

# 放射性セシウム含有飛灰の洗浄技術

## Washing Technology for Removing Radioactive Cesium from Fly Ash



谷田克義\*  
Katsuyoshi Tanida  
博士 (工学)



熊野 晋\*  
Susumu Kumano



上田 豊\*\*  
Yutaka Ueda



坂井義広\*\*  
Yoshihiro Sakai

福島第一原子力発電所の事故に由来する放射性セシウムを含有する飛灰から放射性セシウムを除去するとともに、飛灰から除去した放射性セシウムを濃縮する飛灰洗浄技術を実証した。その結果、飛灰中の放射性セシウムを90%以上除去でき、溶出率を大幅に低減できることがわかった。さらに最終処分場への飛灰の埋立容量を大幅に低減できた。またフェロシアン化鉄吸着材を用いて放射性セシウムを吸着処理することにより、吸着処理水の放射能濃度を10 Bq/kg 未満にするとともに、高濃度の放射性セシウムを含む廃棄物の量を1/500に減らすことができた。

The technology that removes radioactive cesium (radio-Cs) from fly ash with water and adsorbs the radio-Cs in the water onto an adsorbent was illustrated for reducing the volume of the disposals. The results showed that over 90 % of radio-Cs was removed from fly ash and the elution was dramatically decreased; therefore the volume of the disposal was dramatically reduced. Moreover, by adsorbing radio-Cs onto the ferric hexacyanoferrate adsorbent, the radio-Cs was removed. The resulting concentration of the water was reduced to less than 10 Bq/kg, achieving reduction in volume of the disposal to five hundredth.

### Key Words :

放射 性 セ シ ウ ム	Radioactive cesium
飛 灰	Fly ash
飛 灰 洗 浄	Washing out fly ash
減 容 化	Reduction of volume
溶 出 低 減	Decrease of elution
吸 着	Adsorption
R O 膜	Reverse Osmosis

### 【セールスポイント】

福島第一原子力発電所の事故に由来する放射性セシウムを含む飛灰を水で洗浄することで、放射性セシウムを90%以上除去するとともに、溶出率を大幅に低減することができる。また埋立容量も低減できる。

セシウム選択性の高いフェロシアン化鉄吸着材を使用して洗浄排水を吸着処理することで、処理水の放射性セシウム濃度を10 Bq/kg 以下にするとともに、放射性セシウムを含む廃棄物となる廃吸着材の発生量を原飛灰の1/500にできる。

洗浄排水をRO膜処理することで、飛灰の洗浄水として再利用することができ、使用水量を低減することができる。

## まえがき

2011年3月11日に発生した東日本大震災に起因する福島第一原子力発電所の事故により、放射性セシウム（以下放射性Cs）が環境中に放出された。環境中に放出された放射性Csはエアロゾルなどの形で広範囲に拡散し、降雨によって地上に降り注いだ。地上に降り注いだ放射性Csはイオン状であると考えられ、土壤に吸着されたり、草木類などに付着したりして、地上に沈着したと考えられる。放射性Csが付着した草木類を剪定あるいは除草することで放射性Csが付着したごみが発生し、これらのごみを焼却施設で焼却する過程で、放射性Csを高濃度に含む飛灰が発生した。<sup>1)</sup>

飛灰中に含まれる放射性Csは塩化Csとして含まれる。<sup>1)</sup> ナトリウムなどと同じアルカリ金属であるCsの塩化物は水に容易に溶解するため、飛灰中に含まれる放射性Csも容易に水に溶出する傾向にある。よって飛灰をそのまま最終処分すると放射性Csが溶出して再び環境中に拡散することになるため、そのままでは最終処分することはできない。特措法では、埋立処分に先立って前処理を行うこととされており、セメント固化により放射性Csの溶出

を低減することは可能である。<sup>2)</sup> しかしながら、完全に溶出を止めることはできないため、隔離層や土壤層の設置など、さらなる追加的措置を講ずることとされている。これらの措置はコストの増加や埋立容量の圧迫、作業の手間や時間の浪費に繋がる。そこで飛灰からの放射性Csの溶出をさらに大幅に低減でき、飛灰を安全に最終処分できる方法が求められている。その方法として、放射性Csの溶出性が高いことに着目し、あらかじめ飛灰を水で洗浄することで放射性Csを除去して飛灰からの放射性Csの溶出を低減する方法を検討した。

本技術を開発・実証するため、焼却施設で発生した実際に放射性Csを含有する飛灰を用いて、飛灰を洗浄する技術を確認するためのベンチテストを実施した。本報では、そのベンチテストで得られた知見について紹介する。

## 1. 飛灰洗浄技術の概要

図1に飛灰洗浄の概要を示す。以下に飛灰洗浄の各工程について示す。

### ① 飛灰洗浄工程

飛灰中には放射性Csが含まれており、多くは水に易溶な塩化Csである。そのため飛灰を水中に分

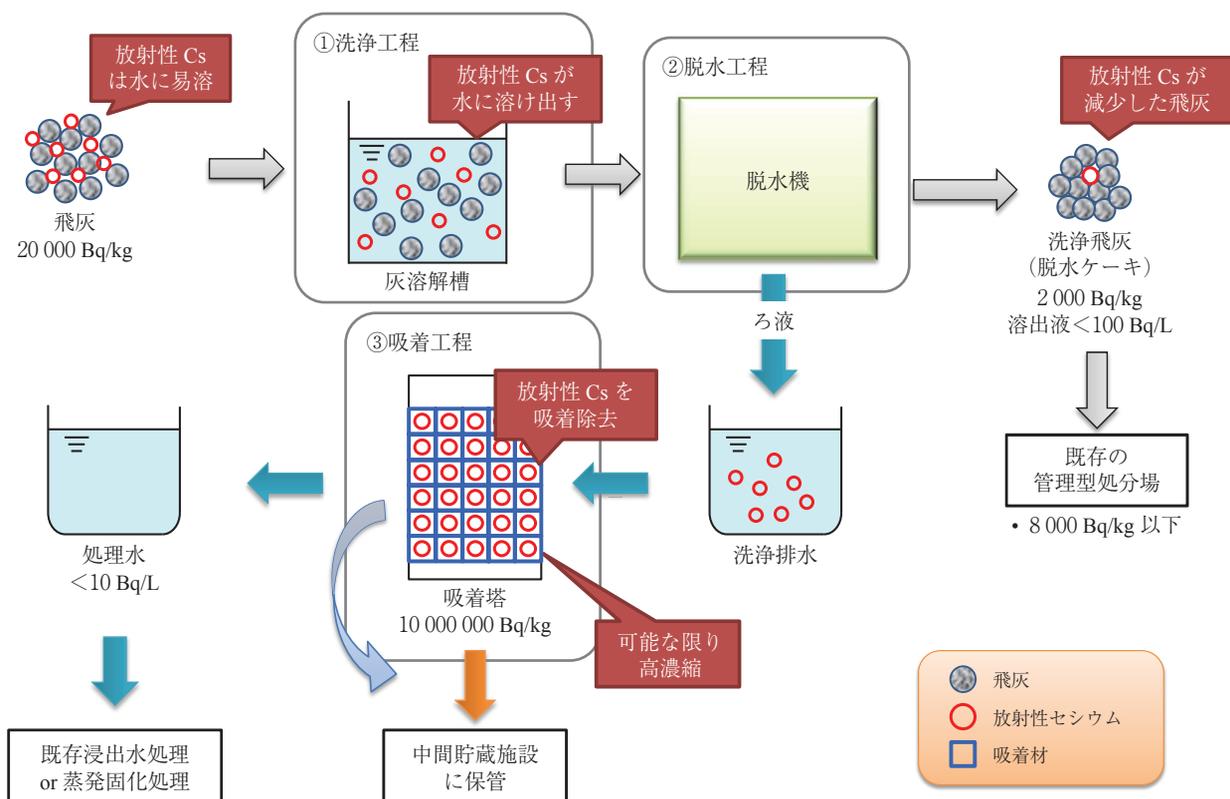


図1 飛灰洗浄技術の概要



灰溶解槽は容量が500 Lであり、飛灰成分が沈降せず効率よく水中に分散するように攪拌機を備えている。飛灰溶解はバッチ処理で行い、最大で80 kg/dの飛灰を処理した。なお灰溶解槽に飛灰を投入する際、飛灰が飛散して周辺が汚染されることがないようにした。具体的には、飛灰を取扱う場所を別部屋とし、バグフィルタを通して空気を吸引することで負圧とし、飛灰の拡散を防止した。なお飛灰を取扱う際は防塵マスクと防護服を着用して作業し、部屋の出入り時に汚染検査を実施することで、作業員の内部被ばくと放射性Csの拡散を防止した。

脱水機としてはフィルタープレスを採用した。飛灰溶解水をろ過した後、リンスを行って洗浄飛灰中の水を置換し、その後、圧搾を行った。ここで得られる脱水ろ液が洗浄排水であり、放射性Csを多く含む排水となる。

## 2) 膜装置

飛灰洗浄排水は多くの塩類を含むため、放射性Csを除去した後も放流できないケースも想定される。その場合は蒸発固化することになるが、蒸発固化にかかるエネルギーやコストを低減するためには、洗浄排水はできるだけ少ない方が良い。そのため、RO膜で洗浄排水を濃縮して減量するとともに、放射性Csを除去した水を回収・再利用する方法が有効であると考えられる。洗浄排水は最終処分場の浸

出水と性状が近いいため、RO膜として当社が最終処分場向けに販売しているDTモジュールを採用した。

図4にDTモジュールの構造、図5にDTモジュールのフローを示す。DTモジュールは、原水を膜とディスクの間を高流速で通水することにより、ファウリングやスケーリングを低減することができるため、通常のスパイラルRO膜と比較して簡単な前処理でRO膜処理を行うことができる。テストでは図5に示すように、DTモジュールの処理水を通常のスパイラルRO膜でさらに処理する2段RO膜処理を採用した。

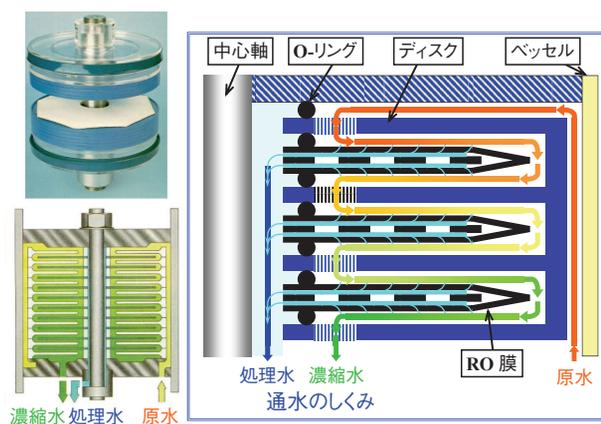


図4 DTモジュールの構造

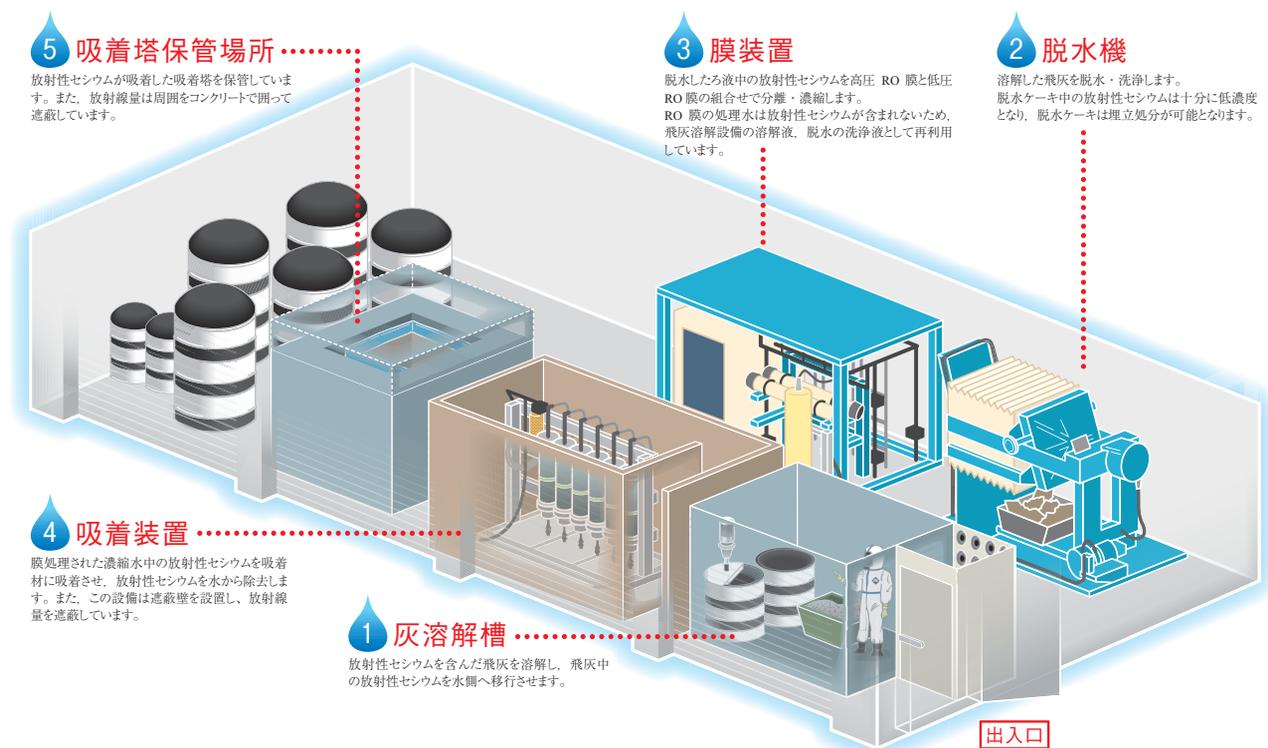


図3 飛灰洗浄ベンチテスト装置鳥瞰図

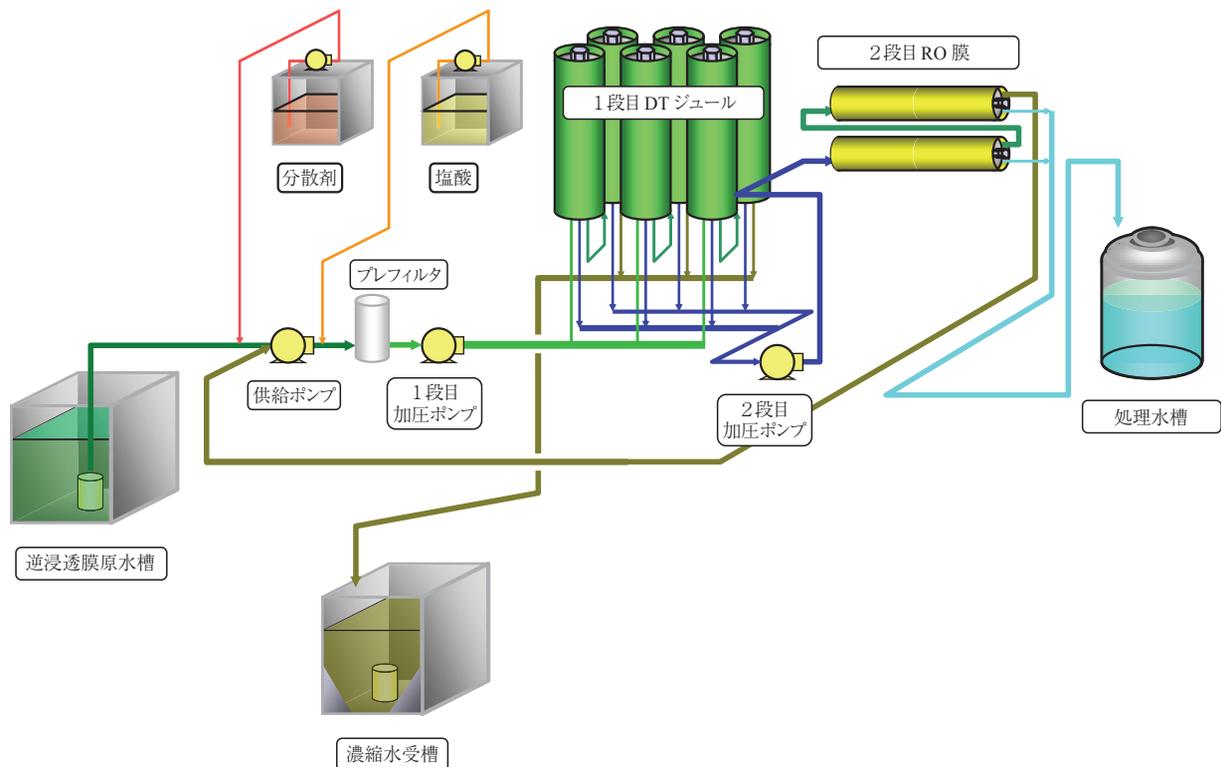


図5 DTモジュールのフロー

RO膜装置では最大で1 200 L/dの洗浄排水を処理可能であり、最大で800 L/dの2段RO膜処理水を得ることができる。なおここで得られたRO膜処理水は、飛灰洗浄水として再利用した。

### 3) 吸着装置

吸着装置は吸着材を充填した吸着塔に洗浄排水もしくはRO膜濃縮水を通水し、放射性Csを洗浄排水から除去するとともに、放射性Csを吸着材に吸着させ濃縮するための設備である。飛灰洗浄排水はセシウム以外にも高濃度に塩類を含むため、吸着処理に使用する吸着材は、セシウムの選択吸着性の高いフェロシアン化鉄（以下プルシアンブルー）を造粒した吸着材（東亜合成㈱製）とした。本吸着装置では最大で1 200 L/dの洗浄排水を処理可能である。

吸着塔内では放射性Csが濃縮されるため、吸着装置周辺は空間線量率が高くなる。そこで吸着装置の周辺に鉄製の遮蔽壁を設けて周囲への影響がないようにした。また吸着量が飽和となった吸着塔は装置から取外し、吸着装置の横に設置したコンクリート製の遮蔽壁で囲われた保管場所に移して保管した。

## 3. テスト結果

以下にベンチテストの結果を示す。

### 3.1 飛灰洗浄結果

始めに飛灰洗浄の効果を示す。

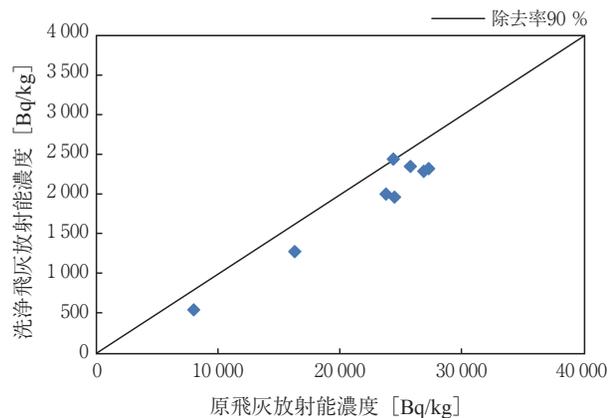


図6 原飛灰と洗浄飛灰の放射能濃度の関係

図6に洗浄前の原飛灰と、洗浄後の洗浄飛灰の放射能濃度の関係を示す。図中の実線は除去率90%の場合を表しており、全ての点の実線上あるいは下にプロットされている。これは飛灰洗浄による飛灰からの放射性Csの除去率が90%以上であることを示している。

表2に洗浄飛灰の溶出試験結果を示す。ここで溶出試験は、JIS K0058-1に従って実施した。なお表2の値はゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した値である。図6と同様に、洗浄飛灰の放射能濃度は原飛灰の放射能濃度の1/10以下であった。一方、洗浄飛灰の溶出試験における放射能濃度は、原飛灰

が28 700 Bq/kg の場合であっても100 Bq/L 未満であった。ここで原飛灰の放射能濃度が8 120 Bq/kg の溶出液濃度は検出限界未満であった。溶出試験における放射能濃度は洗浄飛灰を10倍量の水で溶解したる液であるので、洗浄飛灰から溶出した濃度は溶出液濃度の10倍である。よって洗浄飛灰からの溶出率は最大で38.5 % であるが、原飛灰に対する溶出率は3 % 未満であった。セメント固化の場合、セメント固化体の溶出率は原飛灰の溶出率の20 % 以下となる<sup>2)</sup>ので、セメント固化体からの放射性 Cs の溶出率は原飛灰からの溶出率90 % の20 % である18 % になると考えられる。この値と比較して、飛灰洗浄による溶出率の低減効果は非常に大きいことがわかる。

以上のように飛灰洗浄により、洗浄飛灰の放射能濃度は原飛灰の90 % 以下となり、原飛灰に対する溶出率は3 % 未満となることがわかった。

### 3.2 RO 膜処理結果

次に RO 膜処理による放射性 Cs の除去性と RO 膜処理水の再利用を検討した結果を示す。

図7に RO 原水と1stRO である DT モジュール処理水、2ndRO 処理水の放射能濃度の経時変化を示す。ここで放射能濃度は、放流水の排出口での監視

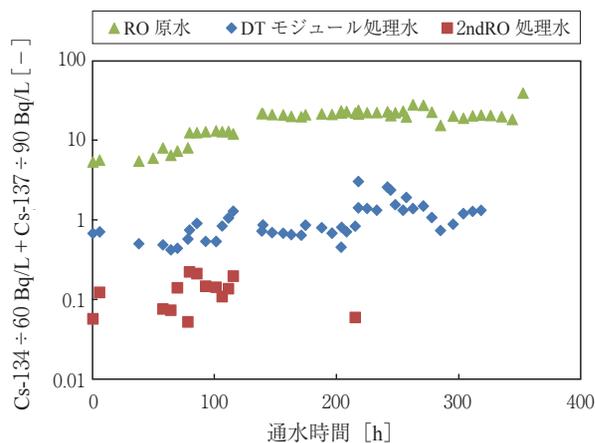


図7 RO 原水および処理水の放射能濃度の経時変化

濃度基準の算定式である  $Cs-134 \div 60 \text{ Bq/L} + Cs-137 \div 90 \text{ Bq/L}$  で換算した値を示した。

DT モジュール処理水中の放射能濃度は、 $Cs-134 \div 60 \text{ Bq/L} + Cs-137 \div 90 \text{ Bq/L}$  はおおむね 1 程度であり、洗浄水として再利用可能であった。また全ての測定点の阻止率を算出してそれらの値を平均したところ、DT モジュールのみの処理で放射性 Cs を95 % 以上除去することが可能であった。さらに2段 RO 処理により、 $Cs-134 \div 60 \text{ Bq/L} + Cs-137 \div 90 \text{ Bq/L}$  は十分に1を下回っており、監視基準 ( $Cs-134 \div 60 \text{ Bq/L} + Cs-137 \div 90 \text{ Bq/L} < 1$ ) を十分に満足する水質が得られた。

飛灰洗浄排水を RO 膜処理する場合、処理水を再利用することが使用水量の低減の観点から有効であると考えられるので処理水の再利用を実施したところ、DT モジュールのみで飛灰洗浄水として再利用できることがわかった。

### 3.3 吸着処理結果

次に吸着処理による放射性 Cs の除去性とプルシアンブルー吸着材の飽和吸着量を検討した結果を示す。

図8に吸着処理の原水と処理水の水質分析結果を示す。吸着処理の原水の放射能濃度は洗浄する飛灰

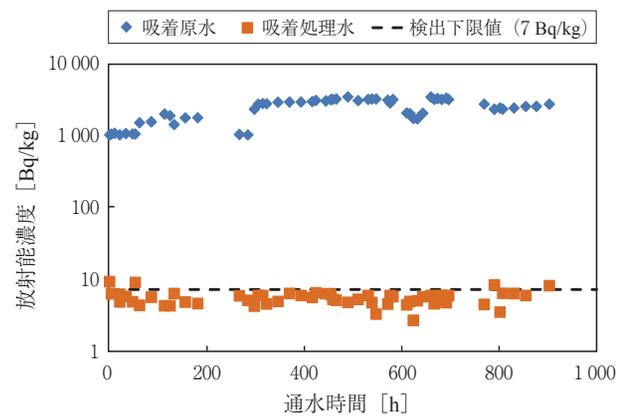


図8 吸着原水および処理水の放射能濃度の経時変化

表2 洗浄飛灰の溶出試験結果

原 飛 灰 放射能濃度	洗 浄 飛 灰 放射能濃度	溶出試験液 放射能濃度	溶 出 率	
			対 原 飛 灰	対 洗 浄 飛 灰
Bq/kg	Bq/kg	Bq/L	%	
8 120	407	<17.0	<2.1	<41.8
26 100	2 240	51.9	2.0	23.2
28 700	2 120	81.6	2.8	38.5

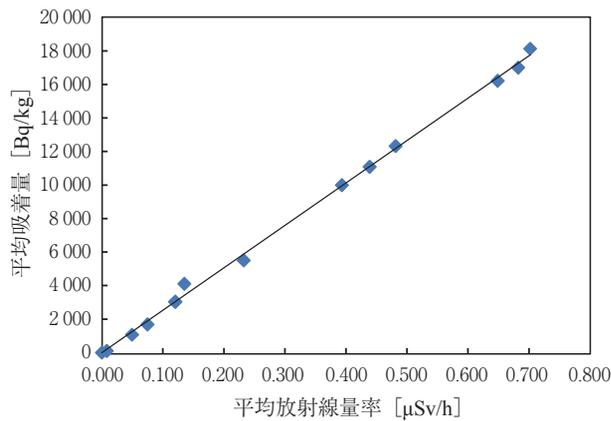


図9 平均吸着量と平均放射線量率の関係の一例

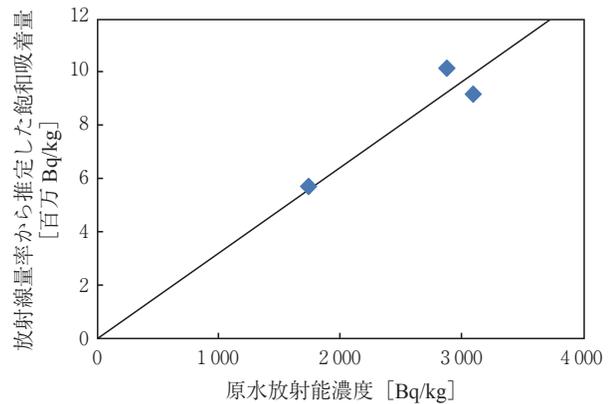


図10 原水放射能濃度と飽和吸着量の関係

の放射能濃度などにより変動し、1 000~3 400 Bq/kg の間で推移した。これに対して、プルシアンブルー吸着材で吸着処理することにより、処理水質は常に10 Bq/kg 未満であり、ほとんどは検出下限値である7 Bq/kg 以下であった。

また飽和吸着量の検討も行った。ここで吸着塔内の吸着材は非常に高濃度の放射性Csを含有しているため、安全上の理由で取出して濃度を測定することができない。そこで、吸着塔内の吸着材の吸着量は推定値を求めて評価した。吸着量の推定方法は次のとおりである。

吸着塔に流入した総ベクレル数と処理水に含まれる総ベクレル数の差は吸着塔内の吸着材に吸着した総ベクレル数であるので、この値を吸着塔内の吸着材重量で除すことにより、平均吸着量が得られる。同時に吸着塔から放出される放射線量率を吸着塔の入口から出口までの任意の位置で測定し、その平均値を求める。次に平均の吸着量と放射線量率の平均値との関係を求める。その結果の一例を図9に示す。図からわかるように、吸着量と放射線量率の平均値の関係は原点を通る一次の直線となる。よってその傾きが放射線量率を吸着量に換算する係数となる。この係数を吸着塔の任意の場所で測定した放射線量率に掛けることにより、その場所の吸着塔内の吸着材の放射能濃度を推定することができる。

吸着原水濃度と以上の方法により推定した飽和吸着量の関係を図10に示す。なお飽和吸着量とは、放射線量率が経時変化しなくなった時の吸着量とした。図から、原水の放射能濃度が上昇することにより飽和吸着量も増加し、吸着の原水濃度が約3 000 Bq/kg の時の飽和吸着量は10 000 000 Bq/kg 程度であった。よって原飛灰の濃度が20 000 Bq/kg の場合、廃棄物である飽和した廃吸着材の発生量は原飛灰の

表3 飛灰処理における二次廃棄物発生量の比較

方 式	洗 浄 方 式	セメント固化	
原飛灰条件			
処 理 容 量	10		m <sup>3</sup> /d
放射能濃度	20 000		Bq/kg
二次廃棄物発生量			
処 理 灰	7.9	10.5	m <sup>3</sup> /d
吸 着 材	0.023	-	
固 化 塩	1.3	-	
廃棄物合計	9.2	10.5	
放射能濃度			
処 理 灰	2 000	9 700	Bq/kg
吸 着 材	10 000 000	-	
固 化 塩	<100	-	
溶 出 率			
溶 出 率	3	18	%
溶出液濃度	60	360	Bq/L
埋立容量 (200 m <sup>3</sup> 単位)			
埋 立 容 量	163	347	m <sup>3</sup>
対 原 飛 灰	82	174	%
相 対 比 較	47	100	%

1/500にすることが可能と考えられる。

#### 4. セメント固化との比較

飛灰洗浄技術はセメント固化技術の代替技術と位置付けられる。そこで、セメント固化灰と洗浄飛灰の埋立容量および溶出性の比較を行った。

表3に放射能濃度20 000 Bq/kg の飛灰10 m<sup>3</sup> (フレコンバッグ10袋) を処理した際の飛灰洗浄とセメン

ト固化における廃棄物の発生量を試算して比較した結果を示す。ここでセメント固化の試算は、「平成23年度放射性物質を含む焼却灰セメント固化処理等業務」の業務説明書<sup>2)</sup>を参照した。また洗浄飛灰からの放射性Csの除去率は90%とした。

飛灰洗浄では、洗浄飛灰、廃吸着材および固化塩が二次廃棄物として発生する。一方、セメント固化はセメント固化灰が発生する。洗浄飛灰は、洗浄により溶解成分が溶出するため原飛灰よりも減量され、放射能濃度と溶出液濃度は大幅に低下する。一方、セメント固化の場合は飛灰とほぼ同量のセメントと水を添加するが圧縮するため、容量はほとんど変化しない。しかしながら、放射能濃度は原飛灰の1/2程度にしかならず、溶出液濃度も高い値である。この結果から、飛灰洗浄を行った方がより安全・安心な処理灰が得られることがわかる。

このうち、洗浄飛灰とセメント固化灰は既存の最終処分場に埋立処分、吸着材は中間貯蔵施設に保管、固化塩は産業廃棄物処理されることになる。そこで処理灰を既存の最終処分場へ埋立てた際の埋立容量を試算して比較を行った。ここで、洗浄飛灰は放射能濃度が8 000 Bq/kg未満となっているため特定一般廃棄物として埋立て処分可能とし、セメント固化物は特措法施行規則第26条第2項に従って埋立てるとした。なお埋立単位は原飛灰200 m<sup>3</sup>とした。試算結果を表3に同時に示す。

セメント固化の埋立容量は、200 m<sup>3</sup>の飛灰に対して347 m<sup>3</sup>となり大幅に増加するが、飛灰洗浄の埋立容量は163 m<sup>3</sup>と減少し、セメント固化に対しては47%となった。

以上の結果から飛灰洗浄を行うことにより、既存

の最終処分場の負荷を大幅に低減することが可能であることがわかった。また放射能濃度および溶出率も大幅に低減されるため、管理が容易になると考えられる。

## むすび

放射性Csを飛灰から除去する飛灰洗浄技術を実証するためにベンチテストを実施し、以下の知見を得た。

- ・水による洗浄により飛灰から放射性Csを90%以上除去可能であり、溶出率を大幅に低減することが可能であった。
- ・洗浄排水をDTモジュールでRO膜処理することにより、放射性Csを平均で95%以上除去可能であり、洗浄用水として再利用可能であった。さらに2段処理することで監視基準よりも大幅に低濃度とすることが可能であった。
- ・洗浄排水を吸着処理することにより、放射能濃度を10 Bq/kg未満とすることが可能であった。また廃吸着材の濃度は10 000 000 Bq/kgとすることが可能であり、高濃度の放射性Csを含む廃棄物の発生量を原飛灰の1/500とすることが可能であった。

## 謝辞

飛灰洗浄ベンチテストは、独立行政法人国立環境研究所の委託事業であり、受託者である福岡大学と共同で実施した。ここに関係各位に謝意を表します。

## [参考文献]

- 1) 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 第三版）（2012）
- 2) 環境省：「平成23年度放射性物質を含む焼却灰セメント固化処理等業務」業務内容説明書（2013）

\*技術開発センター 水・汚泥技術開発部 水処理室 \*\*水環境事業部 MER 技術部