

【3K153015】焼却主灰中の難溶性態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～H29)

東條 安匡（北海道大学）

1. 進捗状況

本研究では、焼却主灰中で確認された Cs の特異的な濃集機構を解明し、その現象を可燃性除染廃棄物の減容化熱処理に応用することを目的に、次の 3 つの目標を設定して検討を行っている。それらは、1) 焼却主灰において Cs が濃集している非晶質の中心に存在する鉱物の同定、2) Cs を捕捉する元となった本鉱物の由来の検討、3) 本鉱物を利用した可燃性除染廃棄物の処理と Cs 濃縮法の提案、である。それぞれが各年度に対応しており、平成 27 年度は、1) が具体的な目標であった。すなわち、Cs が濃集しているのは全ての焼却主灰粒子表面ではなく特定の鉱物粒子表面の非晶質であり、その理由（何故、特定の鉱物粒子だけ Cs を濃集するのか）を明らかにするには、本鉱物粒子が具体的に何なのかを知る必要があった。そこで、焼却灰粒子 16000 個超の中から Cs を表面に濃集した焼却灰粒子を偏光特性と SEM-EDS の元素マッピングに基づいてピックアップし、抽出した粒子に対して μ XRD、FT-IR、顕微ラマン分光法により、鉱物の同定を適用して鉱物の同定を試みた。その結果、Cs を表面に濃集している粒子は、Al、Si、O と K から構成される鉱物、もしくは Al、Si、O と Na から成る鉱物に二分されることとされていること、K を含む粒子は微斜長石（Microcline KAlSi_3O_8 ）であり、Na を含む粒子は曹長石（Albite $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ ）であることが明らかになった。この結果を元に、微斜長石及び曹長石を用いて、 Cs_2CO_3 を添加した加熱試験を実施した結果、Cs はこれら粒子表面に捕捉され、焼却灰粒子で確認された濃集機構と同一の現象が再現された。微斜長石を用いた加熱試験では、900 の条件で、添加した Cs の 97% を捕捉（約 3% が揮発）し、捕捉した Cs の 99% 以上が難溶性態の形態となっていた。以上から、当初目的とした、主灰中でその粒子表面に特異的に Cs を濃集している鉱物粒子の同定に成功し、さらにその鉱物を用いた加熱条件下での Cs の捕捉の再現にも成功し、検証もできた。したがって、研究は当初の計画通りに進行していると考えている。

2. 科学的意義

原発事故以来、焼却残渣中の Cs の存在形態については、多くの研究がなされてきた。加熱条件下で Cs が移行しやすい飛灰中には易溶性態の塩化 Cs が主体である一方、焼却主灰中には難溶性態が多いことはそれらの研究で明らかになっていた。但し、焼却主灰中で何故 Cs が難溶性態であるのかに関しては、国立環境研究所の倉持らが熱力学平衡計算によってセシウムアルミノシリケートを形成している可能性を指摘しているほか、九州大学の Saffarzadeh がガラス状非晶質への包含を確認したのみで、具体的にその現象の発現理由については不明な点が残されていた。筆者らは、先行研究で、特定の粒子のみが Cs をその表面に濃集する現象を電子顕微鏡観察から明らかにしてきたが、その粒子が何かは未解明のままであった。今回の検討から、これらの粒子が微斜長石、曹長石の 2 種であることが明らかになった。これは、これまでの研究にない新たな知見である。この発見の科学的意義は、この特定した鉱物により加熱条件下での Cs の挙動を制御できる可能性があることにある。すなわち、この鉱物を可燃性除染廃棄物の燃焼場に共存させれば、飛灰への移行率を低減させ、Cs を主灰中に難溶性態として捕捉できる可能性がある。これまでのように、Cs の多くが飛灰中に移行すれば、さらにそこから一旦溶出させて各種吸着剤等に再捕捉させる必要がある。一方、本現象を適用すれば、燃焼場において主灰中に難溶性態として捕捉でき、その結果、中間貯蔵においても長期間安定して固体中に Cs を保持し続けることが可能である。

3. 環境政策への貢献

今日においても福島県内に仮置きされている可燃性除染廃棄物の量は、554 万 m^3 と見積もられている。今後、こうした可燃性廃棄物は、減容化のために熱処理されることが想定されているが、熱処理において問題になるのが、Cs の大半が飛灰に移行してしまうということである。飛灰に移行した場合、Cs は易溶性態となることはこれまでの多くの研究から明らかになっており、こうした易溶性の状態では、水分との接触により容易に移動性を有するため、長期管理上懸念が残る。そのため、飛灰から易

溶性 Cs を抽出し、ゼオライト等の吸着剤に再度捕捉させて不動態化する技術が様々検討されている。本研究で対象としている現象は、熱処理時点において、Cs の大半を主灰側に移行させ、さらにそこで難溶性態として保持する点にある。すなわち、まだ現象解明の段階であり、コストや実際の燃焼方法に関して課題が残っているが、本技術が実現できれば、熱処理時点で Cs の難溶性態化を実現できる上、この Cs の存在形態は、筆者らの先行研究から極めて安定であることが明らかになっていることから、中間貯蔵施設での長期保管においても固体中に Cs を安定に保持し続けることが可能となる。

4．委員の指摘及び提言概要

計画に従って、科学的にも政策的にも重要な成果が十分に得られている。Cs の同定が明確であり、焼却によって難溶性態として捕捉できる点は高く評価できる。固定形態を明確にすればなお良く、保全処理方式として確立するには濃度やハロゲン共存等の要因の影響を論じることが欠かせない。

5．評点

総合評点：A