ママ友・パパ友、近所の人、友人、学校や保育所の先生や職員、大学や研究機関の専門家）とに大別してみると、媒体としては、テレビやインターネット、人としては家族、ついで職場の人が良く利用されていることが分かる。

同じ結果を「全く利用しない」という回答で見ると、大学や研究機関の専門家、学校や保育園の先生や職員、国の機関の刊行物の順で回答率が高く、接触しやすさの影響が伺えた。

次に、情報源それぞれに対する普段からの信頼度の結果を示す（図 3.3-5）。家族の信頼度が非常に高く、「とても信頼できる」（26%）、「ある程度信頼できる」（48%）を合わせると74%に達した。次に信頼できるとされたのは新聞で、テレビがその後に続いた。利用度では極めて低かった自治体の刊行物、国の機関の刊行物、大学や研究機関の専門家が、信頼度で見ると低いわけではなく、信頼できないから利用しないというわけではなく、入手（接触）しやすさの差が影響しているのではないかとこの仮説がここでも支持される。信頼度の結果で「全く信頼できない」という回答が最も多かったのはSNSである。「あまり信頼できない」まで含めると、40%超の割合で、利用しやすさがある反面、匿名性も高いSNSに関しては、信頼度が低いという傾向が得られた。

今回、情報源の人カテゴリーとして、友人とママ友・パパ友を敢えて分けて考えた。自ら選んで付き合いしている友人と、子供の親同士という関係で繋がっているママ友・パパ友とは明らかに違うだろうという仮説に基づくものだが、信頼度の結果（図 3.3-5）を見てみると、ママ友・パパ友は近所の人と傾向が似ており、仮説が支持される結果となった。

メディア媒体では、利用度が非常に高かったテレビの信頼度は、「とても信頼できる」、「ある程度信頼できる」を併せて約55%と高い値を示してはいるものの、利用度が極めて高かった（「非常によく利用する」、「しばしば利用する」を合わせて80%を超える）割には、信頼度の方はそれほど高くはなかった。逆に、利用度がそれほど高くなかった新聞が、「ある程度信頼できる」まで

表 3.3-3 情報源の関係性

グループ1	(9) ママ友・パパ友 (10) 近所の人 (11) 友人 (12) 学校や保育所の先生や職員 (8) 職場の人 (7) 家族
グループ2	(14) 国の機関の刊行物 (15) 自治体の刊行物 (13) 大学や研究機関の専門家
グループ3	(3) 新聞 (1) テレビ (2) ラジオ (4) 本・雑誌
グループ4	(5) インターネット (6) SNS

含めて60%を超え、信頼度においてはテレビを逆転している点が特徴的な結果となった。ある程度検証されて精査された記事が掲載されると考えられている新聞への信頼は、日頃から比較的高いものと推察される。さらに、今回は検討していないが、自ら選んで購入する有料の情報源とそうでない情報源との違いもあるのかもしれない。

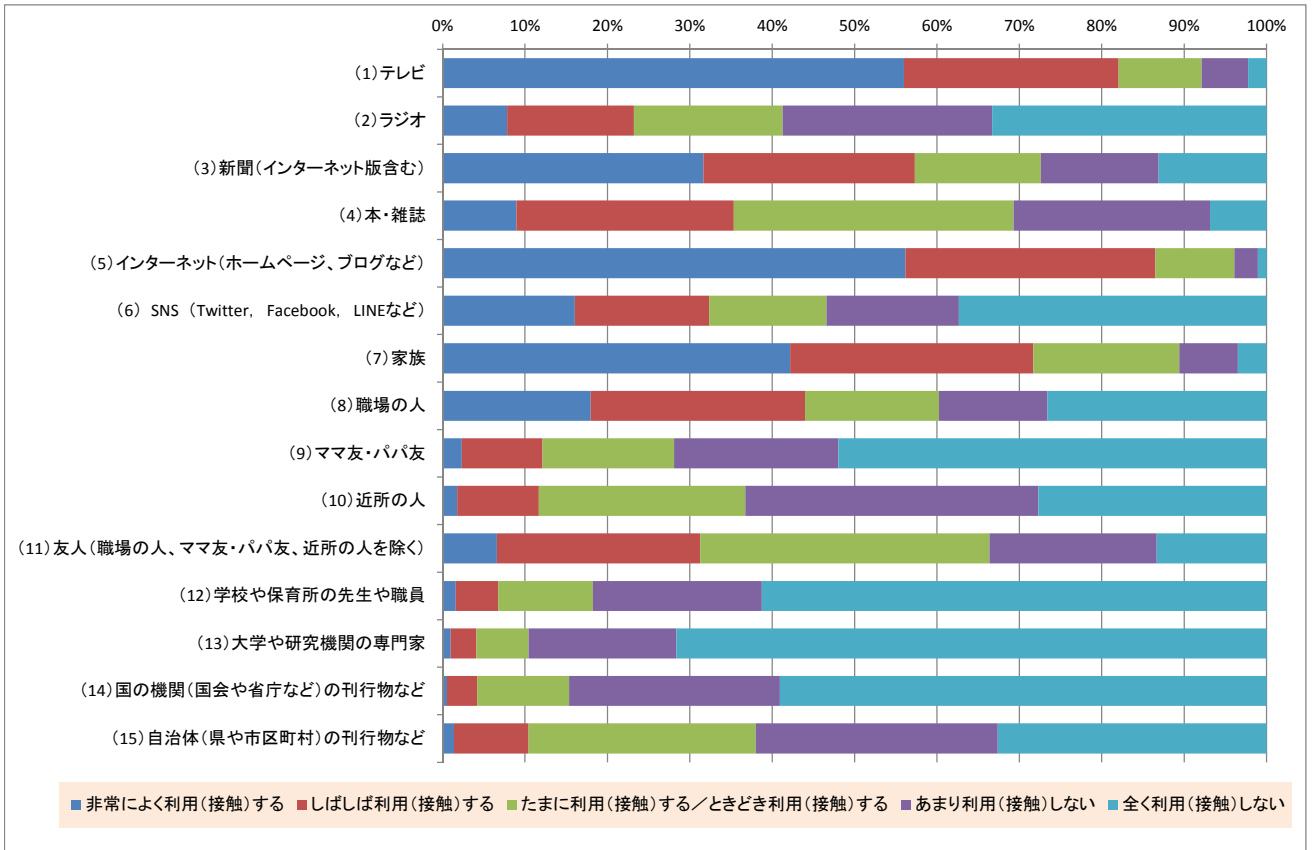


図 3.3-4 情報源の利用度

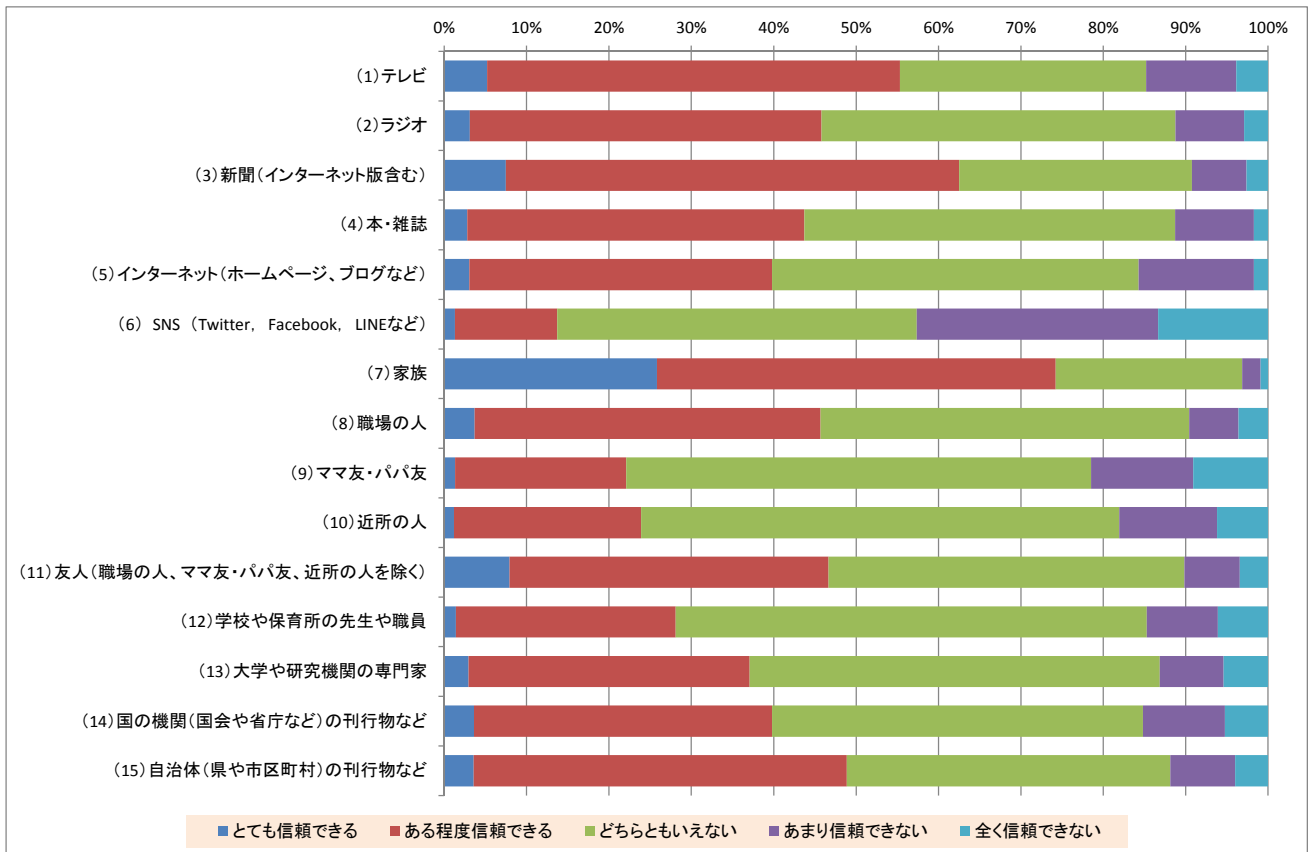


図 3.3-5 情報源の信頼度

次に、信頼度と印象との関係を、SPSS 統計解析ソフトを用いてコレスポンデンス分析を行った(図 3.3-6)。

15 項目の情報源ごとの特徴を、印象の形容詞とともに図示すると、2次元のグラフ上に合わせてプロットしている。

横軸は、自分に対して親しみがあるかどうかの関係が強く、ここでは「冷たい関係、暖かい関係」を示す「冷たい／温かい」としている。一方の縦軸は、昔から存在する手法や、堅いイメージという意味の「伝統的」と、近年多用されるようになった進歩的な手法や速報性のある流動的的手法を意味する「革新的」とに分類した。

また、これらの形容詞の分類データをもとに Ward 法による階層クラスタ分析を行ったところ、6つのグループに分かれた。6つのグループの中では、黄色とオレンジのグループが非常に近い関係にある。

同じ情報メディアの中でも、テレビ、インターネット、ラジオに対しては、便利さや速報性、更新性、情報量の多さを感じており(黄色)、SNS に対しては、それらよりももう少し娯楽性や新密度を感じている(オレンジ)ことが分かった。

新聞、本・雑誌と自治体の刊行物は同じグループ(水色)に入り、保存性、公正さ、代表性などの印象を抱いていることが分かった。

一方、国の機関の刊行物や大学・研究機関の専門家は、専門的であることと権威的であることの間点にあり、専門的過ぎて利用しづらいと感じていることが利用度の低さに影響を与えていることが考えられた。しかしながら、専門的、オピニオンリーダーである、正確性、ブランド力などのカテゴリー(ピンク)にはピタリと該当する情報源がなく、この領域の情報源の不在が示唆される。

表 1 の因子分析によるグループ分けでは、国の刊行物、大学・研究機関の専門家と同じグループに入っていた自治体の刊行物だが、印象と併せた分析では、むしろ本・雑誌と近いグループに分かれ、前者 2 項目よりも身近な存在だと感じている可能性が高い。

情報源の中でも人を示す項目の多くが入ったグループ(緑)では、双方向性であること、親しみやすさ、自分と意見が同じであるかどうかなど、より自分に近い存在であるかどうかことが重要視されていることが分かる。しかしながら、信頼度という点では、血縁関係という強固なつながりである家族を例外とすれば、緑のグループに分類される情報源がそれほど高いわけではなく特徴が見えない。当初の仮説としては、親密であることが、情報源としての信頼度に大きな影響を与えるものと考えていたがそうではなかった。

これは、市民は、身近な人からの情報であれば無条件に信頼できると考えるわけではなく、情報が複数の目により検証され公正であるという安心感のようなものが、情報の信頼度により強い影響を与えているのではないかと推察される。

以上の結果から、信頼される情報というのは、当然のことであるが、正確性や公正性などを担保した上で、個人にとって役に立つと感じられる情報でなければならないということが分かる。

不安に満ちた社会において、その不安に対してどのような情報提供が行われるかは非常に重要である<sup>9)</sup>が、情報は利用されなければ意味が無い。また、不安であればあるほど、情報源に対する不信感が少しでもあれば、その情報源は利用されにくくなる。今回の調査では、家族や友人など、日頃からの接触頻度が高く、お互いの間に既に信頼感が存在している関係性において、情報

の信頼度も高くなっていることが改めて浮き彫りになった。重ねて、自治体の刊行物や新聞など、従来からの紙媒体情報源の信頼度が高いことも明らかになった。インターネットや SNS のような新規の媒体に比べて、昔から続く慣れ親しんだ媒体であるという安心感が、情報の信頼度に何らかの影響を与えている可能性が考えられる。

さらには、大学や研究機関の専門家である我々が発信する情報は、専門性が高く正確な情報であることは誇れる点である。我々の情報が、市民にとって、利用度が高く信頼される情報となるためには、温かみと革新性を増して行くことが必要であろう。できれば、オピニオンリーダーとしての役割も担っていきたい。研究機関も、インターネットを利用したり、冊子を作成配布したり、シンポジウム等のイベントを行ったりして積極的に社会に発信する努力を行い始めている。しかしながら、相手のニーズを無視した独りよがりの発信であることも少なくない。市民の細かな情報ニーズの全てに丁寧に対応していくことは困難ではあるが、ある程度、双方向のやり取りを可能とするような情報提供を行う窓口の設置など、今後の検討課題としていくべきではないだろうか。

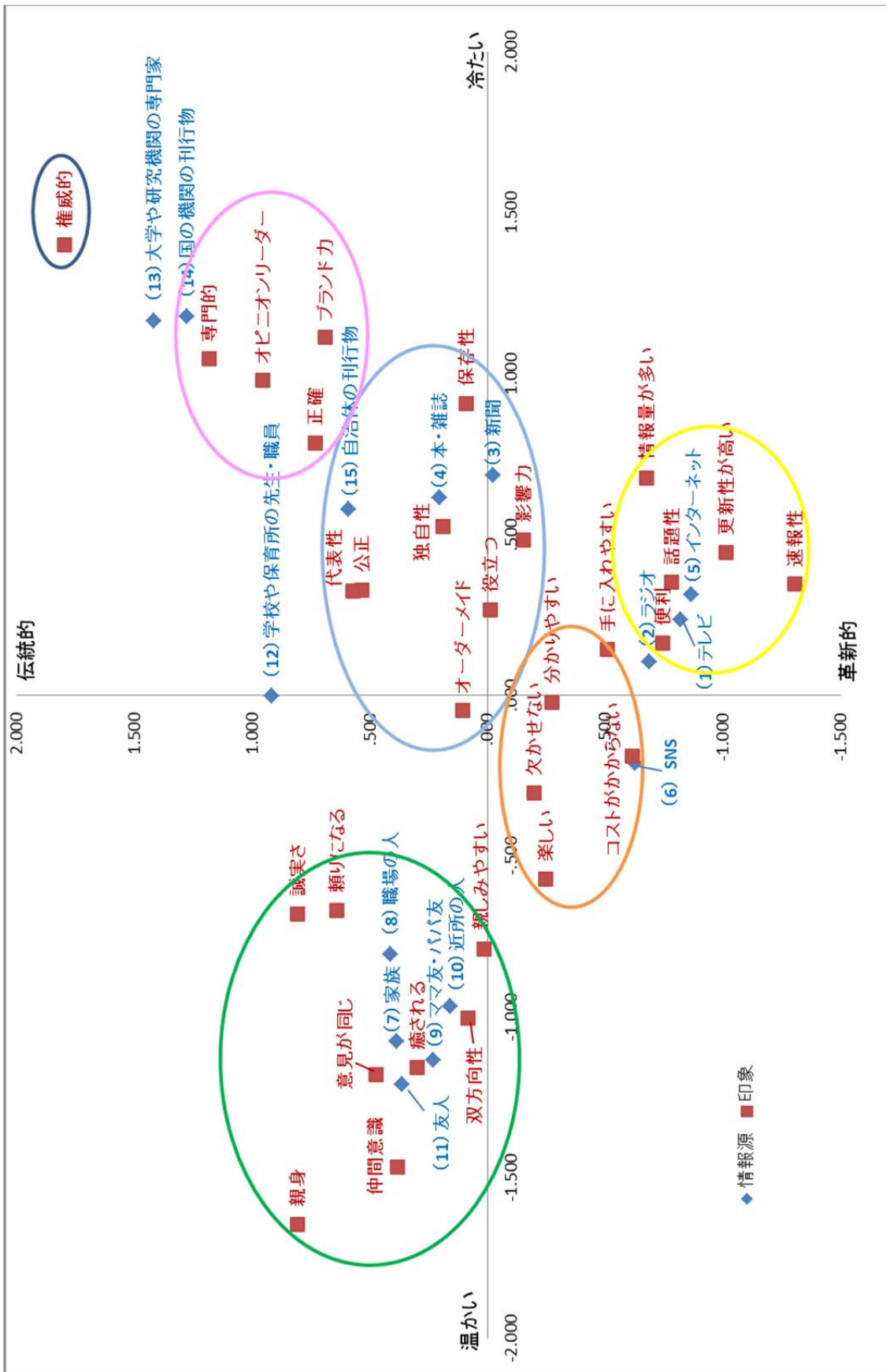


図 3.3-6 情報源の信頼度と印象との関係

#### (4) 課題

本調査は、情報源から発信される内容を限定していない。例えば環境問題に限ってみても、人々の関心は社会情勢等に応じて頻繁に変化する<sup>6)</sup>。さらに、扱われる内容によって、情報源の信頼度は大きく変わることもわかっている<sup>7)8)9)</sup>。事故直後の緊急時と、比較的状況が安定してきた現在とでは、情報源に求めるニーズも違うだろう。リスクコミュニケーションは、緊急時を抜け出した後すぐから必要となる。同時に、リスクに対する知識そのものが社会に不足している状況では、リスク教育も不可欠である。今回の福島第一原子力発電所の事故に関連した放射能問題においては、この、リスク教育とリスクコミュニケーションが混在して語られる場面が多いように感じる。

何度も言及されている通り、リスクコミュニケーションは、リスクの程度を他のリスクと比較してわかりやすく説明するだけで終わりではない。リスクコミュニケーションを行うことで相手を説得・納得させることができるという考え方も正しくない。

リスクコミュニケーションは、あくまでも相互のコミュニケーションとして成立するべき概念である。科学的な視点で数値等を交えてリスクの大小を説明するだけではなく、市民自らが、その数値の意味を知ってリスクの大小を判断し、次の行動を決断するための手助けをするものでなくてはならない。リスクの捉え方や感じ方は、人それぞれ違っている。例え確率的に死亡リスクの低いものであっても、嫌悪感が先行し、最大のリスクとして感じるケースもある。放射能のリスクについては、多くの市民にとって、まさにこのような過剰なリスク評価の状況になりつつある。

また、これもまた既に多くの人と言及していることでもあるが、リスクコミュニケーションの場面では、信頼感の醸成が非常に大切である。それには、情報の送り手側、受け手側が上下の関係ではなく、ある程度対等の立場として向かい合う必要がある。昨年度までの調査でも、身近な人からの情報がより活用される事実は、この信頼感と関係している。情報源としての価値を高めるためには、伝える情報の正確性、公平性を高めるだけではなく、伝えて側そのものの普段からの信頼度をあげるための努力も求められるのではないだろうか。

リスクのトレードオフは、市民自らが、自分なりのものさしを持ってリスクを判断することで可能になる。

不確実性の高い科学技術の領域では、このような判断を要する場面は、リスクに限定したこと以外にも起こりうる。科学コミュニケーションという広い視点でとらえた時、科学者が市民に情報を伝えていく際には、信頼感の構築も大事な視点となるだろう。情報源としての利用度（接触度）をあげていくための、情報発信の工夫については、科学コミュニケーションの課題として、これからも検討していきたい。

#### (5) まとめ

情報源の信頼度がどのような要因で醸成されるのかを調べるため、情報源となる人・機関・メディア 15 項目【(1) テレビ、(2) ラジオ、(3) 新聞（インターネット版を含む）、(4) 本・雑誌、(5) インターネット（ホームページ、ブログなど）、(6) SNS（Twitter、Facebook、LINE など）、(7) 家族、(8) 職場の人、(9) ママ友・パパ友、(10) 近所の人、(11) 友人、(12) 学校や保育



所の先生や職員、(13) 大学や研究機関の専門家、(14) 国の機関（学会や省庁など）の刊行物など、(15) 自治体（県や市区町村）の刊行物など】を選び、それぞれに対する**利用度**、**信頼度**および**普段からの印象**についてを30の形容詞の中から選ぶ Web アンケート調査を実施した。

その結果、以下のようなことがわかった。

- ・ 情報源の利用度は、テレビ、インターネットを非常によく利用すると回答した割合が56%を超えていて最も高く、家族、新聞がそれに続いた。
- ・ 国の機関の刊行物、大学や研究機関の専門家をよく利用すると答えた割合は極めて少なく、情報源としては活用しにくい状況にあることが伺えた。
- ・ 情報源の信頼度は、家族が非常に高く、「とても信頼できる」(26%)、「ある程度信頼できる」(48%)を合わせると74%に達した。次に新聞、テレビが続いた。
- ・ 利用度では極めて低かった自治体の刊行物、国の機関の刊行物、大学や研究機関の専門家も、信頼度で見るとそれほど低いわけではなかった。
- ・ SNSの信頼度は突出して低かった。
- ・ テレビ、インターネット、ラジオに対しては、便利さや速報性、更新性、情報量の多さを感じており、SNSに対しては、それらよりももう少し娯楽性や新密度を感じていることが分かった。
- ・ 新聞、本・雑誌と自治体の刊行物には、保存性、公正さ、代表性などの印象を抱いていることが分かった。
- ・ 国の機関の刊行物や大学・研究機関の専門家は、専門的であることと権威的であることの間点にあり、専門的過ぎて利用しづらいと感じていることが利用度の低さに影響を与えていることが考えられた。
- ・ 情報源としては、国の刊行物、大学・研究機関の専門家と同じグループに入っていた自治体の刊行物だが、印象と併せた分析では、むしろ本・雑誌と近いグループに分かれ、前者2項目よりも身近な存在だと感じている可能性が高いことが示唆された。
- ・ 信頼される情報というのは、当然のことであるが、正確性や公正性などを担保した上で、個人にとって役に立つと感じられる情報、身近な情報であることが求められていることが示唆された。

## 参考文献

- 1) 佐野和美、菊池誠（2012）、福島第一原発事故に関わる科学的問題を週刊誌はどのように報じたか、第25回日本リスク学会講演論文集、274-279.
- 2) 福田充(2010)、リスクコミュニケーションとメディア：社会調査論的アプローチ、北樹出版
- 3) Kasperson, R. R., O. Renn, P. Slovic, H. S. Browan, J. Emel, R. Goble, J. X. Kasperson and S. Rtick. 1988. The social amplification of risk: A conceptual framework. *Risk Analysis*, 8: 177-187.
- 4) 佐野和美（2013）、放射能についての「リスク不安と情報ニーズ」に関する調査、第26回日本リスク学会講演論文集
- 5) 中谷内一也・編（2012）、リスクの社会心理学、有斐閣
- 6) 松橋啓介、森口祐一、寺園淳、田辺潔（2000）、問題領域と保護対象に基づく環境影響総合評価の枠組み、環境科学会誌、13(3):405-419

- 7) 楠見孝、三浦麻子、小倉加奈代 (2011)、福島第一原発事故による食品の放射能汚染情報の信頼性評価(1) : 批判的思考とメディアリテラシーが及ぼす効果、日本心理学会第 52 回大会発表論文集、19
- 8) 楠見孝、三浦麻子、小倉加奈代 (2011)、福島第一原発事故による食品の放射能汚染情報の信頼性評価(3) : 大学生における 1 ヶ月毎 4 カ月後の比較調査、第 24 回日本リスク研究学会講演論文集
- 9) 楠見孝、三浦麻子、小倉加奈代 (2012)、食品放射能リスク認知に及ぼす批判的思考態度と高次リテラシー : 震災後の市民パネル調査データによる検討(2)、日本社会心理学会第 53 回大会発表論文集、372