

放射性汚染物質の減容化に伴うセシウム排出挙動実証試験

Experimental study on cesium extraction during volume reduction of radioactive contaminants

水循環・まちづくりグループ 研究員 立田潤一郎

研究参与 竹村公太郎

2011年度以降、放射性物質を含んだ農産物残渣、森林残渣、瓦礫等の安全な処理ニーズが高まっている。そこで本研究所では、2011年度以降、Cs等の放射性物質を含んだ廃木材、農業残渣、間伐材などを、窒素雰囲気下での熱分解方式を用いた炭化減容化処理の実証的研究に取り組んできた。

本年度は、Cs134、Cs137を含む別の試材を用いて窒素雰囲気下での熱分解実験を行い、実験過程でのCs134、Cs137の気化によるシステム外への排出状況、タール水やスクラバー水への溶出状況を評価することを目的として、公益財団法人 原子力バックエンド推進センター、株式会社 EEN とともに研究を実施した。

本論文の構成としては、1. で本研究の背景と目的を設定し、2. で既存研究としての竹村(2011)による実験成果の成果と課題を整理した後、3. では本研究の方法として、試験の手順、放射線量の測定方法をフロー図や模式図を交えて説明し、4. では本研究の結果として、空間線量率、Cs濃度の測定結果を整理し、最後に5. で本論のまとめと今後の課題を整理検討した。

キーワード：低温熱分解、炭化減容化、放射性物質

After 2011, more and more processing needs are seen for safe processing of residuals from agriculture and forestry as well as debris and others that contain radioactive substances. At this institute, we have been conducting experimental study of carbonization volume reduction of residuals with radioactive substances such as cesium from wood materials, agricultural residues, thinning and others, using pyrolysis process under a nitrogen atmosphere.

This year we, with Radwaste Decommissioning Center and EEN Co., Ltd., conducted pyrolysis experiment under a nitrogen atmosphere on other material that contains cesium 134 and 137 in order to evaluate extraction status of cesium 134 and 137 by vaporization out of the system and dissolution of them into tar-water and scrubber-water.

This paper consists of five parts, aiming to 1. introduce background and sets objectives, 2. discuss past research of Takemura (2011)'s experimental results and issues, 3. provide experiment procedure and explains radiation measurements by flows and diagrams, 4. show ambient air dose rates and cesium concentration results, and finally 5. discuss summary and future issues.

Key Words: low temperature pyrolysis, carbonization volume reduction, radioactive substance

1. 本研究の背景と目的

2011年度以降、放射性物質を含んだ農産物残渣、森林残渣、瓦礫等の安全な処理ニーズが高まっている。そこで本研究所では、2011年度以降、Cs等の放射性物質を含んだ廃木材、農業残渣、間伐材などを、窒素雰囲気下での熱分解方式による炭化減容化処理の実証的研究に取り組んできた¹。

竹村(2011)では、福島県終末処理場の下水汚泥の熱分解処理で、容積及び体積が約1/8に減少した一方で、試料のCs134、Cs137の濃度が約1.5倍程度にしか上昇しないという結果を得た。さらに放射線量率の測定結果から、熱分解過程において、Csの気化による装置外への排出、乾留物への溶出の痕跡がなかった。しかし、スクラバー水への溶出状況に関しては、分析がなされなかった。

そこで本年度は、Cs134、Cs137を含む別の試材を用いて窒素雰囲気下での熱分解実験を行い、実験過程でのCs134、Cs137の気化によるシステム外への排出状況、タール水やスクラバー水への溶出状況を評価することを目的として、公益財団法人 原子力バックエンド推進センター、株式会社EENとともに研究を実施した。

本論文の構成は、既存研究としての竹村(2011)による実験の成果と課題を2.で整理した後、本研究の方法を3.で、本研究の結果を4.で、本論のまとめと今後の課題を5.で説明する。

2. 既存実証実験の結果概要

竹村(2011)は、2011年5月28日に、福島市などの協力を得て、公共下水道堀河町終末処理場で放射性物質を含んだ下水汚泥の標本として、約3kgを採取した。

2011年6月7日、8日に、窒素雰囲気下での熱分解方式による炭化減容化処理を行い、熱分解の前後での空間線量率を、トレイ上、クーラーボックス内で測定する実験を行った。

トレイ上での測定は、標本を積んだトレイの中央部に線量計を設置した場合をケースA、トレイの片隅に線量計を設置した場合をケースBとして、実施した。結果は表-1で整理した通り、体積の74%減少、質量の88.1%減少が見られた過程で、空間線量は、ケースAでは29.8%増、ケースBでは16.7%増に留まるという結果となった。

クーラーボックス内での測定は、熱分解前の試料を入れたクーラーボックスを開けた時、熱分解後の試料を入れたクーラーボックスを再度開けた時に行った。結果は表-1で整理した通り、空間線量率が55.4%増

に、ケースAでは29.8%増、ケースBでは16.7%増に留まるという結果となった。このように炭化した試料の放射性濃度の上昇が抑えられたといえる。

表-1 熱分解前後の空間線量率などの測定値

	熱分解前の汚泥	熱分解後の汚泥	熱分解前後の比率
重量	2,650g	315g	11.9%
体積	2,000cm ³	520cm ³	26.0%
空間線量率 ケースA	12.1μSv/h	15.7μSv/h	129.8%
トレイ上 ケースB	6.5μSv/h	7.6μSv/h	116.7%
空間線量率 クーラーボックス内	17.7μSv/h	27.5μSv/h	155.4%

(注)竹村(2011)による分析結果。

熱分解過程で、Csの気化によるシステム外への排出状況、Csの乾留液への溶出状況を把握するため、排ガスや装置の開閉部及び乾留液の線量率を測定した。

熱分解装置排気口の排ガスの線量率は、熱分解装置の炉内温度により、図-1の通り、若干変化が見られたが、ほぼ大気中と同様の数値を示した。また、熱分解中の装置開閉部、熱分解中に発生した乾留液の線量率は、0.14μSv/h、0.11μSv/hであり、大気中と同程度の数値であった。

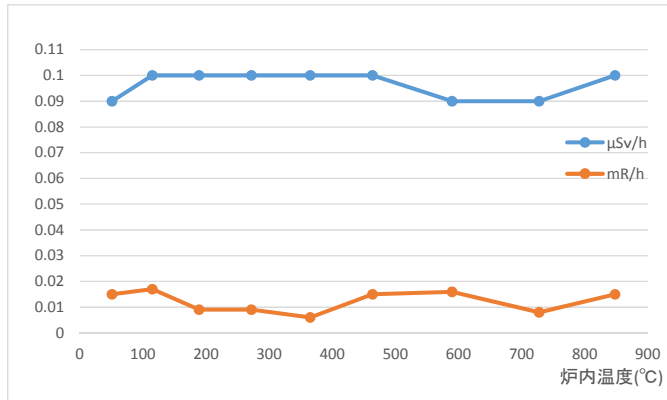


図-1 排ガスの空間線量率の測定値

(注)竹村(2011)による分析結果。

この熱分解により生成した下水汚泥の炭化物は、翌2012年3月16日に、中外テクノス株式会社関東環境技術センターにて、放射線量の測定及びセシウム溶出の試験を実施し、結果は表-2の通りとなった。

下水汚泥の炭化物のCs濃度は、合計で192万Bq/kg

¹ 窒素雰囲気下での熱分解システムの用途、特徴、実績、応用

可能な分野に関しては、竹村・立田(2013)を参照されたい。

となった。また、この減容化された下水汚泥の炭化物の Cs 溶出率は 1.4% という試験結果を得たが、これは一般焼却の副産物である飛灰や焼却灰の Cs 溶出率 20%~80% と比較すると著しく低い。

表-2 下水汚泥炭化物の Cs 濃度、Cs 溶出率

Cs ₁₃₄ 濃度	82万Bq/kg
Cs ₁₃₇ 濃度	110万Bq/kg
Cs 合計 濃度	192万Bq/kg
Cs 溶出率	1.40%

(注) 中外テクノス(株)の分析結果による。

3. 本研究の方法

3-1 試験の手順

本研究は、図-2 のフロー図で示した手順で実施した。なお、空間線量率、Cs 濃度の測定は、公益財団法人原子力バックエンド推進センター(RANDEC)の梶谷氏の指導の下、実施した。また、システム全体における放射線量率、Cs 濃度測定のための標本採取の箇所、測定位置は図 3 で示した。実験手順の詳細は以下①~⑧に示す通りである。

① 標本の母集団採取

2013 年 10 月に福島県双葉郡浪江町井手において、福島第一原発事故により空中拡散しフォールアウトした放射性物質が付着した木枝、落葉を採取し、第 1 回目試験の試料の母集団とした。

② 第 1 回目の熱分解実験前の試料表面、装置周辺の空間線量率の測定

第 1 回目の熱分解実験前に、試料表面、熱分解装置周辺の空間線量率を測定した。標本表面の測定時には、周辺の放射能の影響を鉛コリメータで排除した上で、ヨウ化ナトリウム(NaI)シンチレーション検出器²を用いて実施した。

③ 第 1 回目の熱分解実験

第 1 回目の試験として、既に採取した木枝、落葉 8.76kg を EE21 装置³に投入し、熱分解実験を異なる温度で実施した。

窒素雰囲気下での熱分解炉の運転は、まず試料の水分を蒸発させるため、約 200~250°C で約 2 時間行われた。その後、約 350°C で約 1 時間運転した。350°C の熱分解実験過程で、セルロース、リグニンに含有する炭素、窒素、水素、酸素が熱分解し、ガス化したと考えられる。その後、約 650°C で数十分行った。この 650°C は、セシウムの沸点 678°C に至らない限りにおいて、最大限の減容化が発揮される程度の温度として、設定したものである。

④ 第 1 回目の熱分解実験後の試材や装置周辺の空間線量率、試材や副産物の Cs 濃度の測定

第 1 回目の熱分解実験後に、試料表面、熱分解装置周辺の空間線量率を測定した。②と同様に、鉛コリメータ及び NaI シンチレーション検出器を用いて、実施した。

また熱分解後の炉内残留物、熱分解実験過程で発生したスクラバー水及びタール水を採取し、Cs 濃度を測定した。測定時には、ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリを用いて、実施した。

⑤ 第 2 回目の熱分解試験のための標本の母集団採取

上記 650°C の熱分解後の残余物 3.86kg から、未炭化部分を除去し、2 回目の熱分解試験の試料の母集団とした⁴。

⑥ 第 2 回目の熱分解実験前の試料表面、装置周辺の空間線量率の測定

⑤の残余物内の炭化部分から、空間線量率の測定用に 250g を採取した 2 回目の実験用の試料及び熱分解装置周辺の空間線量率を、②と同様に測定した。

⑦ 第 2 回目の熱分解実験

⑤の試料の母集団から未炭化部分、実験前測定用の 250g の炭化部分を除いた残余炭化物 850g を EE21 装置に投入し、炉内の温度を 600°C、900°C まで上昇させた窒素雰囲気下で熱分解を実施した。

炉内を窒素雰囲気にし、常温から窒素ガスを投入し、約 4 時間半、窒素雰囲気加熱を継続した後、600°C で 1 時間運転し、次に 900°C で 2 時間運転した。その後、電源を停止し、冷却プロセスへ移行した。

⑧ 第 2 回目の熱分解実験後の試材や装置周辺の空間線量率、試材や副産物の Cs 濃度の測定

² 株式会社同位体研究所によれば、NaI シンチレーション検出器は、検出器に放射線が入った際に生じる発光をヨウ化ナトリウム結晶検出器で検出するものであるため、γ 線の検出感度に優れ、迅速な検査を可能とする点に技術としての特徴があるとされる。この装置はゲルマニウム半導体検出装置と比較し安価であり、設置場所にも困らないため、農産物の倉庫や集荷施設、屋外などで広く利用されている。また、汚染現場や作物の集荷施設などのスクリーニング検査にも適していると考えられている。

³ 下水汚泥やガレキ、生ゴミ等の一般廃棄物、食品製造残渣、

プラスチック類、電気製品、繊維製品、廃材、自動車廃棄物等、汚泥、漁網等を用いて、窒素雰囲気下での熱分解方式により炭化減容化する装置であり、①熱分解過程でダイオキシンや CO₂ などの酸化物を排出しない、②発生するタールが分離可能である、③生成炭素の高発熱量を有すなどの特徴がある。

⁴ 減容化率が低調になったのは、650°C での熱分解時間が短かったためと考えられる。セシウムの沸点を意識せず、温度を上げて熱分解を行ってれば、減容化率は上昇していたと考えられる。

第2回目の熱分解実験後に、試料表面、熱分解装置周辺の空間線量率を測定した。②と同様に、鉛コリメータ及びNaIシンチレーション検出器を用いて、実施した。

また熱分解後の炉内残留物、熱分解実験過程で発生したスクラパー水は中和槽にて、タール水は液化物回収槽にて採取し、Cs濃度を測定した。測定時には、④と同様に、ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメ

トリを用いて、実施した。

また、熱分解過程で試料から気化したガスを評価するため、排ガスの大気放出管のバイパス経路（中和槽における出口配管部）の空間線量率を測定するとともに、同配管内にケイ酸繊維円筒ろ紙を設置した上でガスを採取した上でCs濃度を測定した。

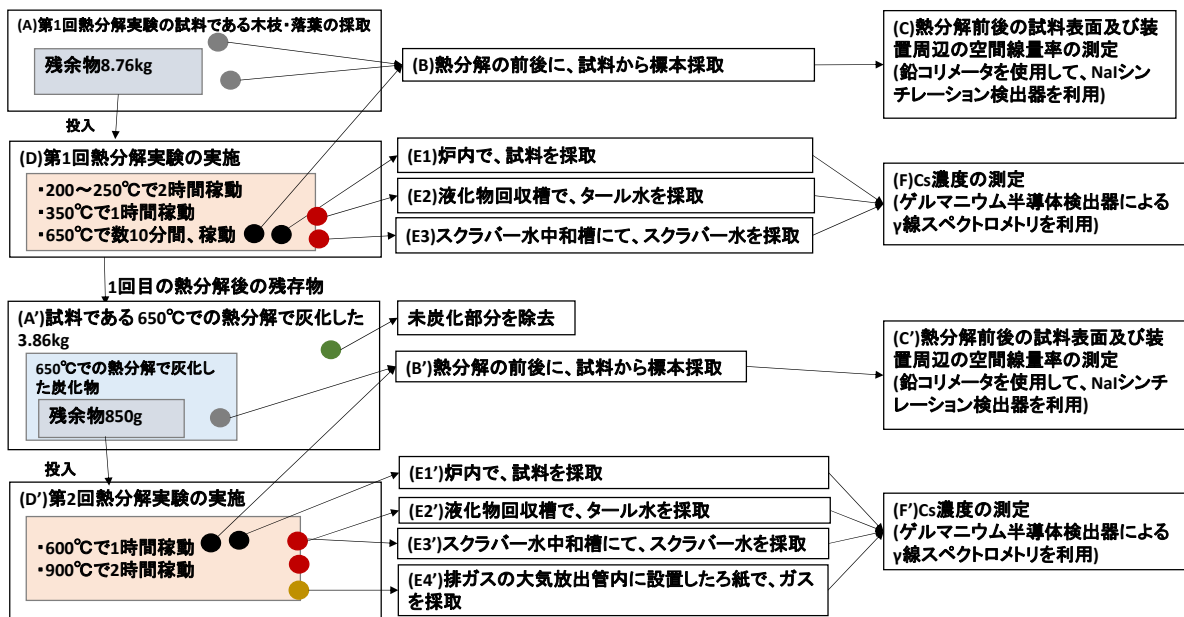


図-2 本実験の実施フロー

(注) RANDEC (2013) 「熱分解炉のセシウム閉じ込め性能に関する試験報告書」より立田が作成。

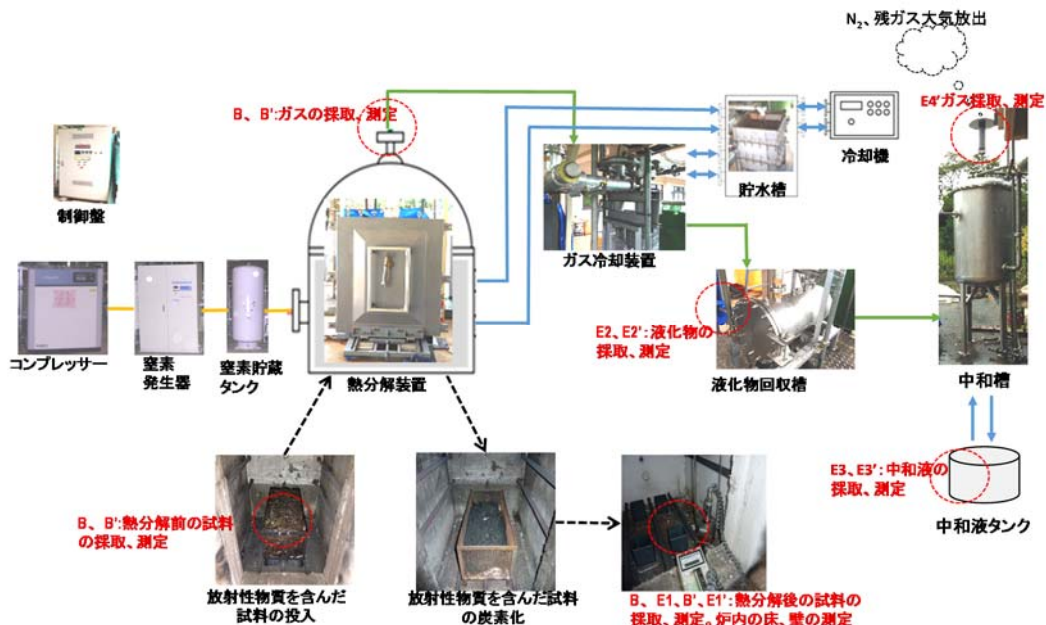


図3 本研究での熱分解システム概念図と空間線量率、Cs濃度の測定箇所

(注) EEN 提供資料より作成

3-2 空間線量率の測定方法

(1) 第1回熱分解実験

1) 運転前

空間線量率の測定はバックグラウンドの影響を排除するため、蓋部と底部がない腹部の厚さが3.9cmの鉛コリメータを使用した。この鉛コリメータでバックグラウンドを遮蔽した下で、NaIシンチレーション検出器を用い、熱分解炉周辺の放射線量率を測定した。その断面図は図-4、測定の様子は図-5で示した。

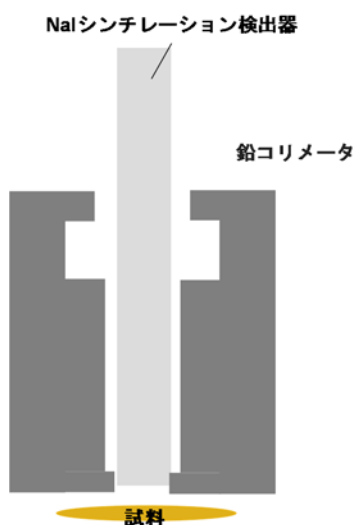


図-4 鉛コリメータ、NaIシンチレーションの断面



図-5 鉛コリメータを用いた空間線量率測定の様子

2) 運転後

熱分解炉の運転中及び運転終了後に、運転前と同様に熱分解炉周辺の線量率の測定を行った。

(2) 第2回熱分解実験

第1回熱分解実験で用いた設備で、図-2で示した方法で採取した試料を用いて、実験を実施した。

1) 運転前

空間線量率の測定は、NaIシンチレーション検出器を利用して行った。

2) 運転後

熱分解炉の運転中及び運転終了後に、運転前と同様に熱分解炉周辺の空間線量率の測定を行った。

4. 試験結果

4-1 第1回熱分解実験の結果

(1) 空間線量率の測定結果

第1回熱分解実験において、空間線量率の測定結果の詳細は、表-3の通りである。

表-3 第1回熱分解実験での空間線量率の測定結果

	測定対象	空間線量率 (μSv/h)
熱分解前	炉前の厚さ約0.5cmの鉄板上部	0.07
	炉の屋根上部	0.99
	熱分解装置周辺 炉の屋根上の排気ガス配管上部	0.81~0.82
	炉内部の床	0.14
	中和水槽水の上	0.09
	液化物回収槽上部	0.11
試料	木枝・落葉	3.5
熱分解中	約250℃で運転時、炉の屋根上の排気ガス配管上部	0.8
	熱分解装置周辺 約350℃で運転時、炉の屋根上の排気ガス配管上部	0.71~0.72
	約600℃で運転時、炉の屋根上の排気ガス配管上部	0.76~0.80
熱分解後	熱分解装置周辺 熱分解炉、屋根上の排気ガス配管上部	0.76~0.80
	試料	木枝・落葉

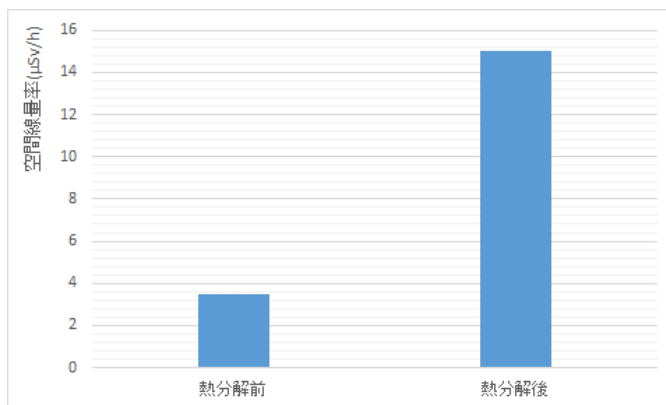


図-6 第1回熱分解実験での木枝、落葉表面の空間線量率の変化

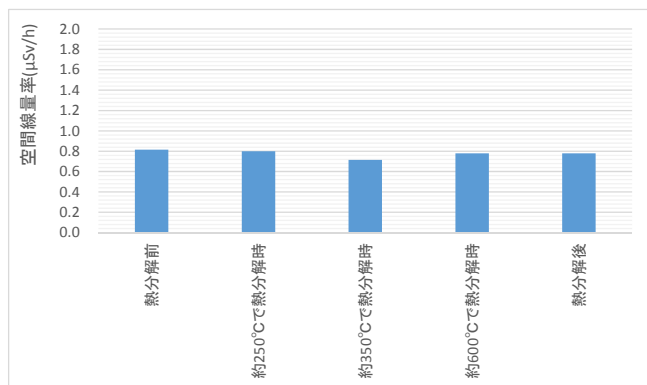


図-7 第1回熱分解実験での熱分解装置周辺の空間線量率の変化

上記の結果から、次のことが言える。

第1には、炉周辺の空間線量率は0.7~0.9μSv/hであり、運転前後で、大きく変化しなかった。この線量値は、事故がない通常時の自然環境の約10~15倍程度の大きさであり、その原因は、福島第一原発事故由来の放射性物質飛散によるバックグラウンドの上昇であると考えられる⁵。

第2には、炉内部の床表面の空間線量率は、0.14μSv/hであった。試料表面の空間線量率と比較すると小さい。

第3には、試料の木枝・落葉表面の空間線量率は地表面付近で計測され、熱分解処理前は3.5μSv/h、処理後は15μSv/hであった。その比重は熱分解前後で、0.1~0.2g/ccから1g/cc付近まで増加した。試料の密度が増加したことから、試料内の大半のセシウムは試料に留まり濃縮され、固定化したと考えられる。

(2) Cs濃度の測定結果

第1回熱分解実験でのCs濃度の測定結果の詳細は、表-4の通りである。

表-4 第1回熱分解実験でのCs濃度の測定結果⁶

	測定対象	Cs濃度(Bq/kg)	
		Cs134	Cs137
熱処理前	木枝・落葉	5.07×10^5	1.14×10^6
	スクラバー水	検出限界以下<5.03	検出限界以下<4.32
熱処理後	木枝・落葉	8.32×10^5	1.73×10^6
	スクラバー水	6.6	検出限界以下<5.18
	タール水	検出限界以下<6.60	7.5

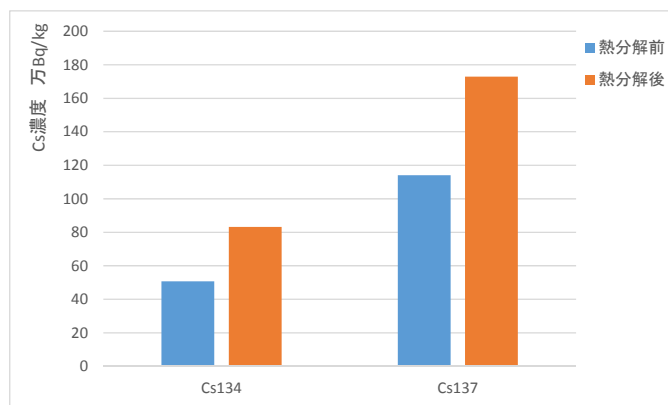


図-8 第1回熱分解実験での木枝、落葉のCs濃度の変化

表-4の結果をまとめると、以下の通りである。

第1は木枝・落葉のCs濃度はCs134及びCs137に関して、熱分解の前後で、 $1.647 \times 10^6 \text{Bq/kg}$ から $2.562 \times 10^6 \text{Bq/kg}$ に約55.6%上昇した。これは、木枝・落葉の熱分解により、Csが濃縮したためである。

第2はスクラバー水のCs濃度は測定限界以下であった。

第3は熱分解過程で発生したタール水のCs濃度が、Cs137が7.5Bq/kgであった。熱分解前の8.76kgの試料の放射エネルギーが $1.44 \times 10^7 \text{Bq}$ であったことを考慮すると、熱分解炉からの放射能移行は極めて微小といえる。

4-2 第2回熱分解実験の結果

(1) 空間線量率の測定結果

2回目の熱分解実験を通して、850gの試料が736gに減少した。この過程で、試料の炭化がより一層進み、セルロース中の成分が熱分解過程を通して放出されたと考えられる。

2回目の熱分解実験結果の詳細は、表-5の通りである。

⁵ 試験設備の外部の道路などの空間線量率は、比較的大きな値を示した。道路横の木枝・落葉のある場所の地表近傍では、20~30μSv/h程度であった。

⁶ 2011年3月11日当時放出されたCs134、Cs137の割合は、1号炉、2号炉、3号炉により異なるが、約45%、約55%である。

Cs134、Cs137の半減期は2.06年、30.2年であることから、Cs134、Cs137の量を直線近似の簡易計算で評価すると、2013年10月下旬に実施された実験時、事故時の賦存量の約43.2%、約95.7%まで減衰し、2014年9月中旬頃には、Cs134、Cs137の量が事故時の賦存量の約32.6%、約94.2%まで減衰している。

表-5 第2回熱分解実験での空間線量率の測定結果⁷

	測定対象	空間線量率 ($\mu\text{Sv/h}$)	
熱分解前	熱分解装置 周辺	炉前の鉄板上	0.07~0.08
		炉の屋根上	0.8
		炉室の排ガス管上	0.54
		炉内の床	0.14
	試料	木枝・落葉850gの表面	15
木枝・落葉0.1gを入れた 測定器の表面		7.7	
熱分解中	熱分解装置 周辺	炉前の鉄板上 炉の屋根上 排ガス管の直上	熱分解前と 変化なし
熱分解後	熱分解装置 周辺	炉前の鉄板上	熱分解前と 変化なし
		炉の屋根上	熱分解前と 変化なし
		炉の屋根上の排ガス配管 上	0.47~0.48
	炉内部の床	熱分解前と 変化なし	
試料	木枝・落葉850gの表面	15.3	
	木枝・落葉0.1gを入れた 測定器の表面	20.7	

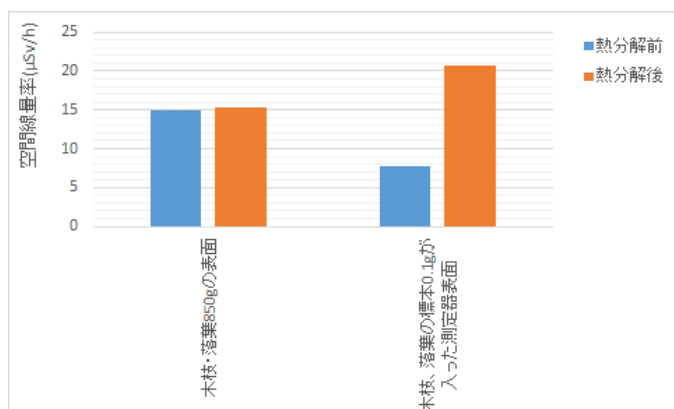


図-9 第2回熱分解実験での木枝、落葉表面の空間線量率の変化

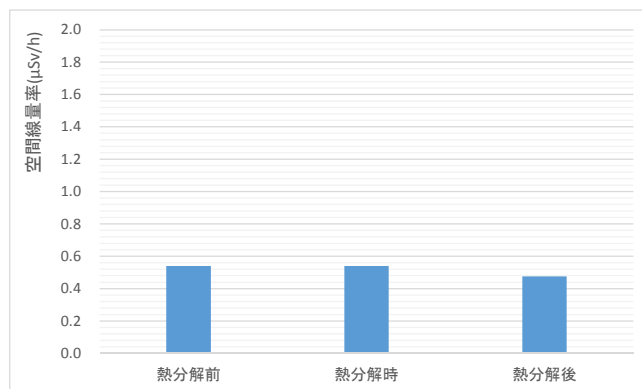


図-10 第2回熱分解実験での熱分解装置周辺の空間線量率の変化

表-5の結果をまとめると、以下の通りである。

第1には、熱分解装置周辺の空間線量率は炉前の鉄板上、炉の屋根上では熱分解の前、中、後で変化なく、炉の屋根上の排ガス配管上では熱分解の前後で若干の低下が見られた。

第2には、炉内の炉床の空間線量率は熱分解の前後で変化しなかった。

第3には、試料表面の空間線量率の測定結果は、熱分解前は $15\mu\text{Sv/h}$ であり、熱分解後は $15.3\mu\text{Sv/h}$ であった。

第4には、測定された空間線量率は、熱分解前後で増加、減少の双方が見られた。その理由としては、測定箇所及び測定日時での線量率のばらつきがあること、測定試料が熱分解後に密度が5~8倍程度まで上昇し高密度化したことで、試料の自己遮蔽能力が増大し線量が下がったと評価されることが考えられる。

⁷ 試料の木枝・落葉の空間線量率は、採取箇所ではばらつきが大きい。木枝・落葉850g表面の空間線量率は、5箇所の測定値

の平均である。また0.1gの試料をサンプリングし、100mlの測定容器に入れて、熱分解の前後で線量率を測定した。

(2) Cs 濃度の測定結果

試験結果の詳細は、表-6 の通りである。

表-6 第2回熱分解実験でのCs濃度の測定結果⁸

	測定対象	Cs濃度(Bq/kg)	
		Cs134	Cs137
熱処理前	木枝・落葉	1.12×10 ⁶	2.58×10 ⁶
	スクラバー水	検出限界以下 <4.90	検出限界以下 <3.99
	タール水	検出限界以下 <5.39	検出限界以下 <4.04
熱処理後	木枝・落葉	1.07×10 ⁶	2.40×10 ⁶
	スクラバー水	検出限界以下 <5.30	検出限界以下 <4.46
	タール水	4.62>検出限界 (4.45)	検出限界以下 <4.13
	ガスが通る炉室配 管内のろ紙	検出限界以下	検出限界以下

	測定対象	空間線量率(μSv/h)
熱分解時	600℃での熱分解時に、 ガスが通る炉室配管内	0.14
	900℃での熱分解時に、 ガスが通る炉室配管内	0.10
	熱分解時の スクラバー出口配管部	0.11~0.12

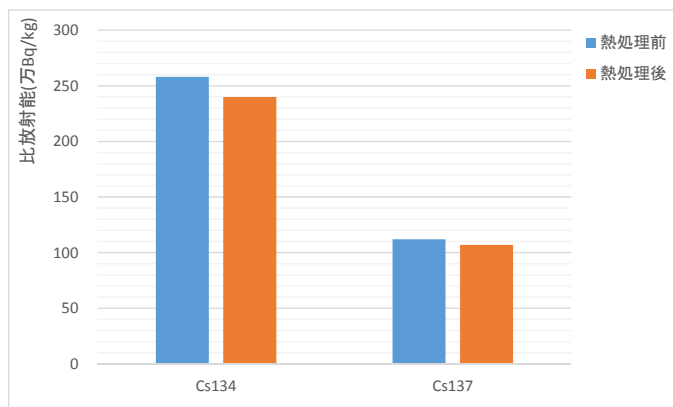


図-11 第2回熱分解実験での木枝、落葉のCs濃度の変化

表-6の結果をまとめると以下の通りである。

第1には、熱分解を通して、試料のCs濃度が上昇する

と思われたが、予想に反して、3.70×10⁶Bq/kg から3.57×10⁶Bq/kgに低下した。この原因としては、採取したサンプルが、試料のCs濃度の母集団平均から乖離していた可能性が考えられる。

第2には、タール水、スクラバー水に含まれるセシウムが検出限界値以下であった。

第3には、熱分解炉の出口となる排気ガス配管部のろ紙からセシウムが検出されたが、ごく微量であった。

第4には、上記第2、第3の結果から、900℃の熱分解においても、セシウムが極めて微量しかガス化していなかったものと考えられる。

5. 本論のまとめと今後の課題

本実験結果から、窒素雰囲気下での木枝・落葉の高温熱分解は、次の特徴を有していると考えられる。

第1には、熱分解を通して、セシウムがほとんど気化せず、システム外の自然環境に放出されないと考えられる。

第2には、上記第1に加えて、熱分解過程で発生したスクラバー水、タール水のCs濃度が検出限界以下であったことから、試料に含まれた放射性物質は、そのほとんどが炭化物に留まったと考えられる。

第3には、熱分解過程で、タール水以外の木酸等の水液体廃棄物が発生せず、処理の問題が発生しないことが確認された。

今後の課題は、大量の廃棄物での実証実験を実施する
と考える。

<参考文献>

- 1)公益財団法人原子力バックエンド推進センター (RANDEC) : 熱分解炉のセシウム閉じ込め性能に関する試験報告書, 2013年12月
- 2)竹村公太郎: 放射性下水道汚泥炭化減容化試験報告, 土木学会全国大会地球環境委員会, 2011年9月9日個別報告, (2011)
- 3)竹村公太郎, 立田潤一郎: 新たな廃棄物減容化技術とその応用に関する研究, リバーフロント研究所報告第24号, 2013年9月, (2013)

⁸ 炉室からガスが出る配管内での測定は、酸化ケイ素ガラスファイバーのろ紙を設定して、通過するガスに含まれるセシウム

を把握することを目的として、ろ紙測定及びガンマスペクトル測定により実施した。