高温加熱処理による高濃縮汚染残土の高減容化に関する研究* (福島県における汚染土壌洗浄処理フィールド試験 (第4報))

石山 新太郎^{*1}, 神谷 昌岳^{*2}, 近藤 充記^{*2}, 比氣 明典^{*2}

Volume Reduction Effect of Radioactive Contaminated Soil by High Temperature Heating Process

Shintaro ISHIYAMA^{*1}, Masatake KAMITANI, Mitsunori KONDO and Norio HIKI

^{*1} Japan Atomic Energy Agency, Quantum Beam Science Directorate
Shirakata-shirane 2-4, Naka-gun, Ibaragi-ken, 319-1195 Japan

For the purpose of removal of ^{137}Cs from highly densified contaminate soil produced after contaminated soil washing process, reclamation soil techniques of contaminated soil through use of structural instability of mordenite contained in contaminated soil under high temperature heating was testified and the following results were obtained; (1) Structural instability of Cs typed typical native mordenite yielding in Tohoku area in Japan was observed and dissociation of ^{137}Cs from this mordenite was found after heat annealing at 1173K. (2) Remarkable dissociation rate in the early stages was observed and then was slowed down afterward. Dissociation rate of ^{137}Cs reached up to 65% after 1173K $\times$ 1hr annealing. (3) 100% recovery of Cs from vaporized Cs gas was achieved by technology combination of electric precipitation FP filter newly developed and cold trap.

Key Words : Chemical Interface Controlled Dispersion, Contaminated Soil, Fission Product, Mordenite, High-Speed Shearing Washing, Decontamination, Volume Reduction, FP Filter, Cs, Fission Product

1. 緒 言

2011 年 3 月 11 日以降福島県は地震・津波・原子力発電事故が重なった未曾有の災害を被り、多くの貴い命が奪われ甚大な被害が生じてはや 1 年半以上経過するに至った。未だその対応は緒に就いたばかりであり、今後の取り組み計画も徐々に具体化されてはいるが本格化な課題解決はこれからである。例えば、放射能汚染区域の復興に関しては市町村単位で除染作業が進む一方で、汚染地域内で大量に発生する集積除染残土が放置された状態にあり最終的な保管管理施設・場所の準備を待っている状態⁽¹⁾である。環境省⁽²⁾ではそのための中間貯蔵施設の建設を福島県に打診している状態であるが施設の収容能力ならびに収容受入れ基準を満たさない汚染土壌の処分方法⁽³⁾⁻⁽⁵⁾やその発生数量を勘案すると今後の大きな課題となることから汚染地区での除染作業が進む中で今後減容化技術が希求されている。

そこで石山らは^(6,7)新たに発案した分散制御型高せん断洗浄解砕処理技術の技術検証ならびにスケールアップした実用モックアップ機の性能実証のためのフィールド試験を福島県下の各種汚染土壌について実施して極めて高い洗浄・減容化性能を図 1 に示す解砕洗浄モックアップ工程において達成し、今後モックアップから実規模プラント化へと開発フェーズを移行する段階に至った。本洗浄システムは、分散・分離・洗浄・濃縮・固形化各プロセスを統合化したもので、まず図中(a)工程において集積汚染土壌から土壌成分とごみ成分(草木、鉄クズ等)に分け、(b)工程で粒径 5mm 以上 (+5mm) の土壌を再生土として、それ以下のものを洗浄汚染土としてそれぞれ抽出する。次

* 原稿受付 2013 年 2 月 1 日

^{*1} 正員, 日本原子力研究開発機構 (〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4)

^{*2} (株)マキノ (〒479-8623 愛知県常滑市大曾町 3-1)

E-mail: Shintaro.ishiyama@jaea.go.jp

に、(c) 高せん断解砕装置により付着・凝集した土壌の解砕・洗浄を行う。その後、(d)工程において洗浄した $75\mu\text{m}$ 以上の土壌 ($+75\mu\text{m}$) を再生土壌として回収し、 $75\mu\text{m}$ 以下のものは(e)分級工程において $35\mu\text{m}$ 前後の粒度で分級した。この分級値設定は石山らの先行試験⁽⁶⁻⁷⁾の結果、放射能汚染源が主に $35\mu\text{m}$ 以下の鉱物相に集積している実験事実に基づき決められた。

Fig.1 Contaminated soil washing process:(a) Drum washer, (b)sieve, (c)Plunger, (d) soil washer, (e) wet cyclone, (f) filter press and (g) water recycling system

現段階での実用化処理プラントの目標性能は汚染土壌処理速度、洗浄度、回収率、濃縮度及び減溶化率をそれぞれ 50ton/hr, 90%, 80wt% 以上ならびに 85% 以上と想定しており、この処理プラント目標性能により上記中間貯蔵施設の建設規模を現状計画のものから 1/4 以下にコンパクト化することで建設コストの削減や設置予定地域での精神的負担等の緩和等が期待される。

上記フィールド試験の結果、福島県下における核分裂生成物（Fission Product: 以下 FP）核種の代表的な捕獲鉱物成分がモルデナイト等イオン交換鉱物であると考えられることから⁽⁶⁻⁷⁾、本処理プラントの枢要技術は、この FP 捕獲鉱物成分を解砕洗浄により微細化後、分級技術により選択的に回収することであり、これら選択回収された濃縮汚染残土量と出発土壌量の比を持って評価される減容化率のさらなる向上が期待される。

一方、高橋ら⁽⁸⁾によれば東北地方由来の楢円トンネル構造モルデナイトに Na, Ca, NH_4 をそれぞれイオン交換処理させた X 型モルデナイト鉱物において 1173K までの加熱処理によりモルデナイト構造が崩壊することが報告されていること、ならびに汚染土壌中の代表的 FP 核種の ^{137}Cs は低融点 (301K) で 944K の沸点を有するアルカリ金属であることから Cs 型モルデナイト鉱物の高温加熱による Cs 元素の選択的乖離回収を行える可能性が考えられる。

そこで本研究では Cs 型モルデナイトの高温における構造不安定性ならびに蒸発 Cs ガスの回収技術に関する検討を行うとともに上記モックアップにより生産された高濃縮汚染残土からの高温化処理における ^{137}Cs 乖離の可能性についての検証実験を行った。

2. 試験方法

2・1 イオン交換鉱物

Cs 型モルデナイト試料は、天然モルデナイト粉末（新東北化学 ゼオフィル CP）を 1 N の CsOH 溶液（PH=10.5）に 1 時間浸漬させイオン化交換を行うことにより得た。表 1 にゼオフィルの化学組成を示す。

Table 1 Composition of typical mordenite [wt/%]

SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	Na_2O	K_2O	CaO	MgO	Other
76.3	11.4	1.0	1.5	3	4.5	2	0.3

2・2 加熱処理

上記 Cs 型モルデナイトの加熱処理は試料 10g 程度をるつぽに入れ、高周波加熱装置（100V×7.5V、最高温度 1273K）を用いて真空容器（ 10^{-6} Torr）内で加熱処理を行った。加熱処理は高橋ら⁷⁾の実験結果と比較するため 383K×1 時間の乾燥後、773K から 1173K まで最高 1 時間加熱した。加熱処理試料は粉末 X 線回折法（島津製作所製 XRD-7000）によって構造変化を調べるとともに窒素吸着から BET 法（島津製作所製フローソープ II I 2305）によって比表面積を求めた。

2・3 対象汚染土壌

放射能汚染土壌は、福島第 1 原発から 30km 以南の標高 600m 福島県川内村下川内三つ石県道脇（最大環境放射線 $3.5 \mu\text{Sv/hr}$ ）の原野土壌（最大汚染度 18kBq/kg 以上）から採取した。原土壌の採取は表層から数 10cm の表面土壌をスコップにより掘り起こし 250kg の土壌を数か所から採取した。採取した土壌の放射線量は最大で $18,115\text{Bq/kg}$ であった。図 2 に採取した汚染原土壌試料を示す。これによると採取原土壌には草根が多く混入していることから、まず採取土壌から草根、ごみ等の分離を行い洗浄解砕用の汚染土壌 1,000kg を確保した。

Fig.2 Contaminated soil samples obtained at moor: (a) sampling position, (b) soil and (c) samples

2・4 高濃縮汚染残土

高濃度汚染残土は 2.3 項の原土壌を用いて図 1 の(f)工程で解砕洗浄及びフィルタープレスにより $35 \mu\text{m}$ 以下に微細化された鉍物群の固形化ケーキ（15-25kg、含水量約 37wt.%）の一部から採取した。図 3 に同工程で得られたケーキの様子を示す。

Fig.3 Filter press and contaminated soil cake

本試料の 1273K までの加熱処理は、従来ケーキを安全保管するため含水成分を蒸発させケーキを固化させるため図 4 に示す加熱装置処理装置（銅製水冷ウォータージャケット（直径×高さ、 $\phi 100\text{mm} \times 150\text{mmL}$ ）及びヒーター加熱部）内で容器内を窒素置換した後実施した。試料の加熱は、採取土壌 10g 程度を Al_2O_3 イオンコーティングした SUS304 プレート（ $50\text{mm} \times 50\text{mm} \times 6\text{mm}$ ）に載せ、このプレートを下からセラミックスプレートヒータ（熱産ヒート（株）社製 FCP ヒータ）により最高温度 1173K で行った。

Fig.4 Heating test apparatus of contaminated soil

2・5 汚染残土の放射線計測方法

加熱処理試料の放射線量計測は、試料を V5 容器（ $\phi 142 \times 57\text{ mm}$ ）に詰め、これを鉛容器（直径×高さ、 $\phi 150\text{ mm} \times 300\text{ mm}$ ）内に入れて鉛容器上部から NaI（TI）シンチレーションカウンタ（富士電機社製 NHC-7、コア形状； $\phi 25.4\text{ mm} \times 25.4\text{ mm}$ ）を挿入し鉛蓋で計測系を封止後、 ^{137}Cs 濃度の計測を行った。本計測器の校正は JISZ4333 及び 4511 に準拠し ^{137}Cs 線源を用いて実施し、同線源強度誤差ならびに計測器誤差を合わせて約 10 % と評価した。また、検出下限限界については厚生労働省医薬食品局食品安全監視安全課通達の「食品中の放射性セシウムスクリーニング法」（平成 23 年 11 月 10 日）に基づき、 25Bq/kg の計数率 n_{s25} とバックグラウンド計数率 n_b をそれぞれ計測し、 $n_{s25} - n_b > 3\sigma$ を下限限界とした。

2・6 模擬 FP 除去試験

実規模プラントの解砕洗浄・濃縮工程で生産した大量の高濃縮残土の高温加熱処理により想定上発生する ^{137}Cs 等 FP ガスを高効率で捕獲するための電気集塵式高温 FP フィルターの Cs 捕獲効率評価試験を下記装置により実施した。

2・6・1 高温 FP フィルター

ハステロイ X 素材からガスアトマイジング法により平均粒径 $20\mu\text{m}$ の同材料粉末を製造し、この粉末を数 mm の厚みでシート状に敷き、これを融点近くまで昇温して自己焼結させることにより厚み 2mm のフィルターシートを作製した。次にこのフィルターシートをさらにロールにかけて直径×長さ×厚み、 $15.4\text{mm} \times 540\text{mm} \times 1.6\text{mm}$ のシリンダ状に成形し、突き合わせ部をシール溶接した後、エンドキャップ及び継ぎ手部の順番で溶接しシリンダフィルターとした。最終的には構成粒子粉末の平均粒径 $20\mu\text{m}$ 、充填率 60%、厚み 1.6mm、ガス通過表面積 227m^2 のフィルターに加工した。このフィルター要素を用いて図 5 に概念図として示す電気集塵式高温 FP フィルターを製作した⁽⁹⁾。本フィルター装置では、FP 含有微粒鉍物を含む高温不活性ガスをタンク内（図右①）に導き、電磁フィルター（図右②）を通して FP 成分を抽出するとともに鉍物粒子をタンク下方に重力落下させて回収する構造となっている。また、電磁フィルターの根詰まり防止のためのブローバックシステムをタンク上方部に備えている。

2・6・2 試験装置構成

上記高温 FP フィルターの Cs ガス捕集実験を図 6 に示す高温 FP フィルター試験装置を用いて実施した。本装置は(1)高温ガス発生部、(2)セシウム蒸気発生部、(3)電気集塵試験部、(4)冷却系及び(5)制御系から構成されている。

(1) 高温ガス発生部

高温ガス発生部は窒素ボンベ（窒素ガス純度×ガス容量, 99.99% N₂ × 6 Nm³）と加熱部（高周波加熱装置, 200V × 7.5 KVA, 最高温度 1273K）から構成されている。本加熱部では窒素ボンベから供給される高純度窒素ガスを減圧弁ならびに流量計を介して圧力・流量調整をした後コイル管に導き、その外周を取り巻くように敷設した高周

Fig.5 Concept of high temperature FP filter and assembly

波加熱用コイル（直径φ115mm）で加熱することによって最高1273Kまでの高温窒素ガスが得られ、後述する(5)制御系装置内部に収納されている。

(2)セシウム蒸気発生部

セシウム蒸気発生部は、高温加熱室素ガスを2か所から導入できるセシウム蒸気発生管（φ6.35mm×230mm）とその外円筒管（φ12.7×230mm）の二重構造になっており、この二重構造体のセシウム蒸気発生管内にセシウム酸化物粉末（Cs₂O）を約500gmセラミックするつばに入れ、これを発生管内に挿入し、この部分から電気ヒータ（200V×7.5 k VA）で最高773Kまで加熱することによりCs₂OをCsとCs₂O₂に分解させて希薄なセシウム蒸気を発生させた。

Fig.6 FP filter and its test apparatus

さらに、この希薄な発生セシウム蒸気を膨張弁により膨張させてキャリアガス中で均一化させた後にフィルタ一試験部に導くため、セシウム蒸気発生部直管部端から蒸気高温ガス発生部から出てくる高温窒素ガス(1123-1173K)の一部をキャリアガスとして用い、分岐した高温ガスをセシウム蒸気管の外側のから導入してセシウム蒸気管出

口先端でセシウム蒸気+高温窒素ガスを生成し、これを垂直配置管（外径×長さ、 $\phi 9.53\text{mm} \times 200\text{mm}$ ）を介してフィルター試験部に導入した。ここで、水平配置の蒸気発生部に対してフィルター試験部を垂直配置にしたのは、セシウム蒸気中の粗大粒子や Cs_2O_2 を重量沈降効果により除去するためである。なお、セシウムの蒸発温度の計測/制御は、蒸発管及び蒸発部配管側面の二か所で行った。

(3)電気集塵試験部

電気集塵試験部（全長×外径、 $721.1\text{mm} \times \phi 25.4\text{mm}$ ）は、その内部中心にハステロイ X 製電極（長さ×直径、 $540\text{mm} \times \phi 5\text{mm}$ ）、その周囲にアルミナ製絶縁体（長さ×直径、 $20\text{-}50\text{mm} \times \phi 24\text{mm}$ ）を介して上述のフィルター材（長さ×外形×厚さ、 $540\text{mm} \times \phi 15.4\text{mm} \times 1.6\text{mm}$ ）から構成されるフィルター要素と、さらにその外側を直径 $\phi 25.4\text{mm}$ の SUS 316 管で覆った三重構造となっている。上記(2)セシウム蒸気発生部から送られる高温ガスとセシウム蒸気の混合ガスは、この電極及びフィルター要素内部から導入され、フィルターメディアを通過してフィルター外周部に抜け、最終的にフィルター試験部上部側管から(4)冷却部に排出される。フィルター試験部上部先端は電極とフィルターメディアに接続した電極端子（直径 $\phi 5\text{mm}$ ）の取り出し口である。本フィルター試験部は、電気ヒータ（ $200\text{V} \times 7.5\text{kVA}$ ）により最高 1273K まで加熱することができ、本試験部温度の均一性を確保するためヒーター外側をすべて断熱材で覆うことにより保温した。

(4)冷却系

冷却系は水冷式で外筒（直径×長さ、 $\phi 12.7\text{mm} \times 300\text{mm}$ ）及び上記(2)及び(3)を通過してきた高温混合ガスを外部に排出するための内筒（直径×長さ、 $\phi 8\text{mm} \times 300\text{mm}$ ）から構成されており、冷却系を通過した高温混合ガスをほぼ 300K 程度まで冷却した後大気放出することができる。ただし、大気放出前のガス中のセシウム蒸気密度を計測するため、内筒表面に Filter trap（SUS316 製）として水冷クーラーを取付け、試験終了後このトラップを取り外し、ここに付着したセシウム元素の定量分析を行った。

(5)制御系

制御系には上述(1)の高温ガス発生部の加熱部のほか、各部所への温度制御のための温度制御器ならびに(3)電気集塵部試験部への電圧・電流調整のための直流高圧電源（山菱社製 YHPS-50K-20MTR、最高印加電圧×電流、 $5\text{kV} \times 20\text{A}$ ）を備えている。

2・6・3 高温 FP フィルター試験条件

(1)供給窒素ガス流量及び温度条件

供給窒素ガスの純度ならびに供給流量をそれぞれ 99.99% 及び 0.01L/s とした。電気集塵試験部内窒素ガス温度を $1123\text{-}1173\text{K} \pm 10\text{K}$ で制御しつつ $3\text{-}10\text{m/s}$ の流速で約 500 分間の連続運転を行った。

(2)セシウム蒸気発生条件

できるだけ希薄なセシウム蒸気を得るため、るつぼ最高温度をセシウム酸化物分解温度 $400\text{-}410\text{K} \pm 2\text{K}$ で温度制御しつつ同上の期間で連続的にセシウム蒸気を供給し続けた。

(3)電気集塵部の運転制御

電気集塵部への電圧印加は、印加電圧を $0.07\text{-}1.5\text{kV}$ で設定した後、試験装置各部の昇温と同時に電流値を徐々に上昇させ、電極とフィルター間に安定した放電が開始される電流値で固定した。

(4)セシウムの付着量定量分析

本装置内でプレートアウトしたセシウム元素の定量分析を冷却器、電気集塵試験部、エルボー配管部（電気集塵部入口）及びセシウム蒸気発生部（セシウム蒸気部出口）の 4 箇所において下記要領で行った。冷却器、エルボー配管部及びセシウム蒸気発生部の 3 測定箇所のそれぞれの配管をやや傾斜をつける程度に寝かせた後、電気集塵部配管を垂直にしてそれぞれスタンドに固定し、最初に沸点近くまで加熱した濃硝酸 150ml をロートによる各管内に流し込み流出液①を回収した。次に沸点近くまで加熱した硝酸 150ml を同様に管内に流し込み流出液②をビーカーに回収した。最後に温水（純水）150ml を配管に流し、流出液③を別のビーカーで回収した。さらに、これら①-③の流出液をホットプレート上で加熱し 30-50ml まで濃縮した後、3 つのビーカーの内容物を 1 つのビーカーに移し入れ、再びホットプレート上で加熱して 30ml まで濃縮した。この液を 50ml のメスフラスコに移し入れ純水で定容し、ICP 発光分析装置（JOBINIVON 社製 JY38S）によりセシウムの定量を行った。

3. 結果と考察

3・1 イオン交換によるCs-型モルデナイトの試作

図7(a)に中和滴定法によるモルデナイトのCsイオン交換過程を示す。破線はイオン交換水中に1NのCsOHを滴下した際に得られるPH変化曲線である。

Fig.7(a) Change in CsOH density of Cs-type mordenite in solution

PH=10前後でCsOH当量が飽和傾向を示している。また図7(b)にその際の溶液の ζ 電位の変化を示す。これによると ζ 電位が10-10.5で最小値となりモルデナイト粉末の分散が進んでいることからイオン交換時におけるPH値を10.5（図中↑で表記）として設定した。この値は後述の放射能汚染土壌の解砕洗浄における溶液条件でもあり、石山らの先行試験により得られた数値である⁽⁶⁻⁷⁾。

Fig.7(b) Change in CsOH ζ potential of Cs-type mordenite in solution

3・2 高温加熱処理

3・2・1 構造分析結果

図8に高温加熱処理したCs型モルデナイト粉末のXRDパターンを示す。これによると室温におけるモルデナイトの特に20-30°の典型的ピークパターンが処理温度による変化してくることが分かる。加熱処理を行わない場合に対して処理温度が高温化するに従ってモルデナイト特有の回折線強度がわずかに低下し、1173Kでは20-30°の主要回折線を含みほとんどが消滅しており、モルデナイトの構造が壊れていることがわかる。これは、高橋ら⁽⁸⁾のNa型及びCa型モルデナイトの高温処理において得られた結果と符合する。

Fig.8 XRD pattern of Cs-type mordenite after heat treatment from RT to 1173K

3・2・2 比表面積分析結果

図9にCs型モルデナイトの加熱処理試料の比表面積を窒素吸着量からBET法により求めた結果を高橋ら⁽⁸⁾がNa型、NH₄型及びCa型モルデナイトで得た結果と併せて示す。モルデナイトは陽イオンの種類によって細孔サイズが異なり、低温においてCa型<NH₄型、Na型であるとされているがCs型モルデナイトはCa型とNa型との間でややNa型よりでさらに小さな細孔分布を有していることがわかる。一方773K以上の高温の場合Ca型モルデナイトの比表面積の急激な変化を示し、これに対してCs型モルデナイトも同様な表面積減少傾向が見られた。1173kにおける比表面積もNa型モルデナイトの値と同様な極めて低い値を示し1173k以上の高温化による構造破壊が進んでいるものと考えられる。

Fig. 9 Change in surface area of Cs-type mordenite as a function of heat temperature

3・3 汚染土壌の高温加熱処理

上記Cs型モルデナイト粉末の高温処理による構造変化の様子から、1173Kの加熱処理においてはモルデナイト構造が維持できなくなるとともにそれによりCsの沸騰蒸発が顕著になるものと考えられることから、モルデナイ

トにイオン捕獲されている Cs の再回収が可能であると想定される.そこで図 3 に示すフィルタープレスされた $35\ \mu\text{m}$ 以下の高濃度ケーキ残土から採取した土壌の $1173\text{K} \times 1$ 時間までの高温化処理を行い,処理前後での土壌の放

Fig.10 Change in irradiation dose as a function of annealing time at 1173K

射線量を計測することでケーキ土壌からの ^{137}Cs の蒸発乖離に関する評価を行った.

図 10 に 1173K 加熱時の放射線量の時間変化を示す.これによると加熱前のケーキ土壌の放射線量に対して加熱時間に比例して γ カウント量が減少してゆき,加熱開始直後 10 分で急激に低下し (58%),その後やや飽和気味となったが 1 時間後に初期値の 35%となった.

なお,本試料加熱前の蒸発乾燥工程 ($383\text{K} \times 1$ 時間) 時の放射線量変化を加えた加熱処理温度と放射線量の変化の関係を図 11 に示す.これによると乾燥温度程度での加熱での放射線量はほとんど変化しないことがわかる.

Fig.11 Change in irradiation dose as a function of annealing temperature

図 12 に加熱前後のケーキ土壌のモルフォロジーを示す.これによると加熱後ケーキ土壌粒子が微細化していることがわかる.これは,高温処理により 3.2 項で観察したモルデナイト鉱物等の構造組織崩壊に起因しているものと考えられる.

Fig.12 Microstructure of contaminated soil (a) before and (b) after annealing at 1173K

これらの結果から高温化×長時間処理を行うことによる ^{137}Cs 回収効率向上による高濃縮残土の再生化において放射線量の低減化を図れる可能性があることがわかった。

3・4 模擬 FP 除去性能試験

上記3.3項の結果からモルデナイト鉱物にイオン捕獲された ^{137}Cs が高温処理により一部乖離することが明らかになった。しかしながら、実用化プラントにおける解砕洗浄・濃縮工程で処理する大量の高濃縮残土の1273Kクラスの高濃縮残土を効率的に行うためには大量の高濃縮残土個別粒子への効率的な均一加熱方法ならびに処理中の堆積粒子への再付着防止策ならびにガス化した ^{137}Cs の高温状態での捕獲技術等に配慮すべき課題がある。これらの課題を解決する方法として図13に示す流動床炉と図5に示した石山ら⁽⁸⁾が開発した高温電磁FPフィルターとの組合せが高温処理により発生する ^{137}Cs 等FP核種ガスの再捕集に適しているものと考えられる。ここでは模擬FPによる電気集塵式高温FPフィルター要素によるCs捕獲実験を行いその除去性能を評価した。

Fig. 13 Concept of Fluidized-bed gasification plant and FP filter

3・4・1 電気集塵試験

図14に電気集塵試験部とセシウム蒸発部の試験温度ならびに電気集塵部印加電圧をそれぞれ1223K, 673K及び0.5kVに設定した際の各部温度ならびに電気集塵部電流変化を示す。ここで図13中の各部位①～④にそれぞれ対応する図14中の計測値との関係を各図中に示す。

Fig. 14 Operation conditions of temperature and FP current of test apparatus during FP filter test

これによると電気集塵試験部及びセシウム蒸発部の温度は試験開始後約100-200分後にほぼ所定の温度に到達し、その後安定した温度で制御された。電気集塵部での電流量調整は、これら各部の昇温速度に合わせるように徐々

に増やしていき、約 100 分後に安定値となるよう当初約 0.6mV に設定したが、その後電気集塵部内部の両電極間で生じる放電現象により徐々にその値が減少したため、試験中数度にわたり電流値の再設定を行った。

3・4・2 装置内のセシウム元素分析

表 2 及び 3 に本装置を用いた 6 回（Run1-Run6）にわたる試験条件とその際得られた各部位におけるセシウムのプレートアウト量ならびに FP フィルターならびにクーラーにおける捕獲効率を示す。

Table 2 Operation conditions of temperature and current of FP test section

	Run1	Run2	Run2	Run4	Run5	Run6
N ₂ gas temp.(K)	1223	1203	1143	1113	1103	1113
Vaporizer temp.(K)	673	633	643	633	633	633
FP filter temp.(K)	1173	1203	1188	1203	1203	1203
FP filter voltage(kV)	1.5	0.5	0.2-0.5	0.11-0.25	0.07-0.14	0
FP collector current(mA)	0.3-0.6	0.3-0.6	0.3-0.6	0.3-0.6	0.3-0.6	0

ただし、Run6 は電気集塵試験部に電圧印加したい場合である。これによると FP フィルターでの捕獲効率は Run6 を除き極めて高い効率を達成している。特に FP フィルター温度が 1200K を越えた場合 95%以上の捕集効率を示した。

Table 3 Plate-out of Cs vapor and filtration efficiency in FP filter test section

Plate-out (μg)	Run1	Run2	Run2	Run4	Run5	Run6
Outlet of Vaporizer(μg)	70.0	59.9	95.7	15.1	11.1	10.6
Inlet of test section(μg)	53.6	8.6	13.7	6.4	7.5	6.2
FP filter (μg)	1.7	3.7	0.8	11.0	6.1	0.6
Cooler(μg)	1.2	0.2	0.2	0.02	0.02	11.0
Loss of Cs in powder(μg)	126.4	72.3	110.3	32.6	24.8	28.5
Filtration in collector(%)	58.7	95.3	82.0	99.8	99.7	4.7
Filtration in cooler(%)	98.3	85.7	90.0	50.0	25.0	99.6
Total filtration(%)	100	100	100	100	100	100

一般産業用の電気集塵装置の考え方に基づいて本 FP フィルターの捕集効率 η は式(1)で与えられる⁽¹⁰⁾。

$$\eta = 100 \times (1 - e^{-vQ/A}) \quad (1)$$

ここで v :粒子移動速度, A :集塵極面積 (=227cm²), Q :ガス流量 (=450kg/min) である。さらに、コロナ放電による静電集塵は主に帯電荷電による Coulomb 力によるが、粒子はほとんど瞬間的に飽和帯電量に達するので粒子に作用する Coulomb 力と Stokes-Cunningham の気流抗力とを等しいと考えることで 1 μm 以下の微粒子移動速度 v を式(2)で表することができる。

$$v = 360CeTE_q/\mu \quad (2)$$

ここで、 C :Cunningham 係数, e :単位電荷 (=4.8×10⁻¹⁰esu), T :帯電部温度, E_q :集塵部電界強度 (esu/cm), μ :ガス粘性係数である。

ここで、本試験における代表的条件として $C=2, T=1200K, E_q=7\text{eV/cm}, \mu=600 \times 10^{-6}\text{P}$ を式(2)に与えることにより粒子移動速度 $v=5\text{cm/s}$ が得られる。次に式(1)中の滞留時間 $(=Q/A)$ は約 2 秒 $(=450\text{kg/min}/227\text{cm}^2)$ であることから式(1)は、

$$\eta = 100 \times (1 - e^{-5\text{cm/s} \times 2\text{s}}) \sim 100\% \quad (3)$$

となり本試験における電気集塵部長さで 100%近い捕集効率が達成できることを示している。この計算値と表 3 で得られた FP フィルター捕集実験値とには良い一致が見られた。

これに対して FP フィルター後段のクーラーによるコールドトラップ効果としての捕獲効率は、Run6 の FP フィルター捕獲無作動時の場合に 99.6%に達する。一方、FP フィルター捕獲作動時では 25-98.3%に達した。

これらの結果から FP フィルターとその後段でのクーラーとの補完捕集効果より Cs 蒸気の捕獲は 100%を実現できるものと考えられる。

3・5 高温処理による減容化評価

3.3 項の試験結果から図 1 に示す解砕洗浄・濃縮工程において発生する高濃度汚染残土の高温処理による再生処理ならびにそれによる汚染土壌の高い減容化の可能性がある。そこでここでは、現状でまだ最適化されていない洗浄解砕ならびに高温化処理条件において達成可能な最終的な高減容化効果について評価を行った。

石山らの研究^(6,7)で扱った汚染土壌の図 1 の洗浄・濃縮モックアップによる再生土の回収率ならびに減容化率を表 4 に示す。これによると再生土回収率は 82wt.%程度であり減容化率は 85wt.% $(=100\text{wt.}\%-14.9\text{wt.}\%)$ と想定されるが、この工程後に高温処理工程を加えることにより高濃縮残土の再利用化が図られ減容化率を約 97wt.%まで向上させられる可能性がある。

Table 4 Volume reduction of contaminated soil through reclamation soil process

Grain size [μm]	Reclamation soil [kg]	Bq/kg	Wt.%	Condensation soil [kg]	Bq/kg	Wt.%
-35	150	3,939	55.7	40	247,244	14.9
Retention	40	3,000	14.9			
Other	30	4,000	11.2			
Total			81.8			14.9
After heat treatment						
					(86,535)	14.9
				Total reclamation		96.7

4. 結 言

福島県下で 18,000Bq/kg を越える高放射能汚染土の界面化学的分散制御と高速せん断流解砕による洗浄フィールド試験を実施し発生した高濃度汚染土壌中の ^{137}Cs 等 FP の、その主要捕獲鉱物であるモルデナイト鉱物相の高温場における構造不安定性を利用した再回収の可能性について検討を行い、下記結論を得た。

- (1) 代表的な東北産の Cs 型天然モルデナイト鉱物相における高温構造不安定性は 1173K 以上で顕著である。
- (2) 高濃度汚染残土の 1173K の高温加熱試験により FP 捕獲鉱物相からの ^{137}Cs の乖離を観測した。
- (3) その際の FP 乖離量は、高温加熱初期において顕著であり、1 時間加熱後において初期値の約 65%程度が乖離したものと評価された。
- (4) 高濃度汚染残土の高温処理により発生する Cs ガスの高温再回収を行うため開発した電気集塵式高温 FP フィルターと後段でのコールドトラップの相補的利用により発生ガスのほぼ 100%の回収が可能である。

(5)汚染土壌の解砕洗浄・濃縮技術ならびに高濃縮残土の高温処理により,今後の除染作業で発生する大量の全土壌の再生土化を行うことで97wt.%近い減容化が可能であるとの見通しを得た.これらの技術を実用化することにより今後の建設予定の中間貯蔵施設の建設規模は極めてコンパクトにできる可能性が考えられる.

謝 辞

本研究の実施に当たり福島大学の河津賢澄先生ならびに川内村村長により実験場所提供と作業環境確保につきましてご尽力いただきました. また, 大阪府立大学の中平敦教授から実験解析上の技術的アドバイスをいただきましたことにつきましてそれぞれ心からの感謝の意を表します.

文 献

- (1) 日本原子力研究開発機構 “福島第一原子力発電所事故に係る避難区域等における除染実証業務 報告書”, http://www.jaea.go.jp/fukushima/kankyoanzen/d-model_report.html (平成24年3月26日).
- (2) 環境省 “中間貯蔵施設について”, <http://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/brief20120512-13.pdf> (平成23年10月29日).
- (3) 環境省 “ダイオキシン類対策特別措置法”, <http://law.e-gov.go.jp/htmldata/H11/H11HO105.html> (平成11年7月16日法律第105号).
- (4) 環境省 “除染関係ガイドライン”, <http://josen.env.go.jp/material/download/index.html#s01-02> (平成23年12月第1版).
- (5) 石井慶造, “水洗浄による放射能セシウム汚染土壌の除染方法について”, 第34回原子力委員会資料第1号 <http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/teirei/siryo2011/siryo34/index.htm> (平成23年9月6日).
- (6) 石山新太郎, 神谷昌岳, 近藤充記, “界面化学的分散制御高せん断解砕による放射能汚染土壌洗浄 (福島県における汚染土壌洗浄処理フィールド試験 (第1報))”, 日本機械学会論文集 B 編, Vol.79, No.802 (2013-6), pp.1106-1121.
- (7) 石山新太郎, 神谷昌岳, 近藤充記, 比氣明典, “イオンコーティング技術による高放射能汚染土壌洗浄用装置の汚染防止効果”, 化学工学論文集, Vol.39, No.4 (2013), pp.1-6.
- (8) 高橋浩, 西村陽一, “モルデナイトの加熱処理による構造変化に対する交換性陽イオンの影響”, 生産究, Vol.20, No.9 (1968), pp.28-29.
- (9) 石山新太郎, 武藤康, 文沢元雄, 塚崎和生, “高温発電システムにおける冷却材ヘリウム中の微粒子除去フィルターの開発”, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.1, No.2 (2002), pp.164-176.
- (10) 化学工学協会編, 化学工学便覧, 改訂4版(1978), p.119, 丸善.