

**【3K153015】 焼却主灰中の難溶性セシウムが結晶表面の非晶質相に濃集する機構の
解明とその応用 (H27-29 11, 326 千円)**

研究代表者 東條 安匡 (北海道大学)

1. 研究開発目的

焼却主灰中の難溶性 Cs は、Al、Si、O から構成される結晶粒子表面の非晶質相に存在しており、その結果、難溶性となっている。本研究では、その機構解明と応用を目指して、以下の3つの検討を実施することとした。

- 1) Cs が濃集している非晶質の中心に存在する鉱物の特定：Cs を捕捉する非晶質の中心に存在する結晶が何かをまず明らかにする。Cs を濃集している粒子を主灰粒子群から抽出し、様々な機器分析によって中心の鉱物種を同定する。さらに非晶質相の Cs の化学状態を明らかにする。
- 2) Cs を捕捉する元となった鉱物の由来の検討：本鉱物は元々、被焼却物中に存在していたのか、それとも焼却過程の高温条件下で合成されたものなのかを明らかにする。本検討から、減容化熱処理過程において、鉱物として添加すべきか、鉱物を形成する原料を添加すべきかが明らかになる。
- 3) 可燃性除染廃棄物の処理と Cs 濃縮法の提案：可燃性除染廃棄物の処理を想定して、有機系廃棄物に安定 Cs を添加し、その燃焼場に、上記の検討から明らかになる Cs を特異的に捕捉する無機鉱物を介在させた燃焼実験を行う。Cs の分配を把握するとともに、Cs が結晶粒子表面に捕捉可能であることを確認する。

上記3つの検討を当初設定したが、加えて、以下の3点を追加の検討事項とした。

- 4) ハロゲンの存在が Cs の捕捉に与える影響の検討、5) 特定した鉱物の Cs 捕捉率向上のための前処理手法の検討、6) Cs を含む飛灰を対象とした Cs の捕捉・難溶性態化、すなわち、検討対象を可燃性除染廃棄物のみでなく、指定廃棄物（特に塩化セシウムを含む飛灰）中 Cs の捕捉・難溶性態化へも拡大した。

2. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

本研究では、放射性 Cs に汚染された焼却残渣のうち、主灰に含有される Cs の溶出性が低いことに着目し、特に、主灰中で Cs を捕捉している結晶鉱物を明らかにすること、そしてその鉱物を用いて、現在も処理が続いている可燃性除染廃棄物や指定廃棄物の焼却飛灰に応用し、Cs を移動性の低い難溶性態として捕捉する技術について検討した。主な科学的意義は以下のとおりである。

- ・ 焼却主灰中にて Cs を濃集している粒子を数千粒の中から抽出し、各種の微視的分析手法を用いて解析し、それらがアルカリ長石（主に微斜長石 KAlSi_3O_8 で曹長石 $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ も共存）である事を同定した。

- ・ 確認のためにアルカリ長石に Cs を添加し、加熱した結果、主灰と同じ Cs の捕捉と難溶性態化が起こることを再現し、Cs の捕捉・難溶性態化を意図的に起こせることを証明した。
- ・ アルカリ長石合成材料 (SiO₂、Al₂O₃、K₂CO₃) と Cs の共加熱試験によって、主灰で確認されたアルカリ長石の由来を検討し、主灰で Cs を捕捉していた長石は元から被焼却物中に存在していたことを確認したほか、アルカリ長石合成材料でも加熱条件下で Cs の捕捉は高い効率で起こること、そしてその捕捉はフッ酸でなければ抽出できないほど強固であることを見出した。
- ・ アルカリ長石、アルカリ長石合成材料を可燃性廃棄物の熱処理の場に共存させれば、Cs は揮発抑制され、難溶性態が増えることを明らかにした。
- ・ 本現象は Cs が塩化物であっても通用し、長石合成材料では 700°C が捕捉・難溶性態化に適した温度であることを明確にした。また、廉価な窯業用のインド長石であっても、長期粉砕により非晶質化させれば、CsCl でも Cs の捕捉率は向上可能なことを示した。
- ・ CsCl を含む飛灰については、非晶質化インド長石で飛灰の 9 倍量、長石合成材料 (ゾル) では飛灰の 4 倍量添加で、Cs の 9 割を捕捉・難溶性態化可能であることを示した。

いずれも既往の研究には無い知見であり、これからも進む除染廃棄物や指定廃棄物の加熱減容化処理に応用できる可能性がある。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

現在、除染廃棄物や指定廃棄物の仮置場から中間貯蔵施設への移送、さらに今後の最終処分を見据えた各種処理事業が進められている。これらは今後 30 年間続く重要な国家事業である。最終的な処分先の確保が難しいことから、2000 万 m³ を超える除去土壌や指定廃棄物の減容化は必須と国は考えている (環境省：中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略、平成 28 年 4 月)。減容化に伴って Cs が高濃度に濃縮する処理物が発生するが、現在示されている方針は鋼製容器に格納した上での厳重な容器構造を有する構造物への保管・処分である。Cs の問題は放射能であり、十分な減衰を起こさせるための距離や遮蔽物を設け、「保管場所に確実に保持させる続けること」が求められる。この時、易溶性のまま Cs を限られた寿命の容器に保管することを選択するのか、吸着剤等で保持させてから保管するのか、戦略は様々に存在する。本研究は、長期保管においては Cs の移動性を低下させることが安全を保証するために最重要と考え、Cs の

難溶性態化について検討した。まだ実用化等の段階には至っていないが、アルカリ長石による Cs 捕捉機構は極めて強固であり、極めて特殊な環境条件（極低 pH 等）でなければ溶出は起こらない。そのため、今後、長期保管戦略で Cs の移動性を低下させることが重視されるようになった場合に、それを実現する有用な技術オプションとなることが見込まれる。

3. 委員の指摘及び提言概要

福島県内の土壌中の放射能を効率よく低減し、かつ安全に Cs を固定するための課題を解決する非常に重要な研究である。焼却主灰中でセシウムを捕集している物質がアルカリ長石であり、さらに、セシウムが塩化物態でもアルカリ長石によって捕集できることを示すなど Cs の固定化機構を類推し、効率的に固定化する方法まで提案しており、実務的にもある程度評価できる。これらの成果は、除染廃棄物や指定廃棄物の焼却処理による減容化につながると考えられ、学問的ばかりではなく行政的貢献も大きいと考えられる。一方で、理論的な解析に置いてまだ検討の余地がある。

4. 評点

総合評点：A