

平成27年度
災害環境研究成果報告書

第2編

環境回復研究1

—放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発—

平成28年10月

国立研究開発法人国立環境研究所

第2編 環境回復研究1

-放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発-

1. 処理プロセスでの制御技術システムの開発・評価.....	1
1.1 熱挙動メカニズムの解明.....	1
1.1.1 一般廃棄物および除染廃棄物の熱処理過程におけるセシウムの挙動.....	1
1.1.2 熱処理過程におけるセシウムの化学形態の推定.....	11
1.2 洗浄・水処理技術.....	21
1.2.1 飛灰洗浄技術の開発・評価.....	21
1.2.2 浸出水処理技術の開発・評価.....	27
1.3 不燃物等減容化技術.....	33
1.3.1 はじめに.....	33
1.3.2 汚染コンクリートの放射性Cs浸透深さ解析と除染.....	34
1.3.3 コンクリートの汚染の作用機構解析.....	41
1.3.4 不燃系減容化のまとめ.....	48
1.4 コンクリート技術適用.....	50
1.4.1 はじめに.....	50
1.4.2 コンクリートへのCsの移動予測.....	53
1.4.3 焼却飛灰とコンクリートの相互作用.....	72
1.4.4 焼却飛灰のセメント固型化.....	86
1.4.5 コンクリートの焼却飛灰へのアルカリ骨材反応の診断と長期予測.....	121
1.4.6 コンクリート技術適用のまとめ.....	135
1.5 保管・貯蔵・最終処分技術.....	138
1.5.1 埋立等の設計に向けた条件パラメータの設定に関する研究.....	138
1.5.2 除染廃棄物や汚染土壌の保管・仮置技術システム.....	144
1.5.3 汚染廃棄物の埋立処分技術システム構築と評価.....	150
2. 処理施設の長期管理等技術の確立.....	156
2.1 焼却施設等の長期的な維持管理・廃止撤去手法の確立.....	156
2.1.1 実焼却等施設における放射性Cs及び安定Csの蓄積実態調査.....	156
2.1.2 耐火物中Cs等の長期的挙動評価.....	168
2.2 中間貯蔵・最終処分施設の長期的な維持管理・廃止手法の検討.....	175
2.2.1 放射性Cs含有廃棄物埋立処分場・貯蔵施設の長期挙動評価と廃止手法.....	175
2.2.2 放射性Cs長期挙動を制御するための埋立システム評価.....	181
3. フローストックモデルの構築、測定モニタリング技術等の確立.....	187
3.1 フローストックのリスク評価と管理システム開発.....	187

3.1.1	放射性物質に汚染された廃棄物等のマテリアルフローの把握.....	187
3.1.2	人口圏における放射性物質のフロー・ストックモデルの作成.....	192
3.1.3	中間貯蔵施設への汚染土壌等ロジスティクシステムの構築と評価.....	200
3.2	測定モニタリング管理手法開発.....	204
3.2.1	排ガス中放射性セシウム採取方法の検証.....	204
3.2.2	福島市における大気降下物等環境試料における放射性物質等の分析.....	212
3.2.3	焼却灰等に含まれる放射性ストロンチウム等他核種の評価.....	232
3.3	リスクコミュニケーション社会開発.....	240
3.3.1	指定廃棄物長期管理施設の候補地選定の進め方に関する一考察.....	240
3.3.2	情報源と信頼度からみるリスクコミュニケーションの課題.....	247

1. 処理プロセスでの制御技術システムの開発・評価

1.1 熱挙動メカニズムの解明

1.1.1 一般廃棄物および除染廃棄物の熱処理過程におけるセシウムの挙動

(1) はじめに

福島第一原子力発電所の事故により、東日本地域では焼却灰への放射性物質の濃縮が大きな問題になり、事故から5年以上が経過した今でもなお保管されている状況である。これまで一般廃棄物(都市ごみ)の各処理施設において放射性物質の調査がなされてきたが、灰発生量、放射性物質の濃縮の程度などは多様であり、その要因の一つとして熱処理形式の違いが挙げられる。施設内へと流入した放射性セシウム(以下、Cs)は主灰やスラグ、飛灰といった熱処理残渣として排出され、放射能濃度に応じて中間貯蔵施設での貯蔵、福島県外最終処分(10万 Bq/kg 超)、管理型処分場(あるいは長期管理施設)での処分(8000~10万 Bq/kg)、自治体による埋立処分(8000 Bq/kg 以下)を行うことになっている。そのため、熱処理過程における放射性 Cs の焼却残渣への移行、濃縮、分配過程について明らかにすることは重要であるとともに、いずれの場合でも熱処理残渣からの放射性 Cs の溶出特性を明確にする必要がある。また、放射性 Cs に汚染された一般廃棄物を既設の焼却施設で安全に処理できることは既に確認されているが¹、排ガス中の放射性 Cs の除去率と熱処理形式の違いや除染廃棄物処理時の知見については整理されていない。

また、福島県内の対策地域内においては除染活動により生じた草木類を中心とした除染廃棄物が仮置きされており今後焼却減容化が本格化すると予想される。しかし、対策地域内における除染廃棄物の焼却減容化は平成 27 年の 4 月に開始されたばかりであり、除染廃棄物を処理した際の放射性物質の挙動については十分に調査されてはいない。もし、一般廃棄物焼却とは違う挙動を示すことになれば、焼却残渣の処理方法だけでなく中間貯蔵施設内での焼却減容化処理の計画にも必要不可欠な知見となる。このような背景を踏まえ、一般廃棄物の処理施設および除染廃棄物を処理対象とした熱処理減容化において調査を行った。

(2) 一般廃棄物中に含まれる放射性物質の熱処理形式の違いによる挙動調査

1) 調査方法

本調査は関東～東北で稼働中の一般廃棄物焼却およびガス化熔融処理施設で実施した。調査対象とした各施設の概要を表 1.1-1 に、各施設の処理フローを図 1.1-1 に示す。焼却施設の中には灰熔融炉を併設した施設もあったが、本調査ではそれぞれの熱処理形式の差異の把握が目的であるため、灰熔融炉に投入する前の焼却施設部のみを調査対象とした。また、飛灰は基本的に安定化処理(脱塩処理、キレート処理)を行う前のものを対象とした。熱処理形式によって、発生する熱処理残渣は異なるが、本調査では表 1.1-1 に示した個々の残渣についてサンプリングおよび分析を行い、発生量比に基づいて足し合わせたデータを炉下排出物、もしくは飛灰として取り扱った。なお、図 1.1-1 に示したように、施設によってガス冷却塔灰などの取り扱いが異なっている点に注意が必要である。放射性核種分析では、放射性 Cs のみを対象とし、ゲルマニウム半導体検出器を用いて各種灰等の Cs-134 と Cs-137 の濃度を測定し、その合計値を放射性 Cs 濃度とした。また、熱処理残渣からの放射性 Cs の溶出性については、JIS K 0058-1 に準拠して溶出試験を行った。具体的には、試料:水=1:10 で6時間振とうした後、0.45 μm メンブレンフィルタで試料をろ過し、ろ液中の放射性 Cs 濃度から放射性 Cs 溶出率を算出した。排ガス中の放射性 Cs の除去率に

については、バグフィルタ (BF) による排ガス処理前後において排ガス中の放射性 Cs 濃度および空気流量を測定し、放射性 Cs 量を求め、BF 前後の放射性 Cs 量の差から除去率を計算した。なお、計算上 BF 後の放射性 Cs 濃度には検出下限値を用いた。

表 1.1-1 調査対象施設の概要

施設	熱処理形式	処理温度 (°C)	熱処理残渣サンプリング項目	
			炉下排出物(主灰等)	飛灰等
A	ストーカ式焼却炉	800 <	主灰	BF灰
B	ストーカ式焼却炉		主灰、溶融不適物、 磁性物、アルミ	BF灰
C	流動床式焼却炉		不燃物、鉄	ガス冷灰、BF灰
D	流動床式焼却炉		不燃物	ガス冷灰、BF灰
E	流動床式ガス化溶融炉	1300-1400	スラグ、不燃物、鉄、 アルミ	BF灰
F	シャフト炉式ガス化溶融炉	1300-1650	スラグ、磁選メタル	ガス燃焼炉灰、ボイラ灰、 減温塔灰、BF灰

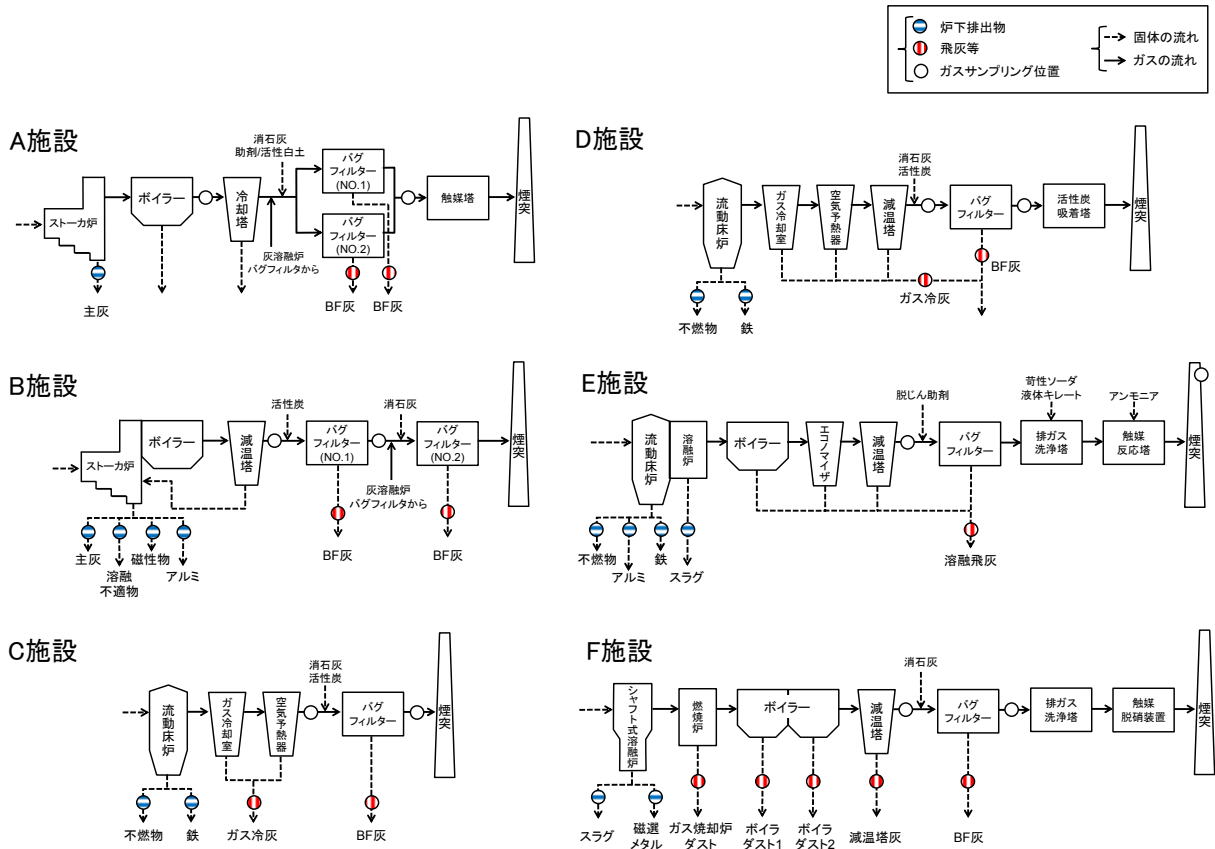


図 1.1-1 調査対象施設のフロー図

2) 結果と考察

① 熱処理残渣への放射性セシウムの分配挙動

各熱処理施設から発生した熱処理残渣について、炉下排出物と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係を図 1.1-2 に、発生量割合を図 1.1-3 に示す。炉下排出物と飛灰の放射性 Cs 濃度比は熱処理形式により異なり、ガス化溶融炉では、スラグに対する飛灰の放射性 Cs 濃度が極めて高くなった。一方、流動床式焼却炉では、ストーカ式焼却炉に比べて炉下排出物に対する飛灰の放射性 Cs 濃度は低くなった。この原因として、図 1.1-3 より流動床式焼却炉ではストーカ式焼却炉に比べて飛灰の発生割合が

高く、灰分増加によって飛灰中の放射性 Cs 濃度が希釈されたと考えられる。これら残渣の放射性 Cs 濃度と発生割合から、各残渣への放射性 Cs の分配比を算出した (図 1.1-4)。いずれの処理形式でも飛灰への分配率は高く、60~99%の放射性 Cs が飛灰へ分配された。流動床式焼却炉での熱処理残渣中の放射性 Cs の分配は、原理的に灰分の多くが飛灰として排出されることから、放射性 Cs の 8 割以上が飛灰中へ分配された。ストーカ式焼却炉では他の処理形式に比べて主灰の発生割合が多く、3 割~4 割の放射性 Cs が主灰へ分配された。ガス化溶融炉では飛灰の発生割合はストーカ式焼却炉と同じレベルであったが、放射性 Cs は高濃度に飛灰側へ移行しており、その傾向は特にシャフト式ガス化溶融炉において顕著であった。

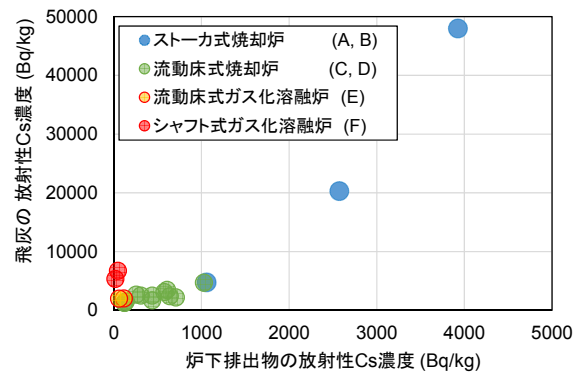


図 1.1-2 炉下排出物と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係

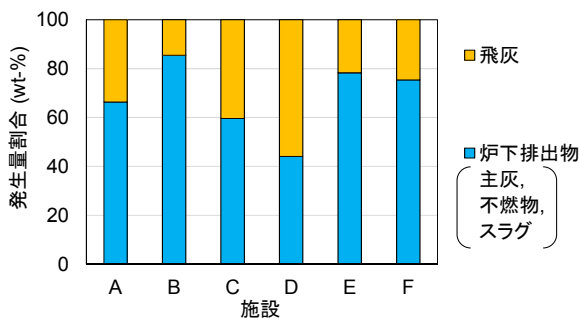


図 1.1-3 熱処理残渣の発生量割合

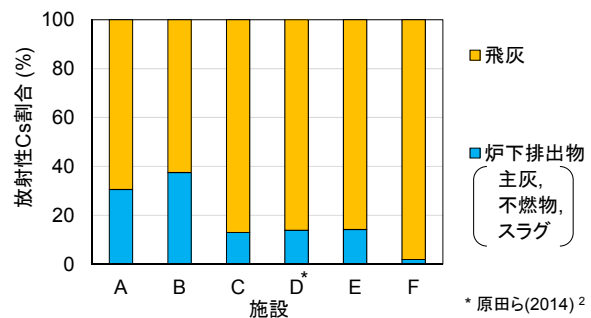


図 1.1-4 熱処理残渣中の放射性 Cs の分配比

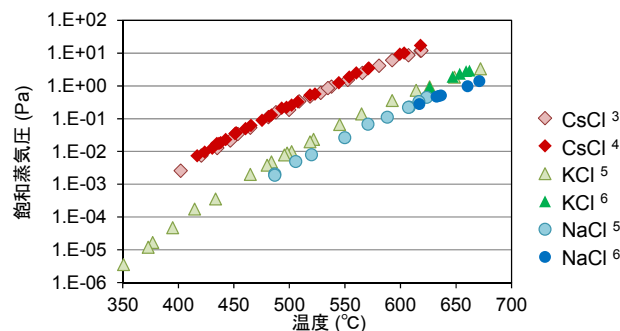


図 1.1-5 アルカリ金属塩化化合物の温度と飽和蒸気圧の関係

図 1.1-5 に主要なセシウム化合物の温度と飽和蒸気圧の関係を示す。温度が高いほどいずれのセシウム化合物の飽和蒸気圧も高くなり、処理温度が高いほどセシウム化合物は揮発しやすいことがわかる。ガス化溶融炉では処理温度が焼却炉よりも数百℃以上高温であることから、放射性Csの多くは揮発して飛灰へと移行したものと推察される。

②熱処理残渣からの放射性セシウムの溶出挙動

溶出試験の結果を図1.1-6に示す。複数の残渣が発生するものについては、発生量が多いもの(主灰、不燃物、スラグ、バグフィルタ灰)を代表試料とし溶出試験を行った。また、本溶出試験のみ施設Dの飛灰はキレート処理後の試料についての結果²である。飛灰中に含まれる放射性Csは40～100%と幅はあるものの、いずれのケースでも溶出率は高い結果となった。本結果は、これまでの他の調査¹(溶出率：64.1～89.1%)とも一致しており、熱処理形式に関係なく飛灰の保管や埋め立てにおいてこの高い溶出率には留意する必要がある。炉下排出物(主灰・不燃物・スラグ)からの放射性Csの溶出は基本的に検出下限値以下であり、これらの溶出特性は熱処理形式によらず共通していた。

放射性Csの存在形態について、1.1.2の平衡計算や、安定性Csを対象とした種々の実験により検討されている^{7,8}。炉下排出物ではCsそのものがポルサイト($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)のような鉱物形態で存在するか、もしくはスラグ相中にCsが取り込まれたと考えられるのに対し、飛灰では、焼却時にプラスチック由来等の塩素分がCsと反応して塩化セシウム(CsCl)ガスが生成され、排ガス冷却過程においてCsClガスが飛灰表面に凝結したと推定される。 $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$ はアルミナシリケート構造を持つために $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$ からのCs溶出性は非常に低く、またスラグ相は水に対して不溶性を示すことに対し、塩化セシウムは水へ溶解度が $186.5 \text{ g}/100\text{g-H}_2\text{O}$ (20°C)⁹と非常に高い。したがって、炉下排出物と飛灰の溶出率の違いはこのようなセシウム化合物の存在形態の違いによるものと考えられる。また、熱処理形式の違いによる炉下排出物および飛灰からの放射性Cs溶出特性は共通していることから、放射性Csの存在形態も同様であることが示唆される。

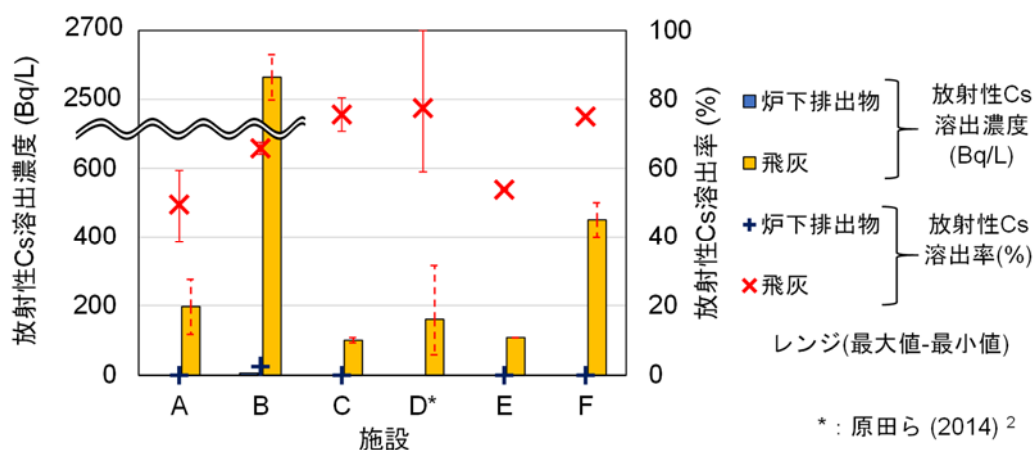


図 1.1-6 各種残渣に対する放射性Cs溶出試験結果

③ バグフィルタによる放射性セシウムの除去率

バグフィルタ前後の排ガス中の放射性Cs濃度および放射性Cs除去率を表1.1-2に示す。すべての施設でバグフィルタ後の放射性Cs濃度は検出下限値未満であった。バグフィルタ入口濃度が低い場合には放射性Cs除去率を精緻に求めることが出来ず、検出下限値をそのまま使って除去率を計算すると過小評価になることに注意を要する。バグフィルタではガス状物質の除去は困難であることから、本調査での除去率の結果からは排ガス中にガス状の放射性Csの存在は無視できると考えられる。ダイオキシン類再合成防止の観点からバグフィルタは200℃以下に保持されており、図1.1-5で示したように、Cs化合物の飽和蒸気圧は温度が低いほど低くなり、塩化セシウム(CsCl: 飛灰中のCsの存在形態として推定)の200℃での飽和蒸気圧は 10^{-9} Pa程度と極めて低く、さらに安定性Csとの存在比率を踏まえると、バグフィルタでは放射性Cs化合物は固体の状態しか存在しないとみなすことができる。つまり、排ガス中の放射性Cs化合物は固体化して飛灰に含有されることになる。したがって、飛灰を高度に除去できる設備を有していれば放射性Csの環境への放出も防ぐことが可能である。バグフィルタの温度は熱処理形式によらず同程度に保持されていることから、いずれの形式でも高い除去率を得られていると考えられる。

表 1.1-2 バグフィルタ (BF) 前後での放射性 Cs 濃度および Cs 除去率

施設	放射性Cs濃度 (Bq/Nm ³ -dry)				放射性Cs除去率 (%) ^{※2}	
	BF入口		BF出口 ^{※1}		Cs-134	Cs-137
	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137		
A	16 ^{※3}	22 ^{※3}	<0.015	<0.017	99.86<	99.88<
B	52 - 68	84 - 118	<0.015	<0.013 - <0.014	99.97< - 99.98<	99.98< - 99.99<
C	1.8 - 4.7	3.7 - 9.4	<0.012 - <0.020	<0.011 - <0.020	98.83< - 99.76<	99.43< - 99.89<
D	13 - 50 ^{※4}		<0.104	- <0.36	98.36<	- 99.61< ^{※5}
E	データなし		<0.012 - <0.013 ^{※6}	<0.011 - <0.012 ^{※6}	データなし	
F	7.1 - 9.8	12 - 17	<0.010	<0.010	99.87< - 99.90<	99.92< - 99.94<

※1 "(+ 値)"は不検出の場合の検出下限値を示す ※2 放射性Cs除去率(%) = (1-BF入口Cs量(Bq/h)/BF出口Cs量(Bq/h))*100として算出、排ガス流量は運転データもしくは実測値を使用、"(値+)"はその値よりも高いことを示す

※3 冷却塔入口で測定 ※4 原田ら(2014)[2] ※5 排ガス流量はBF前後で同じと仮定して計算 ※6 煙突で測定

(3) 除染廃棄物中焼却処理による放射性物質の挙動調査

1) 調査方法

本調査は、福島県内の仮設焼却炉において実施した。本施設では通常は除染廃棄物の他に、災害廃棄物および片付けごみの処理も行っているが、本調査では除染廃棄物の挙動把握が目的であるため調査の前日からは除染廃棄物のみを焼却処理し、2RUN (2日間) 同じ調査を行った。除

表 1.1-3 調査対象とした除染廃棄物の性状

	嵩密度 *	三 組成 *			低位発熱量**
		水分	灰分	可燃分	
	(kg/m ³)	(%)	(%)	(%)	(kJ/kg)
RUN1	838	49.8	32.7	17.6	2320
RUN2	961	58.4	25.1	16.5	1530

*環整 95 号に準拠、** JIS M8814 に準拠

染廃棄物試料は各日調査日の朝にストックヤード内の5か所から採取し、それを混合して代表試料として分析を行った。本試験で用いた除染廃棄物の性状を表 1.1-3 に、外観を図 1.1-7 に示す。

一般廃棄物の場合、ごみ発熱量は 9000 kJ/kg 程度¹⁰だが、除染廃棄物では発熱量が著しく低く、一般的な自然限界(3500 kJ/kg)を下回っていた。また、可燃性の除染廃棄物は除染作業により発生した枝葉などの草木類が中心であるが、本調査時に焼却されていた除染廃棄物は腐敗が進み茶褐色をしており混入した土壌成分との判別は困難であった。

本施設のフローを図 1.1-8 に示す。焼却温度は一般的なストーカ式焼却炉と同程度で本調査中の二次燃焼室温度は 870 ~ 882 °Cであった。主灰は磁選および振動スクリーンによる異物除去後で加湿前のものを対象試料とした。飛灰についてはキレート処理前のものを試料として用いた。主灰および飛灰はそれぞれ 1 日 8 回および 4 回採取したものを混合して代表試料とした。溶出試験は 1.1.1 (2)の一般廃棄物と同様、JIS K 0058-1 に準拠して実施し、放射性 Cs の存在形態をより詳しく推定するために、抽出能力の異なる溶媒で試料を逐次抽出する逐次抽出試験¹¹を適用した。また、元素組成および結晶構造を同定するために、波長分散型蛍光 X 線分析 ((株)リガク、Supermini 200)、X 線回折分析((株)リガク、MultiFlex)を実施した。



図 1.1-7 試験に使用した除染廃棄物の外観

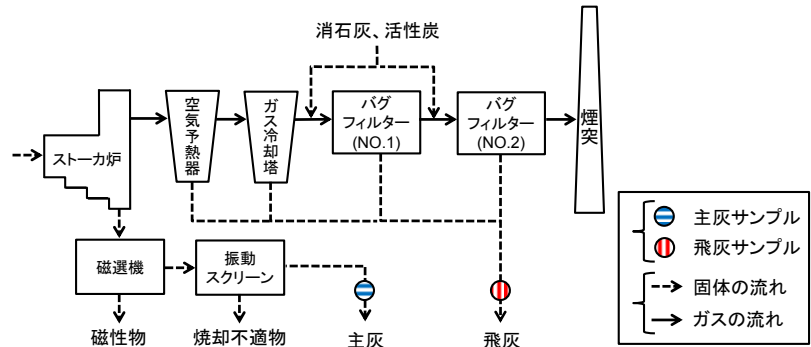


図 1.1-8 仮設焼却炉フロー図

2) 結果と考察

①熱処理残渣への放射性セシウムの移行挙動

除染廃棄物および焼却灰の放射能濃度、発生重量割合、焼却灰中の放射性 Cs 分配率を表 1.1-4 に示す。除染廃棄物では放射性 Cs の約 80%が主灰中へ分配され、主灰から排出される放射性 Cs の量が飛灰中に含まれる量よりも多い。一般廃棄物の場合、1.1.1 (2)で述べたようにストーカ式焼却炉では主灰に分配される放射性 Cs は 30 ~ 40%程度と小さく、放射性 Cs の分配挙動が大きく異なった。主灰と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係を図 1.1-9 に示す。除染廃棄物焼却の場合いずれの RUN においても飛

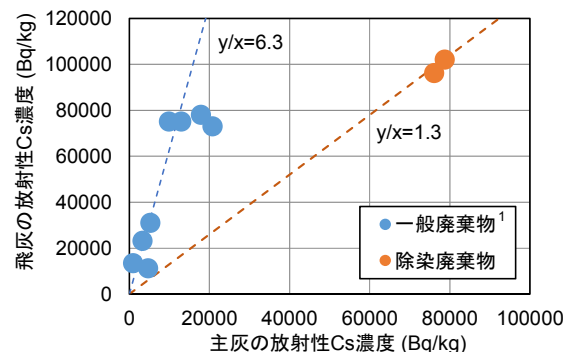


図 1.1-9 主灰と飛灰の放射性 Cs 濃度の関係

灰のほうが放射性 Cs 濃度は高くなるが、飛灰の放射性 Cs 濃度は主灰の 1.3 倍程度であり、主灰と飛灰の濃度差は小さかった。一般廃棄物の場合は飛灰中の放射性 Cs 濃度は主灰中放射性 Cs 濃度の 3~15 倍程度 (5 施設平均値 6.3 倍)¹ であり、除染廃棄物の場合には放射性 Cs は飛灰へと移行しにくい傾向があることがわかった。対策地域内ではごみ (除染廃棄物) そのものの放射性 Cs 濃度レベルも一般廃棄物に比べると高いこともあり、主灰の放射性 Cs 濃度も高くなることに留意する必要がある。また、主灰へ分配される放射性 Cs が多いという結果は、熱処理残渣中に揮発性の放射性 Cs が少ないことを示唆しており、一般廃棄物と除染廃棄物とでは焼却過程における放射性 Cs の挙動やその存在形態も異なると考えられる。

さらに、除染廃棄物焼却では主灰および飛灰の発生割合が一般廃棄物の焼却に比べると高いことも重要な特徴である。除染廃棄物の中には草木類に付着した土砂などが相当量含まれる可能性も高い。一般廃棄物の場合、焼却処理により発生する灰 (主灰および飛灰) は 10%程度の重量であるのに対し、本調査で除染廃棄物のみを焼却した場合の灰発生重量は 25%前後となり、2.5 倍も多いことがわかった。このように、除染廃棄物のみを焼却した場合の、放射性 Cs 濃度、放射性 Cs の主灰もしくは飛灰への分配率、減容化率は、今まで知見が蓄えられてきた放射性 Cs に汚染された一般廃棄物焼却のケースとは大きく異なることがわかった。

表 1.1-4 放射性 Cs 濃度および重量割合、Cs 分配率

		放射性Cs濃度 (Bq/kg)			重量	放射性Cs	
		Cs134	Cs137	T-Cs	割合 (%)	分配率 (%)	
					-	T-Cs	
除染廃棄物	投入ごみ	RUN1	5300	21200	26500	100	-
		RUN2	4180	16480	20660	100	-
	主灰	RUN1	15880	62830	78710	20.6	76.0
		RUN2	15110	61020	76140	20.1	85.2
	飛灰	RUN1	20580	81500	102080	5.0	24.0
		RUN2	19270	76910	96180	2.8	14.8
一般廃棄物*	主灰	931	1690	2620	6.2	40.0	
	飛灰	15800	27450	43250	1.2	60.0	

*1.1.1 (2)の A 施設のもの。

②熱処理残渣からの放射性セシウムの溶出挙動

表 1.1-5 に放射性 Cs の溶出試験結果を示す。除染廃棄物の焼却灰では、主灰、飛灰に関わらず放射性 Cs はほとんど溶出しなかった。飛灰溶出液の放射性 Cs 濃度は数十 Bq/L 程度あるものの、溶出率で考えると飛灰からも放射性 Cs はほとんど溶出しないとみなすことができ、一般廃棄物焼却飛灰の高い溶出率とは明らかに傾向が異なった。また、溶出液の pH および電気伝導度 (EC) に着目すると、主灰、飛灰ともに被焼却物の違いによらず溶出液の pH は 11~12 前後であったのに対し、EC は除染廃棄物焼却灰のほうが主灰、飛灰ともに一般廃棄物焼却灰の溶出液に比べて 1 桁程度低かった。これは除染廃棄物焼却灰では易溶性の無機塩が少ないことを示しており、除染廃棄物中に Cs を含む無機イオンが強固に固定化され、焼却処理過程においても固定化が維持されていたことを示唆している。

表 1.1-5 除染廃棄物焼却灰等の溶出試験結果

			溶出液放射性Cs濃度 (Bq/L)			放射性Cs溶出率 (%)			pH	EC (mS/m)
			Cs-134	Cs-137	T-Cs	Cs-134	Cs-137	T-Cs		
除染 廃棄物*	RUN1	投入物	<1.5	6.9	<8.4	<0.13	0.14	<0.14	5.9	60
		主灰	<1.7	<2.3	<4.0	<0.11	<0.04	<0.05	10.8	37
		飛灰	15.3	59.9	75.2	0.75	0.74	0.75	12	950
	RUN2	投入物	1.9	6.7	8.6	0.20	0.18	0.19	6	55
		主灰	<0.95	1.9	<2.8	<0.06	0.03	<0.04	11	32
		飛灰	11.3	47.1	58.4	0.59	0.61	0.61	12.6	940
一般 廃棄物	大迫ら, 2012	主灰	<10.0	<10.0	<20.0	<8.7	<7.7	<8.2	12.0	401
		飛灰	1270	1490	2760	91.4	80.5	85.2	12.2	3830

* n=3 の平均値。一部に検出限界値以下を含む場合は検出限界値を代用して平均値を計算し、”<” 印を付した。

③ 逐次抽出試験

焼却残渣の逐次抽出試験結果を図 1.1-10 に示す。図 1.1-10 には比較のために一般廃棄物焼却灰および公園土壌の結果¹¹⁾も示す。F1 水溶性画分は一般的に塩化物等と推定されるが、除染廃棄物焼却灰では主灰、飛灰ともにほとんど存在しなかった。

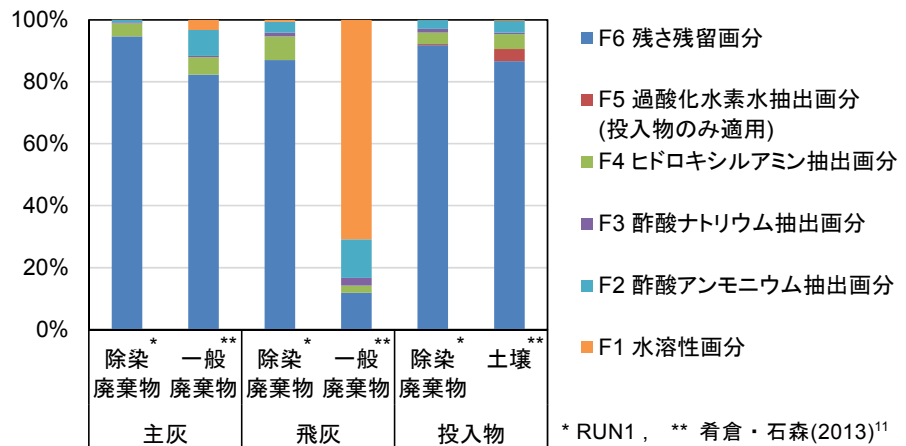


図 1.1-10 逐次抽出試験結果

また、F2～F4 で抽出液を変えた場合でも溶出する放射性 Cs の割合は除染廃棄物では主灰、飛灰ともに小さかった。除染廃棄物の焼却灰は放射性 Cs の溶出性の観点からは一般廃棄物の焼却灰と比べて安全であると言え、濃度レベルだけでなく放射性 Cs の溶出特性、存在形態も主灰と飛灰で類似していることから除染廃棄物焼却灰は、灰の種類(主灰、飛灰)によらず同様な取扱いが可能になると考えられる。また、焼却前の除染廃棄物の放射性 Cs の形態は、公園土壌と類似しており、除染廃棄物への土壌の混入が示唆された。

④ 飛灰由来の推定

除染廃棄物および一般廃棄物の焼却灰の元素組成を表 1.1-6 に示す。除染廃棄物と一般廃棄物とでは特に塩素濃度の違いが顕著であった。前述したように一般廃棄物ではプラスチック類などの混入により飛灰の塩素濃度が高くなり、飛灰中の放射性 Cs は CsCl の形態で存在すると推定されている。

表 1.1-6 主灰および飛灰の元素組成

		Si	Al	Fe	K	Ca	Cl
除染廃棄物*	主灰	29.3	10.1	3.3	3.0	2.5	0.01
	飛灰	10.5	6.2	2.9	1.2	20.6	1.1
一般廃棄物**	主灰	19.4	7.5	6.0	2.0	15.1	1.8
	飛灰	2.6	2.0	1.1	10.2	18.3	30.1

* RUN1, **1.1.1(2)の A 施設

一方、除染廃棄物のみを焼却した場合は可燃物中に極端に塩素源が少ないため主灰、飛灰とも塩素濃度は非常に低くなる。除染廃棄物飛灰では溶出率が極めて低いことを勘案す

ると、飛灰中の放射性 Cs は CsCl としては存在していないと考えられる。また、Cl が存在しない場合には CsOH や Cs₂SO₄ ガスの発生も考えられるが¹²⁻¹⁴、除染廃棄物飛灰は溶出性が低いことからこれらの化合物形態としての存在も無視できると考えられる。このように、Cs は揮発せずに燃えがらに残留するため除染廃棄物では主灰の放射性 Cs 濃度が高くなると考えられる。さらに元素組成に着目すると、除染廃棄物の主灰と飛灰の間には、一般廃棄物の主灰と飛灰のような顕著な元素組成の差はない。すなわち、排ガス中和のために添加される Ca の影響を除外すると、除染廃棄物の飛灰組成は主灰組成に近いと考えられる。したがって、除染廃棄物焼却では、飛灰中の放射性 Cs の由来は主灰の巻き上がり成分が主であると推察される。次に、飛灰の由来を推定するために、各々の焼却灰の X 線回折分析を行った(図 1.1-11)。除染廃棄物主灰(2 mm ふりい下分)では、非常に強度の強い石英(Quartz; SiO₂)のピークが見られるほか、斜長石(Albite; NaAlSi₃O₈)、微斜長石(Microcline; KAlSi₃O₈)が確認された。除染廃棄物飛灰でも同様の結晶構造が確認されたが、主灰に比べると強度は小さかった。しかし、主灰のうち飛灰と同程度の細粒分(20 μm ふりい下)の X 線回折パターンは、強度を含めて飛灰と非常に似たパターンを示した。これは、除染廃棄物焼却では、主灰が巻き上げられて排ガス中に含まれて飛灰になったことを示唆し、飛灰と主灰とで濃度レベルおよび溶出特性が非常に近い理由を示している。また、石英や斜長石は福島県内の土壌の主要鉱物であり¹⁵、除染廃棄物に混入した土壌が主灰に残存し飛灰へと巻き上がったことを示唆している。

このように、除染廃棄物の飛灰中の放射性 Cs の由来は主灰成分の巻き上がりだと推定され、揮発した塩類の冷却過程により生じる一般廃棄物の飛灰中の放射性 Cs とは異なると考えられる。したがって、保管や処分方法も被焼却物によって考慮する必要がある。

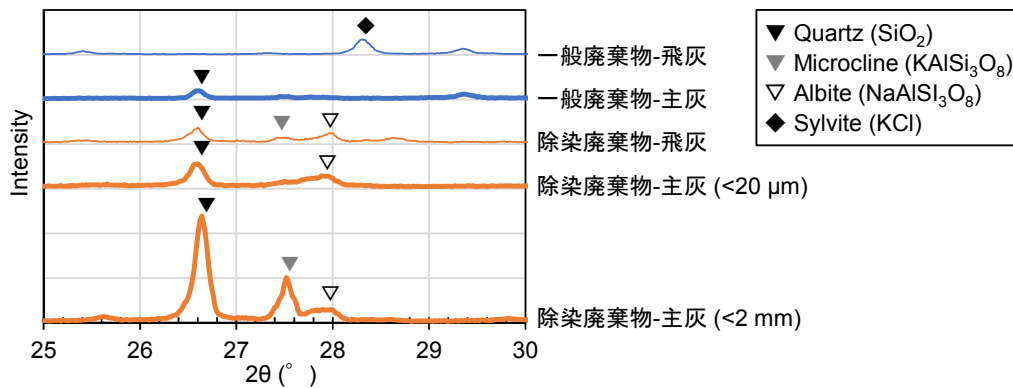


図 1.1-11 主灰および飛灰の X 線回折パターン

(4) まとめ（熱処理過程におけるセシウムの挙動）

- 1) 熱処理残渣への放射性 Cs の分配挙動：一般廃棄物焼却時には、放射性 Cs の 60～99%が飛灰へ分配され、飛灰への分配率は処理温度が高いガス化溶融炉ではより高くなった。一方、除染廃棄物を焼却した際には、放射性 Cs は飛灰よりもむしろ主灰へ分配され、被焼却物の違いにより放射性 Cs の分配挙動は異なった。
- 2) 熱処理残渣からの放射性 Cs の溶出挙動：一般廃棄物焼却から生じた飛灰については、熱処理形式によらず高い溶出率 (40-100%) を示した。一方、除染廃棄物焼却飛灰からの溶出率は 1%未満と極めて低かった。なお、焼却主灰からの溶出率は被焼却物によらず低く、特に、除染廃棄物焼却主灰からの溶出率は 0.1%未満と極めて低かった。

- 3) 飛灰中の放射性 Cs の由来の推定：一般廃棄物焼却では、ごみ中の塩素源により主に CsCl として揮発した放射性 Cs がガス冷却過程で飛灰に凝縮したと推定される。一方、除染廃棄物焼却では、揮発性の放射性 Cs は少なく、放射性 Cs を含む主灰の巻き上がりが飛灰における放射性 Cs の由来と考えられる。

参考文献

1. 大迫 政浩、倉持 秀敏、肴倉 宏史：放射性セシウムを含む廃棄物の焼却処理。都市清掃、65、23-27 (2012)
2. 原田 健一、倉持 秀敏、八巻 徹：放射性物質に汚染された牧草の焼却実証事業について (事例報告)。都市清掃、67 (319)、270-276 (2014)
3. Scheer, M. D. and Fine J.: Entropies, Heats of Sublimation, and Dissociation Energies of the Cesium Halides. *J.Chem.Phys.*, 36, 1647-1653 (1962)
4. Cogin, G. E. and Kimball, G. E.: The Vapor Pressures of Some Alkali Halides. *J.Chem.Phys.*, 16, 1035-1048 (1948)
5. Zimm, B. H. and Mayer, J. E.: Vapor Pressures, Heats of Vaporization, and Entropies of Some Alkali Halides. *J.Chem.Phys.*, 12, 362-369 (1944)
6. Mayer, J. E. and Wintner, I. H.: Measurements of Low Vapor Pressures of Alkali Halide. *J.Chem.Phys.*, 6, 301-306 (1938)
7. Shiota, K., Takaoka, M., Fujimori, T.; Oshita, K.; Terada, Y. Cesium Speciation in Dust from Municipal Solid Waste and Sewage Sludge Incineration by Synchrotron Radiation Micro-X-ray, *Anal. Chem.*, 87, 11249-11254 (2015)
8. Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., Kakuta, Y., Kawano, T.: Cesium distribution and phases in proxy experiments on the incineration of radioactively contaminated waste from the Fukushima area. *J. Environ. Radioact.*, 136, 76-84 (2014)
9. Linke, W. F.: Solubilities : *Inorganic and Metal-Organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature*, Edition 4, Volume 1, Pt.2; UMI: Michigan, pp 880 (2002)
10. 環境省、廃棄物処理技術情報、一般廃棄物処理実態調査結果、
http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/h26/data/seibi/facility/01.xlsx (2016/4/14 閲覧)
11. 肴倉 宏史、石森 洋行：廃棄物等からの放射性製有無の溶出特性と溶出試験。廃棄物資源循環学会誌、24 (4)、274-280 (2013)
12. Burger, L. L.: *A Chemical Basis for the Partitioning of Radionuclides in Incinerator Operation*, PNL-10364, US-DOE (1995)
13. Yang, H. C., Eun, H. C., Lee, D. G., Oh, W. Z., Lee, K.: W. Behavior of Radioactive Elements during Thermal Treatment of Nuclear Graphite Waste Thermodynamic Model Analysis, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 42 (10), 869-876 (2005)
14. Yoo, J. I., Shinagawa, T., Wood, J. P., Linak, W. P., Santoianni, D. A., King, C.J., Seo, Y. C., Wendt, J. O. L.: High-Temperature Sorption of Cesium and Strontium on Dispersed Kaolinite Powders. *Environ. Sci. Technol.*, 39, 5087-5094 (2005)
15. Saito, T., Makino, H., Tanaka, S.: Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for their long-term behavior. *J. Environ. Radioact.*, 138, 11-18 (2014)

1.1.2 熱処理過程におけるセシウムの化学形態の推定

(1)はじめに

前節で示されているように、放射性物質を含む廃棄物を焼却・溶融によって減容化すると放射性物質は焼却灰や溶融スラグなどの残渣に蓄積するため、それらの処分を検討するには残渣における放射性物質の濃度、溶出特性、化学形態が重要である。本節では、焼却処理による各種廃棄物に含まれるセシウムの化学形態の変化について、熱力学平衡計算を用いて推定した結果について報告する。

(2)計算方法

1)計算の概要

熱力学平衡計算とは、物質をある所定の温度・圧力においた時の平衡化合物組成を計算するものである。具体的には、生成する可能性がある化合物をリストアップし、同時に計算対象となる物質の元素組成と温度・圧力などの情報を入力し、平衡計算プログラムを実行する。プログラム上では、リスト内の各化合物のモル数あるいは気相分圧、溶体中のモル分率等を変数として、系の全 Gibbs エネルギーが最小となるようなモル数とモル分率を算出する。計算に必要なものは、処理対象物の元素組成、設定条件（温度・圧力等）と、生成する可能性がある全ての純物質と溶体（溶融塩、溶融スラグ、固溶体など）の熱力学データ式である。処理対象物には、廃棄物だけではなく燃焼用の空気、薬剤も含まれる。本計算では、これまでと同様に、計算プログラムとして GTT-Technologies 社の FactSage(ver7.0)¹ を、熱力学データベースとして同社のデータベース FactPS、FToxid、FTsalt に加えて、独自に開発した熱処理計算用データベースを用いた。熱処理計算用データベースには、セシウムの酸化物、アルミノシリケート、シリケート等の化合物に関する熱力学データの文献値もしくは推算値が含まれている。熱処理計算用データベースに含めた化合物の一覧とデータ（標準生成エンタルピー $\Delta_f H^\circ$ 、標準モルエントロピー S° 、定圧モル比熱 $C_p(T)$ ）の出典²⁻¹³を表 1.1-7 に示す。表中で est とあるものは推算値であり、正確な実測値が得られるまでの暫定値として用いるべきものである。各データの推算方法と値は昨年度の報告書¹⁴に記した。

表 1.1-7 熱処理計算用データベースに含めた化合物一覧とその出典

	Phase	$\Delta_f H^\circ / \text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$	$S^\circ / \text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	$C_p(T) / \text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
$\text{Cs}_2\text{SiO}_3, \text{Cs}_2\text{Si}_2\text{O}_5, \text{Cs}_2\text{Si}_4\text{O}_9$	(s),(l)	ref2	ref2	ref2
$\text{CsAlSiO}_4,$ $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6,$ $\text{CsAlSi}_5\text{O}_{12},$ slag phase (est)	(s)	ref3 ref5 ref3 ^{*1} est ^{*2}	ref4 ref5 ref4 est ^{*2}	ref12 (est)
Cs_xO_y	(s),(l)	ref6	ref6	ref6
$\text{CsO}_2, \text{Cs}_2\text{O}_2, \text{CsO}_2, \text{Cs}_2\text{O}$	(g)	ref7-10	ref13 (est)	ref13 (est)
K-phosphates	(s)	ref11	ref11	ref11

^{*1} $\text{CsAlSi}_5\text{O}_{12}$ の標準生成エンタルピーは、既往研究による $\text{CsAlSi}_5\text{O}_{12}$ が少なくとも 1200°C まで乾燥空气中で安定であるという情報を表せるように ref3 の値(推算値)から $65 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ を引いたものを用いた。^{*2} 溶融スラグ相中の活量係数はそれぞれ、予備計算によりカリウムの活量係数を算出してから、 $\gamma_{\text{CsCl}} = \gamma_{\text{KCl}}, \gamma_{\text{Cs}_2\text{O}} = \gamma_{\text{K}_2\text{O}}/100$ と仮定して計算した。

2) 廃棄物の組成について

一般廃棄物、下水汚泥、土壌、バイオマス、除染廃棄物の元素組成の一例を表 1.1-8 に示す。以下の計算では、ごみ 1 kg (湿ベース) に対して空気比 1.6 相当の空気 (O₂ 21%, N₂ 89%とした) を用いて熱処理した際の 850-1200°Cにおける平衡化合物組成を計算した。なお加熱処理において放射性 Cs は安定 Cs と同じ挙動をとると考えられるため、安定 Cs の濃度を用いて計算した。

表 1.1-8 各種廃棄物の三成分と元素組成 (単位: mass%、水分以外は乾ベース)

	一般 廃棄物	下水 汚泥	土壌 ¹⁵ (真砂土)	広葉樹落葉 ¹⁶ (H24 報告書)	小枝 ¹⁶ (H24 報告書)	稲わら ¹⁷ (H26 報告書)	除染 廃棄物
水分	43.1	81.2	(0.0)	2.5	2.6	(2.5)	45.4
灰分	14.3	21.6	(100)	15	4.0	11.5	65.0
可燃分	85.7	78.4	(0.0)	85	96	88.5	25.0
C	48.4	40.1	(0.0)	38.7	46.7	(38.7)	13.5
H	7.29	6.1	(0.0)	5.6	6.7	(5.6)	2.78
N	0.85	4.9	(0.0)	1.0	0.57	(1.0)	0.83
O	28.4	26.0	53.4	47.1	44.6	(47.1)	17.7
S	0.074	1.2	0.01	0.099	0.038	0.075	0.07
Cl	0.81	0.14	0.03	0.138	0.071	0.076	0.05
Na	0.43 ^c	0.47	2.1	0.064	0.027	0.009	0.47
K	0.29 ^c	0.34	2.0	0.87	0.41	1.3	1.3
Ca	2.6 ^c	0.99	1.8	2.6	0.55	0.23	1.5
Mg	0.16 ^c	0.23	-	0.40	0.090	0.11	0.43
Si	2.2 ^d	2.7	31.7	2.8	0.12	4.15	17
Fe	3.3 ^c	3.2 ⁱ	2.8	0.021	0.015	0.017	2.2
Al	1.4 ^c	1.7	6.2	0.036	0.037	0.011	4.8
P	0.12	2.1	0.048	0.12	0.065	0.076	0.096
B	<0.005	0.0021	-	-	-	-	-
Cs (mg/kg)	0.34	0.32	3.7	1.0	1.0	0.015	2.2

-: 未測定、()内の数字は該当の値が未測定のため推定した値である。土壌については水分と有機分を 0 とし、小枝については水分と有機物の元素組成を広葉樹落葉と同じとして算出した。その他の未測定分は 0 とした。

(3) 結果と考察

熱力学平衡計算によるそれぞれの廃棄物の主な平衡生成物を図 1.1-12 に、アルカリ金属の化合物形態を図 1.1-13 に示す。また Cs の挙動把握において加熱処理時の熔融相の有無は重要であるため、その簡単な判定方法として CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系の液相温度の計算状態図に表 1.1-8 の組成をプロットしたものを図 1.1-14 に示した。以降では、廃棄物の種類別に計算結果の妥当性の評価を行うとともに、計算から推定される Cs の存在化学形態について考察した。

1) 一般廃棄物

一般廃棄物の組成は試料の採取施設や採取時期により若干の変動があるが、 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系三成分系の状態図(図 1.1-14)より融点は $1450\sim 1500^\circ\text{C}$ と推定され、通常のごみ焼却炉の温度ではごみの灰分の全体的な溶融は起こらないと予想される。ただし発熱量の高い可燃物の近傍では共融点の温度(1165°C ^{18,19}、 1265°C ^{18,19})より高温となって、灰の一部が溶融すると考えられる。また三成分以外の成分によって共融点の温度が変わることも考えられる。平衡計算では、焼却温度における主な生成物は 1100°C でアルミノシリケート溶融相、メリライト、長石、酸化鉄および気体状の塩化物と推定された。(図 1.1-12(a))これは既往の焼却灰の分析研究で同定されている一般廃棄物の焼却主灰・飛灰^{20,21}の成分と概ね一致するが、主灰の主成分である石英が計算では平衡生成物として得られないなどの違いもみられた。一般廃棄物には不燃物(土砂・セラミクス・金属)も含まれると考えられるが、不燃物に含まれる石英・長石等の融点の高い鉱物は焼却処理ではあまり変化しないで排出されるとされており^{20,21}、またストーカ焼却主灰や落じん灰には金属アルミニウムの溶融物があるとの報告もあるため²¹、実際の主灰には平衡計算による推定結果に加えて不燃物由来の石英、長石と金属が含まれると考えられ、これによって焼却主灰の成分を説明できる。アルカリ金属の生成物として推定されるものはアルミノシリケートの固体・溶融相と気体状の塩化物であり高温で気体の割合は増加した(図 1.1-13(a))。炉内で発生する気体の全てと固体の何割かが火格子からの巻き上げにより二次燃焼炉に移行し飛灰になると考えると、1.1.1(2)節に示された飛灰からの比較的高いCsの溶出率、主灰からの低いCs溶出率、高温の熱処理でCsの飛灰への分配率が増すこと、およびCsの挙動に関する既往の知見^{22,23}が説明できる。

2) 下水汚泥

下水汚泥は一般廃棄物に比べてケイ素(Si)、リン(P)が多く、塩素(Cl)が少ない。下水の処理に用いた薬剤の種類により灰分の組成は異なる。三成分系状態図による融点は約 $1400\sim 1700^\circ\text{C}$ であり、プロットが共融点から離れていることと、下水汚泥の流動床式焼却炉による焼却温度は $800\sim 900^\circ\text{C}$ と低いことから、アルミノシリケートの溶融相は少ないと予想される。計算による主な生成物は石英、 AlPO_4 、酸化鉄であり(図 1.1-12(b))、既往研究による焼却灰の組成(石英、リン酸Ca、酸化鉄、生石灰、 AlPO_4 等)^{24,25}とほぼ一致した。なお石英は焼却によって生成するほかに、流動砂由来あるいは汚泥中の不燃物由来のものである可能性がある。アルカリ金属の主な化学形態は、アルミノシリケートおよびNa・KとCaのリン酸塩の複塩であり、焼却温度ではガス態のアルカリ金属はほとんど生成しないと推定された。(図 1.1-13(b))Csについては、アルミノシリケートに加えて、Na、Kの挙動から類推するとCsとCaのリン酸塩の複塩も生成する可能性が考えられるが、熱力学データがないため平衡計算による確認はできなかった。ただしCsとCaの複塩として $\text{CsCa}_{10}(\text{PO}_4)_7$ ²⁶、 $\text{Cs}_2\text{CaP}_2\text{O}_7$ ²⁷が存在することが報告されており、またリン酸Caは水に難溶²⁸でありCsとCaのリン酸塩複塩も難溶と考えられるため、Csがアルミノシリケート、リン酸塩複塩のいずれであっても、放射性Csの下水汚泥焼却灰からの溶出率が低いこととは矛盾しない。

3) 土壌

計算に用いた真砂土は、大部分がケイ素(Si)と酸素(O)であり¹⁴、三成分系の状態図による融点は約 1700°C である。状態図から予想される焼却温度における形態は、石英・長石・ムライト等で

あり、平衡計算による主な平衡生成物も石英と長石であった。(図 1.1-12(c)) アルカリ金属はほぼ全てがアルミノシリケートとなって、塩素が少ないため塩化物のガスはほとんど生成しないと推定された。(図 1.1-13(c)) これは既往の土壌加熱試験の結果²⁹と合う。なお実際の土壌の加熱処理では、粘土鉱物等の水を含む鉱物や融点が比較的低い成分から変化が起これると考えられ、特に短時間の加熱では、それらの変化によって生成する非晶質相に Cs が含まれる可能性が考えられる。

4) バイオマス

バイオマスの組成は種類によって異なるが、塩素(Cl)量は土壌や下水汚泥と一般廃棄物の中間量であり、カリウム(K)が他の処理物に比べて多い傾向がある。融点は CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系の状態図では広葉樹落葉が 1350℃、小枝は 2000℃、稲わらが 1700℃であるが、K₂O-CaO-SiO₂ 系の状態図^{18,30}に組成データをプロットすると、広葉樹落葉が 1400~1450℃、稲わらが 1300℃であり、小枝の組成の融点は不明であった。稲わらはカリウム(K)が多く Ca が少ないため、融点の低いカリウムシリケートの溶融相の生成が予想される。また広葉樹落葉には Al が比較的多いが、これは土壌由来という可能性がある。平衡計算による主な平衡化合物は、広葉樹落葉は石英と SiO₂ を主とする溶融相、小枝では CaO、SiO₂、CaCO₃、K₂CO₃ を主とする溶融相、稲わらは結晶の SiO₂ と SiO₂ を主とする溶融相であった。(図 1.1-12(d)-(f)) 昨年度の報告書¹⁷による実際のバイオマス灰の成分は、広葉樹落葉の灰は生石灰・CaCO₃・石英(cristobalite)・非晶質相、小枝の灰は CaCO₃、稲わらの灰は cristobalite・非晶質相であり、計算から予測される主な生成物とほぼ一致する。

計算によるアルカリ金属の推定化学形態は、アルミノシリケートの固体とシリケートの溶融相に溶解した状態、気体状の塩化物・水酸化物であり、高温ほど気体の割合が増加した。(図 1.1-13(d)-(f)) 同じ温度で比較した気体の発生割合は、Na、K では、小枝>広葉樹落葉>稲わらの順に多く、これは昨年の報告書¹⁷における Cs の揮散率(1-灰への移行率)と同じであった。アルカリ金属は溶融相に溶解しやすいと考えられるが、溶融相の量は、稲わら>広葉樹落葉>小枝の順に多いため、溶融相の少ない小枝でアルカリ金属(Na、K)の揮散率が高くなったものと推察される。ただし昨年までの報告書^{16,17}よりアルカリ金属の揮散率には塩素(Cl)の量も重要であることが分かっている。なお、Cs は他のアルカリ金属と同様に溶融相に溶解すると考えられるが、稲わらの計算では予想に反して Cs のみ大部分が気体となるという結果が得られた。これは計算に用いた Cs の溶融相における活量係数の推算方法(表 1.1-7 脚注に掲載)に改良すべき点があるためと考えられ今後の課題である。

5) 除染廃棄物

除染廃棄物は主に土壌とバイオマスであると考えられ、バイオマスと土壌の混合比率によって焼却灰の組成が変わる。三成分状態図による灰分の融点は 1500~1700℃であり、共融点から遠いため溶融相はあまり生成しないと予想される。平衡計算による主な生成物は石英と長石であり、1.1.1(3)節に示されている実際の除染廃棄物の焼却主灰・飛灰の組成を再現できているが、1.1.1(3)節にもあるように、石英と長石は土壌の主成分であるため、除染廃棄物に混入した土壌が主灰に残存し飛灰へと巻き上がったものとも考えられる。計算ではアルカリ金属は、土壌の計算の場合と同様に、ほぼすべてアルミノシリケートであり、気体はほとんど生成しないと推定された。(図 1.1-14(g)) これも 1.1.1(3)節の調査結果を説明できる。

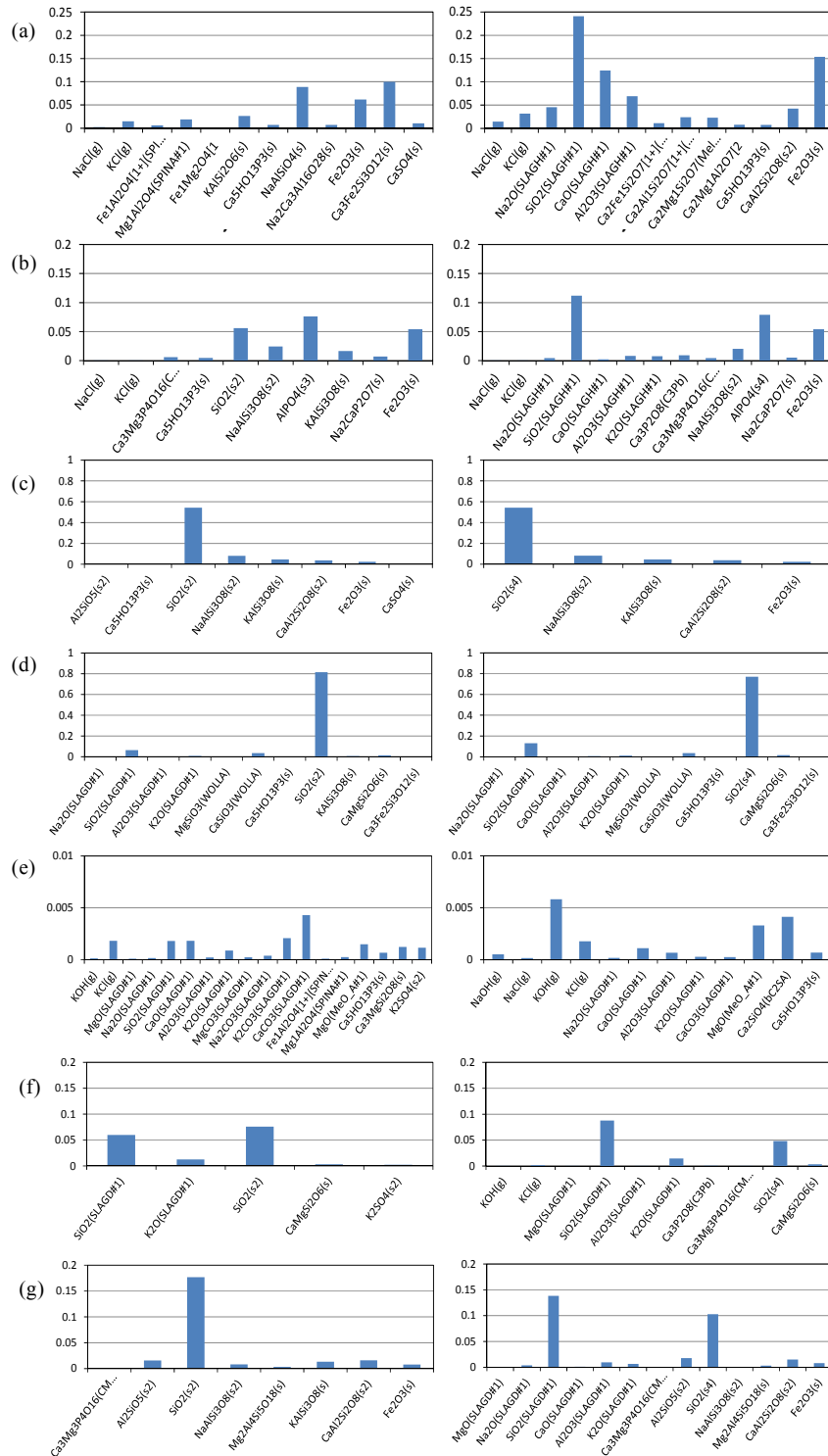


図 1.1-12 熱力学平衡計算による各種廃棄物の主な生成物組成 (左 : 850°C、右 : 1100°C)
 (a)一般廃棄物、(b)下水汚泥、(c)土壌、(d)広葉樹落葉、(e)小枝、(f)稲わら、(g)除染廃棄物
 横軸項目について、(s): 固体、(slag): 熔融スラグ相、(g): 気体を表す

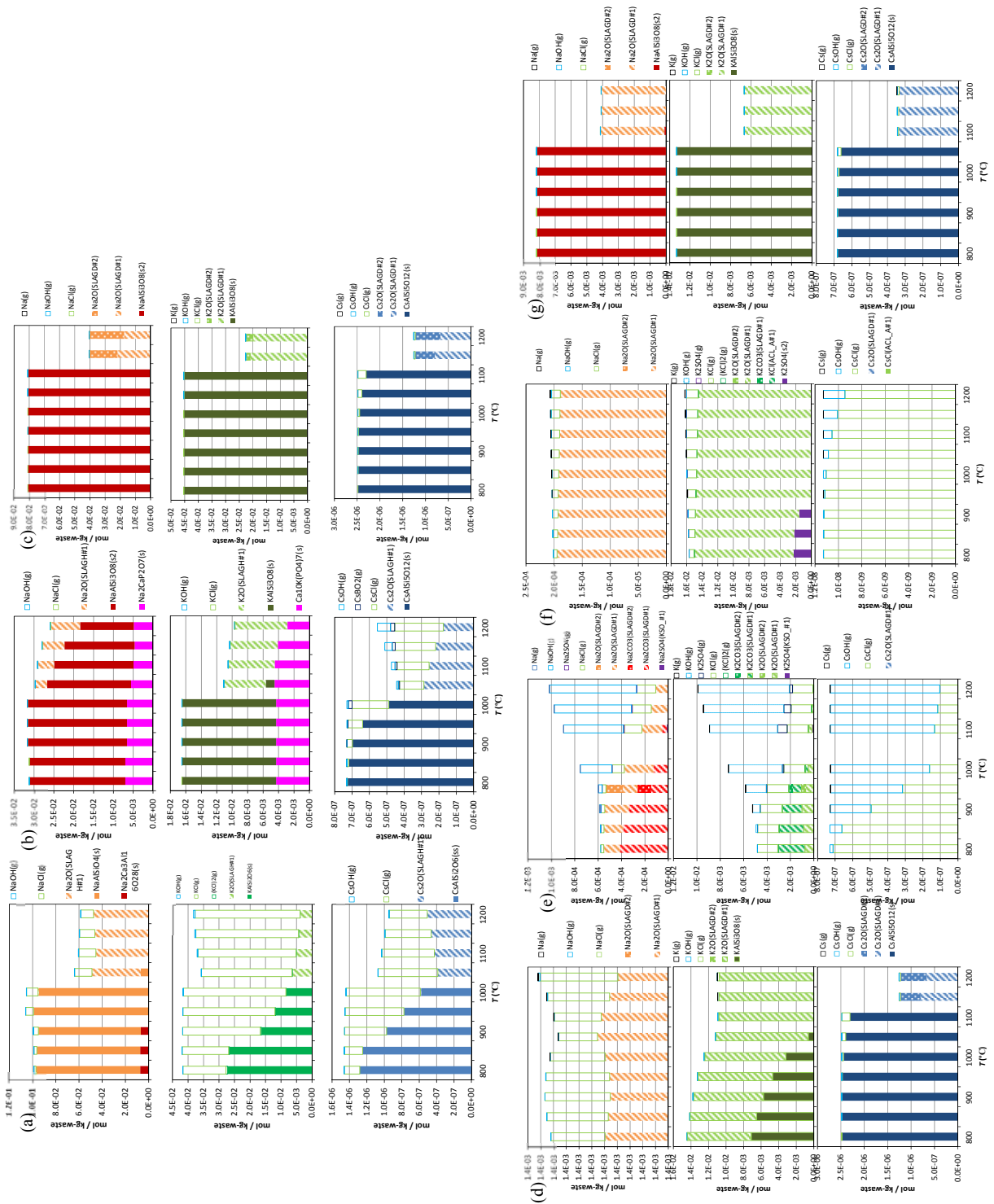


図 1.1-13 熱力学平衡計算による各種廃棄物のアルカリ金属の生成物

(a)一般廃棄物、(b)下水汚泥、(c)土壌、(d)広葉樹落葉、(e)小枝、(f)稲わら、(g)除染廃棄物
 横軸項目について、(s): 固体、(slag): 熔融スラグ相、(g): 気体を表す

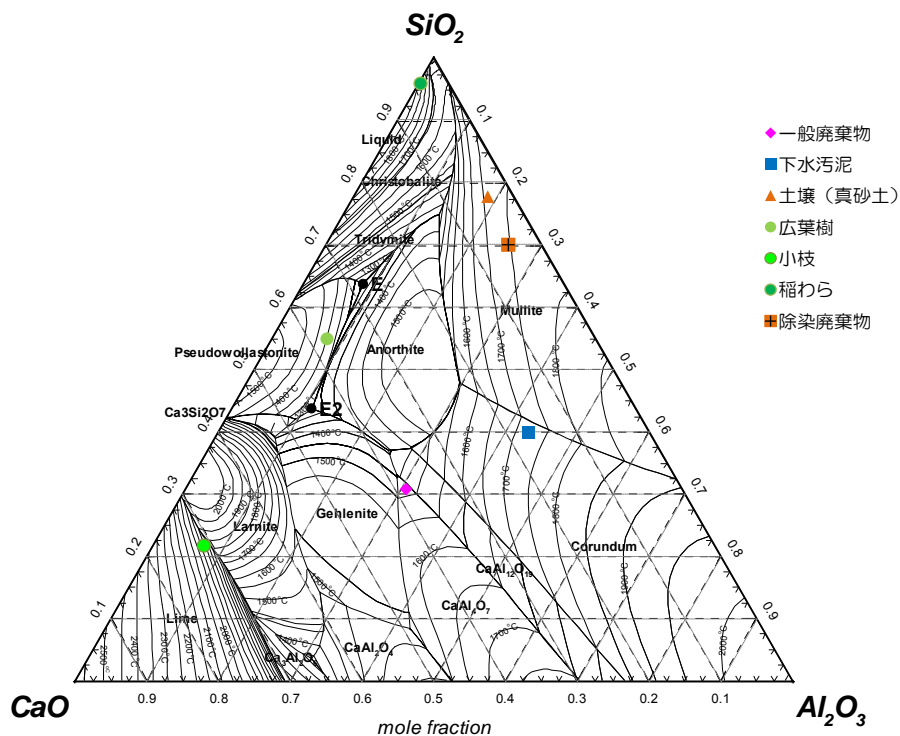


図 1.1-14 CaO-SiO₂-Al₂O₃ 系の計算状態図と廃棄物の組成

図中の数値は融点 (単位: °C) を、E、E2 は共融点を表す。共融温度は E 点: 1184°C (実測 1165°C^{18,19})、E2 点: 1257°C (実測 1265°C^{18,19}) であった。状態図は FactSage7.0 を用いて計算した。

(4) まとめ

熱力学平衡計算と既往の知見との比較を表 1.1-9 にまとめる。計算から推定された各廃棄物の熱処理時における Cs の挙動と化学形態は以下の通りであった。

- 1) 一般廃棄物: 焼却炉温度における Cs の推定化学形態は、アルミノシリケート固体、熔融相へ溶解した形態および気体状の塩化物であった。Cs の飛灰への分配率と飛灰からの溶出率とも比較的高いのは、気体状の塩化セシウムが炉内で発生するためと考えられる。
- 2) バイオマスの専焼: 焼却炉温度における Cs の推定化学形態は、アルミノシリケート固体、熔融相へ溶解した形態および気体状の塩化物、水酸化物などであった。炉内でシリケート熔融相が多く生成すると、アルカリ金属が熔融相に溶解して揮散が抑えられ、飛灰への分配率が低くなると考えられる。
- 3) 下水汚泥: 焼却炉温度における Cs の推定化学形態は、アルミノシリケート固体および微量の気体状の塩化物、水酸化物などであったが、他のアルカリ金属の挙動の計算と比較すると Ca と Cs のリン酸塩複塩が存在する可能性も考えられる。塩素の量が少ないため気体状のアルカリ金属化合物は少ないと推定され、灰からの溶出率が低いことを説明できる。
- 4) 土壌、除染廃棄物 (一般廃棄物との混焼があまりない場合): 熱処理温度における Cs の推定化学形態は、添加剤などを加えないで加熱した場合、Cs はアルミノシリケート固体となると推定された。

表 1.1-9 各種廃棄物の生成物

	一般廃棄物	下水汚泥	土壌 (真砂土)	広葉樹落葉 H24 報告書	小枝 H24 報告書	稲わら H26 報告書	除染廃棄物
実 主 測 成 分	(主灰) ^{20,21} L, Cal, C2S, CS, Mel, Q, Fd, An, Gy, 非晶質相 (飛灰) ^{20,21} Sy, Ha, An, Gy, Po, Cal, Q, Fd	(流動床灰) ^{24,25} Q, Fd, Wk, AP, FP	-	(残渣) ¹⁶ L, Cal, Cb, 非晶質相	(残渣) ¹⁶ L, Cal	(残渣) ¹⁷ Cb, Mel, 非晶質相	(主灰) Q, Fd (飛灰) Q, Fd
	CS, C2S, Mel, Fd CaO, Al ₂ O ₃ , SiO ₂ を 主とする熔融相	Q, Fd, Wk, AP	Q, Fd	Cb, SiO ₂ を主と する熔融相	CaO, CaCO ₃ , SiO ₂ , K ₂ CO ₃ を主とする 熔融相	CaO, SiO ₂ を主とする 熔融相	Q, Fd
	飛灰への分配率 ～60%, 主灰溶出 率～0%, 飛灰溶 出率～60% (主灰) 非晶質相 ²² , (飛灰) CsCl ²³	流動床灰の溶出 率～0% (流動床灰) アルミノシリケ ート ²³	600- 1300℃揮 散率 -9.8- 14% ²⁹ アルミノ シリケー ト固体 ²⁹	850℃揮散率 45% ¹⁶ ,	850℃揮散率 81% ¹⁶ ,	850℃揮散率 ～20% ¹⁷ ,	飛灰への分配 率～20%, 主灰 溶出率～0%, 飛灰溶出率～ 0%
金 属 計 算	アルミノシリケ ート固体・熔融相, 塩化物の気体	アルミノシリケ ート固体, Ca と のリン酸複塩	アルミノ シリケー ト固体	アルミノシ リケート固 体・熔融相, 塩化物の気 体	アルミノシ リケート固 体・熔融相, 塩化物・水酸 化物 [†] の気体	アルミノシ リケート固 体・熔融相, (塩化物の気 体*)	アルミノシリ ケート固体

An: anhydrite (CaSO₄), Cal: calcite (CaCO₃), Cb: cristobalite (SiO₂) CS: wollastonite (CaSiO₃), C2S: larnite (Ca₂SiO₄), Fd: feldspar (CaAlSi₂O₈, KAlSi₃O₈, NaAlSi₃O₈, 長石), Gy: gypsum (CaSO₄·2H₂O), Ha: halite (NaCl), L: lime (CaO, 生石灰), Mel: melilite (gehlenite, akermanite), Po: poltrandite (Ca(OH)₂), Q: quartz (SiO₂, 石英), Sy: sylvite (KCl), Wk: whitlockite, AP: AlPO₄, FP: FePO₄,
⁵ 放射性 Cs の値 (Bq から計算) † 水酸化物の気体が他の排ガス成分とともに冷却されると、まず水酸化物、炭酸塩、塩化物等の固体になると考えられるが、水酸化物の固体は空気中の二酸化炭素と反応して炭酸塩になると考えられる。*Cs の場合だけ多くが塩化物の気体になるという計算結果が得られた。他のアルカリと挙動が異なる原因については本文に記載した。

参考文献

- Bale, C.W., Belisle, E., Chartrand, P., Decterov, S.A., Eriksson, G., Hack, K., Jung, I.-H., Kang, Y.-B., Melançon, J., Pelton, A.D., Robelin, C., Petersen, S.(2009) CALPHAD: Comput. Coupling Phase Diagrams Thermochem., 33, 295-311.
- Knacke, O., Kubaschewski, O., Hesselmann, K.(1991) Thermochemical properties of inorganic substances

2nd Ed. Springer.

3. Taylor, P., DeVaal, S.D., Owen, D.G. (1989) *Can. J. Chem.*, 67, 76-81.
4. Lindmer, T.B., Besmann, T.M., Johnson, C.E. (1981) *J. Nucl. Mater.*, 100, 178-226.
5. Ogorodova, L. P., Melchakova, L. V., Kiseleva, I. A., Belitsky, I. A. (2003) *Thermochim. Acta*, 403, 251-256.; original data from Semenov, A.M.; Bychkov, N.V.; Krestina, I.L.; Khodakovskiy, I.L.; Westrum Jr., E.F.; Johnson, D.A., in: *Proceedings of the Fourth International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere*, Oldenbourg Verlag, München, 1994 pp. 63-69.
6. Guéneau C., Flèche J.-L. (2015) *Calphad*, 49, 67-78.
7. Badawi, M., Xerri, B., Canneaux, S., Cantrel, L., Louis, F. (2012) *J. Nuclear Mater.*, 420, 452-462.
8. Lee, E.P.F., Wright, T.G. (2005) *J. Phys. Chem. A*, 109, 3257-3261.
9. Lamoreaux, R.H., Hildenbrand, D.L. (1984) *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 13, 151-173.
10. Lee, E.P.F., Lozeille, J., Soldán, P., Daire, S.E., Dyke, J.M., Wright, T.G. (2001) *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 3, 4863-4869.
11. Sandström, M.H., Boström, D. (2008) *J. Chem. Thermodyn.* 40, 40-46.
12. Leitner, J., Chuchvalec, P., Sedmidubský, D., Strejc, A., Abrman, P. (2003) *Thermochim. Acta.*, 395, 27-46.
13. Knox, J.H. (1971) *Molecular Thermodynamics: An Introduction to Statistical Mechanics for Chemists*. John Wiley and Sons. 中川一朗ほか訳, 分子統計熱力学入門, 東京化学同人.
14. 平成26年度 災害環境研究成果報告書 第2編 環境回復研究 1 -放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発物及び土壌等の安全かつ効率的な処理処分等技術・システムの確立等に関する調査研究, 1.1.1節
15. 釜田陽介, 阿部清一, 川本克也, 由井和子, 倉持秀敏, 大迫政浩 (2015) 溶融技術による土壌等からのセシウム熱分離に関するプラント実証試験結果、環境放射能除染学会誌、3(2), 49-64.
16. 平成24年度 環境中の放射性物質の動態解明及び放射性物質に汚染された廃棄物等の効率的な処理処分等 研究委託業務報告書 第2編 放射性物質に汚染された廃棄物及び土壌等の安全かつ効率的な処理処分等技術・システムの確立等に関する調査研究、pp. 1-12~1-33.
17. Ref. 14, 1.1.2節
18. Roedder, E. (1959) *Silicate Melt Systems. Physics and Chemistry of the Earth*, Vol. 3., pp.224-297.
19. Rankin, G.A., Wright, F.E. (1915) *Am. J. Sci.*, 39, 1-79.
20. Eusden, J.D., Eighmy, T.T., Hockert, K., Holland, E., Marsella, K. (1999) *Appl. Geol.*, 14, 1073-1091.
21. International Ash Working Group (1994) *An International Perspective on Characterisation and Management of Residues from Municipal Waste Combustion; Summary Report*; Netherlands Energy Research Foundation: Petten, The Netherlands.
22. Saffarzadeh, A., Shimaoka, T., Kakuta, Y., Kawano, T. (2014) *J. Environ. Radioact.*, 136, 76-84.
23. Shiota, K., Takaoka, M., Fujimori, T., Oshita, K., Terada, Y. (2015) *Anal. Chem.*, 87, 11249-11254.
24. Cheeseman, C.R., Sollars, C.J., McEntee, S. (2003) *Res. Conserv. Recycl.*, 40, 13-25.
25. Adam, C., Peplinski, B., Michaelis, M., Kley, G., Simon, F.-G. (2009) *Waste Managem.*, 29, 1122-1128

26. Zatonvsky, I.V., Strutynska, N.Y., Baumer, V.N., Slobodyanik, N.S., Ogorodnyk, I.V., Shishkin, O.V. (2011) *J. Solid State Chem.*, 184, 705-711.
27. Zatonvsky, I.V., Strutynska, N.Y., Slobodyanik, N.S., Baumer, V.N., Shishkin, O.V. (2008) *Cryst. Res. Technol.*, 43, 362-368.
28. Kida, A., Noma, Y., Imada, T. (1996) *Waste Managem.*, 16, 527-536.
29. JAEA-Research 2011-026 (2011) 土壌の原位置加熱による放射性セシウムの除去可能性の検討.
30. Morey, G.W., Kracek, F.C., Bowen, N.L. (1930) *J. Soc. Glass Tech.* 14, 149-187; *ibid.*, (1931) 15, 57-58.

1.2 洗浄・水処理技術

1.2.1 飛灰洗浄技術の開発・評価

(1)はじめに

放射能汚染廃棄物の処分・取扱の基本は最終処分場における封じ込めであるが、減容化のための焼却に伴って発生する飛灰は放射能濃度が高く、また飛灰中の放射性セシウムは水への溶出性が極めて高いことから、溶出防止対策を施して処分することが定められている。しかしながら、溶出防止対策を施した処分は進んでおらず、飛灰はフレコンに詰めた状態でごみ焼却施設等において保管されているのが現状である。

このような背景を鑑み、国立環境研究所では、飛灰洗浄技術の開発を実施してきた。これは、焼却灰の資源化のための WOW (Wash Out Waste) システムの開発研究^{1, 2)}を応用し、水への溶出性の高い飛灰中の放射性セシウムを予め洗浄処理を行うことにより、飛灰の放射能濃度を指定廃棄物の基準である 8,000 Bq/kg よりも十分に低い濃度レベルまで低減し、かつ、埋立処分後に水に接触した場合の溶出性を低減することで、通常管理型埋立に近い簡易な方法で処分することを可能とする対策技術であり、効率性および安全性の観点から、個々の単位操作の選定とシステム構成を検討し、技術資料³⁾をまとめた。

本調査では、飛灰洗浄技術の適用後の設備の解体について、設備解体時の汚染検査方法や作業被ばく可能性、発生廃棄物の質的・量的特性などに関する基礎的データを収集し、留意すべき事項をまとめることを目的として検討を行った。

(2)方法

1) 飛灰洗浄設備の撤去と汚染検査

飛灰洗浄プロセスは図 1.2-1 に示す通り、飛灰の溶解・脱水工程および洗浄排水の処理工程からなり、これを実施するための主たる設備は、飛灰溶解設備、脱水設備、膜処理設備、吸着処理設備、吸着塔保管場所である (図 1.2-2)⁴⁾。

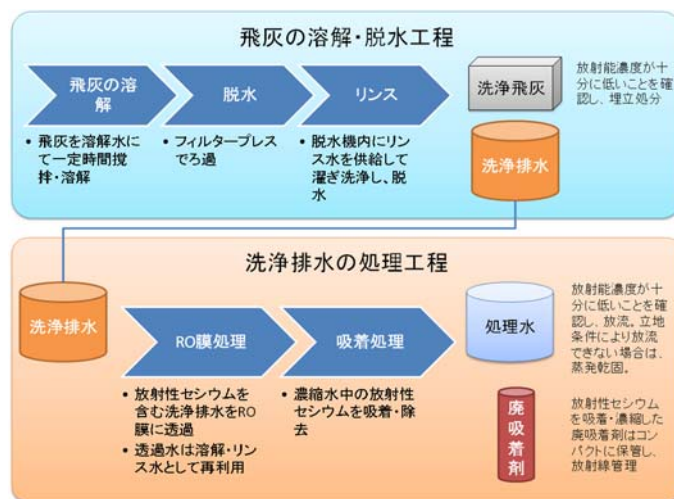


図 1.2-1 飛灰洗浄ベンチ試験の処理フロー

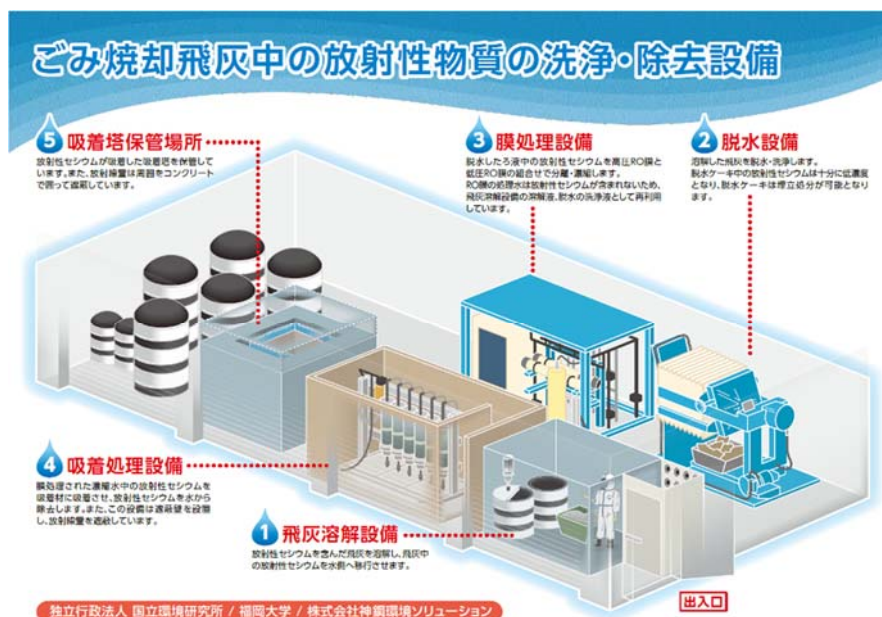


図 1.2-2 飛灰洗浄ベンチ試験のイメージ図

本調査においては、飛灰洗浄ベンチ試験設備の解体・撤去において、汚染された状態の装置搬出や放射性物質の作業エリア外への拡散を防止するため、一部の装置・配管については解体して内部の汚染検査を実施した。

対象物の表面汚染密度は、GM サーベイメータを用いて検査対象の装置の表面から 0.5～10 cm 離れた距離（対象物に近づけた位置）で装置全体にわたり検出器を移動させて表面の計数率を測定した。測定した計数率からバックグラウンドを差し引き、Bq/cm² に単位換算した値を表面汚染密度とした。

なお、解体・撤去対象の装置が産業廃棄物処分業者の受け入れ基準（0.3 μSv/h 以下）を満足しているか確認するため、NaI シンチレーションサーベイメータを用いて空間線量率を測定した。測定は、検査対象の表面から 1 m 離れた距離で床から装置上方まで検出器を移動させて行った。

2) 倉庫内の汚染検査

設備の解体・撤去後、倉庫内の床面、壁面、天井の汚染検査について、表 1.2-1 の要領にて実施した。高所については、リフトを使用して測定を行った（図 1.2-3）。

表 1.2-1 倉庫内汚染検査の要領

測定箇所	測定方法	基準値
床面	1m ² に1箇所の割合（全 188 箇所）を直接法（GM	4.0 Bq/m ² 以下（電離

	サーベイメータ) で測定。直接法で最も高い値を示した地点 1 箇所を間接法 (スミア法) で測定。	放射線障害防止規則)
壁面	3m ² に 1 箇所の割合 (全 96 箇所) を直接法で測定。直接法で最も高い値を示した地点 1 箇所を間接法で測定。	
天井	4m ² に 1 箇所の割合 (全 48 箇所) を直接法で測定。直接法で最も高い値を示した地点 1 箇所を間接法で測定。	



図 1.2-3 高所の汚染検査の様子

3) 作業従事者の被ばく管理

作業従事者全員に個人線量測定器を装着させ、主たる作業内容、保護具および被ばく量等を確認した。

(3) 結果

1) 飛灰洗浄設備の解体および汚染検査

解体・撤去を行う前に主要装置及び一部の装置・配管については解体して内部の汚染検査を実施した。まず、対象となる装置の表面汚染密度、対象物から 1 m 離れた地点での空間線量率を測定し汚染状況を確認した。さらに、これらの設備を可能な限り解体し、フィルタープレスの膜や RO 用プレフィルターの内部、貯留タンクの内面などについても汚染検査を実施した (図 1.2-4)。

装置・配管等の解体によって、一部の設備で内部に極少量の飛灰の残存が見られたが、どの装置についてもほとんど汚染がなく、また、産業廃棄物処分業者の受け入れ基準 (0.3 $\mu\text{Sv/h}$ 以下) を十分に満たしていることが確認された。例として、飛灰溶解槽内面の測定結果を図 1.2-5 に示す。このように、管理区域からの持ち出し基準である

1,300 cpm (4 Bq/cm²) を十分に下回る結果であり、ほとんど汚染がないことが確認できた。



図 1.2-4 設備汚染検査の実施状況

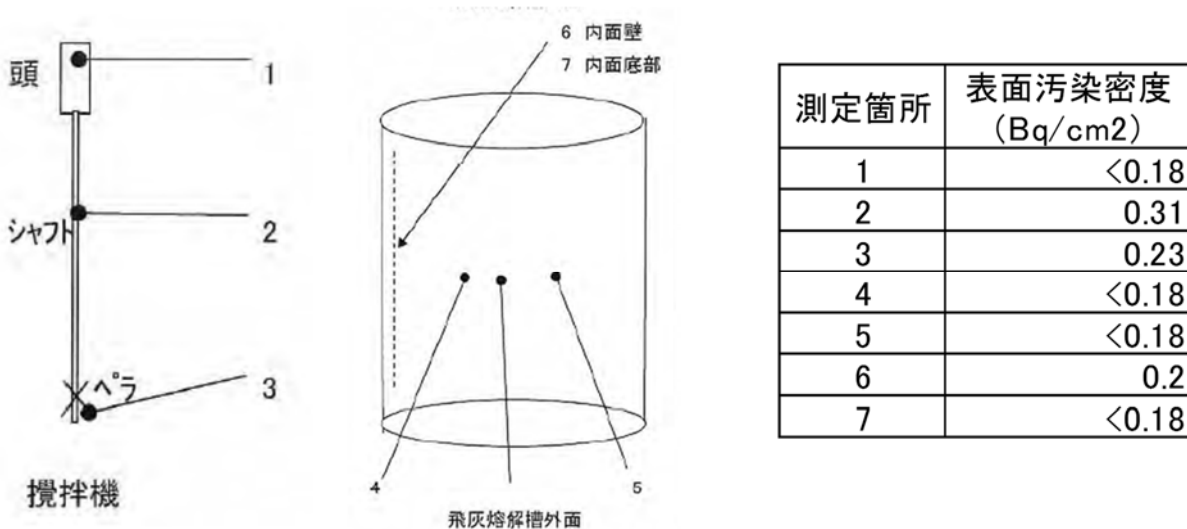


図 1.2-5 飛灰溶解槽の汚染検査結果

2) 倉庫内および周囲の汚染検査

設備の解体・撤去後の倉庫内の汚染検査の結果を表 1.2-2 に示す。床面、壁面、天井すべてにおいて基準値を十分下回っており、飛灰洗浄設備の稼働中および解体・撤去において、周囲への汚染のないことが確認された。すなわち、飛灰洗浄設備を設置・稼働しても、解体・撤去後にその場所には顕著な放射線影響は残らず、通常の用途に使用可能であることが確認できた。

表 1.2-2 倉庫内の汚染検査結果

測定箇所	測定結果		基準値
	直接法	間接法	
床面	最大 0.86 Bq/m ²	0.04 Bq/m ² 未満	4.0 Bq/m ² 以下
壁面	最大 0.86 Bq/m ²	0.04 Bq/m ² 未満	
天井	0.2 Bq/cm ² 未満	0.04q/m ² 未満	

3) 作業従事者の被ばく管理

作業中の各従事者の被ばく量の推移を表 1.2-3 に示す。設備の汚染検査および解体・撤去作業においては、明確な被ばくは確認されなかった。一方で、今回の解体撤去と並行して放射能濃度の高い廃吸着剤の移し替えを行ったため、当該作業期間中に若干の被ばくが認められた。特に仮設テント内で移し替え作業を行った作業従事者 A と E、仮設テントの出入り口で廃吸着材の受取・引き渡し作業を行った作業従事者 B と D において被ばく量が記録された。また、吸着材が入ったエレメントを吸着塔保管箱から取り出し、移し替え作業従事者に引き渡す作業を行っていた作業従事者 K も被ばく量が記録された。

但し、全作業期間を通じた総被ばく量は、最も高い値を示した作業従事者 A、B、D、E で 0.009 mSv であり、電離放射線障害防止規則に定められた被ばく限度（5 年間につき実効線量が 100mSv、かつ、1 年間に 50mSv を超えないこと）を十分下回っており、また、施設における線量等の限度としても、1 週間につき 1mSv を順守できた。

表 1.2-3 作業従事者の被ばく量の推移

作業工程		設備汚染検査			設備の解体・撤去等						廃吸着剤の 移し替え		吸着塔保管箱 の移設		残存設備の解体・撤去、 倉庫内汚染検査				総被ばく 量			
作業項目	作業従 事者	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	6日目	7日目	8日目	9日目	10日目	11日目	12日目	13日目	14日目	15日目	16日目	17日目		18日目		
放射線管 理・廃吸 着剤移し 替え作業	A	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		0.000	0.000	0.000	0.003	0.005	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.009	
	B											0.000	0.004	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.009	
	C	0.000	0.000		0.000	0.000	0.000		0.000	0.000												0.000
	D	0.000	0.000	0.000									0.000	0.003	0.006	0.000		0.000	0.000	0.000	0.000	0.009
	E	0.000	0.000	0.000									0.000	0.003	0.005	0.001		0.000	0.000	0.000	0.000	0.009
	F	0.000	0.000	0.000																		0.000
ベンチ試 験装置撤 去作業	G		0.000	0.000	0.000	0.000	0.000														0.000	
	H				0.000	0.000	0.000		0.000													0.000
	I				0.000	0.000	0.000		0.000													0.000
	J				0.000	0.000	0.000		0.000													0.000
	K		0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		0.000	0.000	0.000	0.003	0.002	0.002	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.008
	L				0.000	0.000	0.000		0.000						0.000	0.001	0.000					0.001
	M																0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
	N								0.000		0.000				0.001	0.001	0.000					0.002
	O				0.000	0.000	0.000		0.000	0.000	0.000				0.000	0.001	0.000					0.001
	P						0.000		0.000	0.000	0.000				0.000	0.001	0.000					0.001

※単位 [mSv]

(4) 考察

装置・配管等を解体して内部まで汚染検査を実施した今回の調査では、1,300 cpm (4 Bq/cm²) 以上の汚染は確認されなかった。従って、飛灰洗浄を実施した装置外部に顕著な汚染が残ることはなく、特段の除染作業は発生しなかった。これは、放射性セシウムの水への溶解性が極めて高く、この特性を利用した除染・減容化技術であり、放射性セシウムが通過する設備は基本的に通水されていることによるものと考えられた。長期に渡る運転により、設備の一部に吸着するという事も認められなかった。一部の設備で極少量の飛灰の残存が見られたが、上述の通り、通水されていることから、既に放射性セシウムは除去されており、放射能はほとんど検出されなかった。このように、飛灰洗浄を実施した設備においては、放射性セシウムが浸透・吸着するような表面状態ではないと考えられる。

なお、飛灰洗浄の前処理としての乾式粉碎器では、飛灰の固着が見られ、周囲に比べて若干高い表面汚染密度 (最大 250 cpm) が確認された。洗浄前の飛灰には放射性セシウムが含まれていることから、固着飛灰を除去することで十分に数値が下がった。このようなケースでは、通常の清掃により固着飛灰を除去することで対応可能であると考えられた。

(5) 課題

原飛灰の溶解、濃縮、吸着など、一連のプロセスにおいて放射性セシウムが高濃度に存在しうる設備・箇所を重点的に調査し、汚染がないことが確認できたことで、それ以外の部分については、測定を簡素化できる可能性がある。

(6) まとめ (要約)

飛灰洗浄設備の解体時の作業者の被ばく防止及び適切な処分についての知見を得るため、汚染状況調査を実施した。各種設備を解体しつつ、内部も含めて表面汚染密度および 1 m の距離での空間線量率の測定を行った結果、飛灰洗浄を実施した設備に顕著な汚染は認められず、解体作業での被ばくや汚染の飛散等の恐れが極めて少ないことが示唆された。

参考文献

- 1) Sotaro.Higuchi, and M.Hanashima (2000) Wash-out Solid Waste Landfillsystem, Proceedings of the Asian-Pacific Landfill Symposium FUKUOKA 2000, pp276-282.
- 2) 樋口壯太郎、古田秀雄、牛越健一、高畑恒志、松本真 (2004) 廃棄物洗浄型埋立処理 (WOW) システムの導入、第 25 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集、294-296.
- 3) (独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター (2014) 飛灰洗浄技術に関する技術資料 (施設性能・設計に係る指針)、pp.25.
- 4) (独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター (2014) 放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分 (技術資料第四版 (2014.4.14 改訂版))、第 8 章 焼却飛灰の水洗浄による放射性セシウムの除去、132-153.

1.2.2 浸出水処理技術の開発・評価

(1)はじめに

通常、埋立処分場には、雨水が廃棄物層を通過してしみ出てきた水 (浸出水) を処理する施設が併設されているが、原発事故後、一部の処分場では浸出水中に放射性セシウムが検出された。特措法では、廃棄物層への雨水の浸透を減らしたり、放射性セシウムの浸出水への移行を防いだりする埋立方法が定められているが、現場では、万が一に備えて対策を準備したいというニーズが存在する。実際、最終処分場において埋め立てられた飛灰等からの放射性セシウムの溶出については、条件によって様々ではあるものの、埋立高さ 3m、厚さ 50cm の土壌層を設置した場合、ピーク濃度が検出されるのは、土壌層直下でも数十年後、既存の廃棄物層を通過した後の集水管到達点においてはさらに数十年後であることが試算されており 1)、現時点で放射性セシウムが検出されていないことは将来を保証しない。

そこで、万が一、最終処分場において水溶性の放射性セシウムが溶出した場合を想定し、浸出水中の放射性セシウムを低濃度域で連続的にモニタリングする装置を開発し、アラートシステムを構築することを目的として検討を行った。

(2)方法

1)モニタリング装置

本装置は、NaI(Tl)シンチレーション式放射能測定装置のマリネリ容器に吸着剤を充填し、測定対象とする浸出水を吸着剤充填マリネリ容器に通水させる構造となっている。通水された浸出水中の放射性セシウムは吸着剤に蓄積され、これを定期的に測定することで、その差分と通水量から低濃度放射性セシウム測定を現地において実質的に連続でモニタリングするものである。

基本原理については既に開発済みであり 2)、実際に、通常測定では不検出となる極低濃度 (0.01~0.1 Bq/L) のレベルで浸出水中の放射性セシウムの濃度上昇の兆しを見

つけるためのモニタリングシステムとして設計・製作を行った。装置の概要を図 1.2-6、1.2-7 に示す。

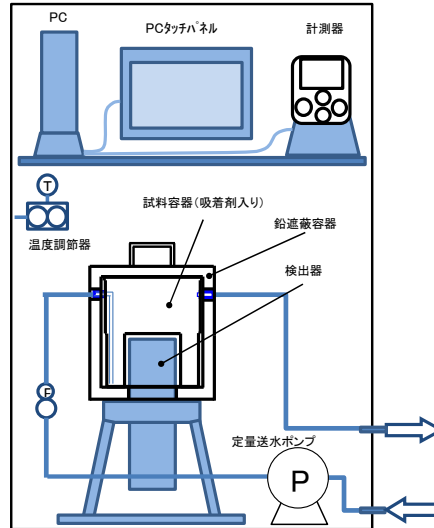


図 1.2-6 低濃度放射性セシウム含有水のモニタリング装置の模式図



図 1.2-7 製作したモニタリング装置の外観

2) 実証試験

福島県内の一般廃棄物処分場内の浸出水処理施設において、上記のモニタリング装置を設置し、実証試験を行った。当該施設の検水を約 18L 採水し、2L 程度まで濃縮してからゲルマニウム検出器で分析したところ、0.010～0.020 mBq/L で検出された。モニタリング装置に充填する吸着剤としては、ゼオライトやプルシアンブルー（粒状）などが考えられるが、ゼオライトでは分配係数からみてモニタリング装置で検出できる

レベル（数十 Bq）まで吸着・濃縮ができないと考えられたため、充填吸着剤はプルシアンブルーとした。

モニタリング装置に導入する原水は、浸出水処理施設の中和槽から採水した。通水は約 70L/日で連続的に行い、2015 年 11 月から 2016 年 3 月まで約 4 ヶ月間試験を実施した。この間、概ね週 1 回の頻度でデータ回収およびストレーナーの清掃等を行った。原水は 5 回、流出水を 16 回程度採水し、流出水については一部を除き、2 回分をコンポジットして測定に供した。測定は上述の通り、約 10 倍濃縮してからゲルマニウム検出器で分析した。また同時に、ICP を用いて安定セシウムの濃度も測定した。

(3) 結果

1) モニタリング装置における放射性セシウムの捕捉状況

原水および処理水の放射能濃度および安定セシウム濃度の推移を図 1.2-8、1.2-9 に示す。試験開始前の原水の放射能濃度は 0.015～0.020 mBq/L 程度であったが、試験開始後は濃縮しても検出できないレベルとなり、試験終了時まで不検出が続いた。流出水では、原水に放射能濃度が検出された試験初期を含めて常に不検出であり、原水中の極低濃度の放射性セシウムを十分に捕捉できたと考えられる。安定セシウム濃度を見ると、試験開始時に原水で 0.004 mg/L 程度検出されていたものが、流出水では 0.00004 mg/L であり、99%の捕捉率が得られたものの、その後、徐々に捕捉率が低下し、試験後期には 30%台の捕捉率となった。

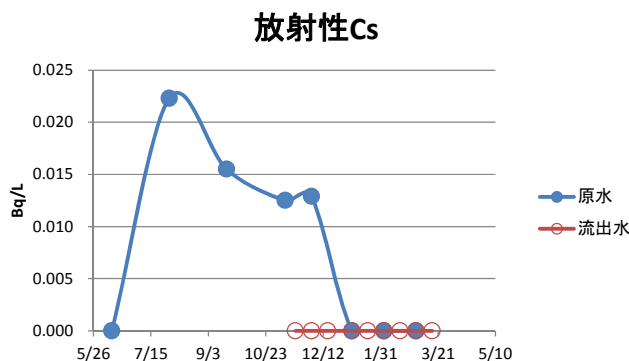


図 1.2-8 原水および流出水中の放射能濃度の推移

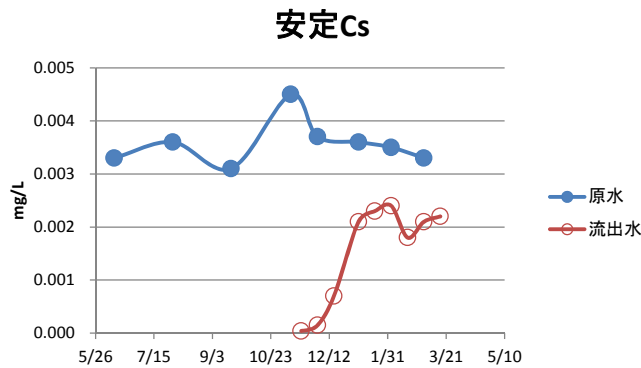


図 1.2-9 原水および流出水中の安定セシウム濃度の推移

2) モニタリング装置による測定

本モニタリング装置では、吸着剤の放射能濃度と通水量を記録しており、通水開始時と終了時の吸着剤の放射能濃度の差を通水量で除すことにより、期間中の平均濃度を極低濃度で算出できる。例えば、0.02Bq/L の検水を 1,000L 通水すると 20Bq が吸着剤に吸着される。安定的に評価可能な放射能濃度の差は 50~60Bq であり、この差を出すためには、2~3m³を通水する必要がある。1日約 70L、1ヶ月で 2 m³程度を通水でき、この間、連続的に採水していることから、調査期間を漏らすことなく反映することが可能である。

今回の実証試験においては、試験中期には原水の放射能濃度が不検出となっていたが、初期の3週間程度は 0.01 Bq/L 超であり、モニタリング装置で捕捉できていたものと考えられる。しかしながら、実際はモニタリング装置での測定結果は不安定で、通水前後の差を十分に見いだすことができなかった。試験終了後に吸着剤の放射能濃度をゲルマニウム検出器で測定した結果、通水による放射能濃度の増加分は約 30Bq であった。試験開始直後から流入水の放射能濃度は変動が大きく、相当程度低濃度であった可能性がある。また、安定セシウムとの競合があり、元素としてのセシウムは吸着限界に近づいていたことがわかった。

(4) 考察

原水およびモニタリング装置流出水の放射性セシウムおよび安定セシウムの測定結果から、極低濃度の放射性セシウムであっても、本モニタリング装置において吸着・検出できる可能性が見いだされた。一方で、このような低濃度の放射性セシウムを検出する上では、設置場所の空間線量率の揺らぎが大きな影響を与えること、従って、バックグラウンドをどのように取っていくべきかを検討する必要があることなどが明らかとなった。

(5) 課題

本モニタリング装置に用いた吸着剤は放射能濃度によってその処分方法が異なる (表

1.2-4)。また、セシウム 134、137 の放射能濃度の値が 1 万 Bq/kg を超える場合、その事故由来廃棄物等の処分業務を行う事業者は電離則に従って放射線防護対策を実施することとされている。従って、使用した吸着剤の交換・処分を含めた運用スキームを構築する必要がある。

今後、更なる現場実証試験等を通じて、検水の特性や環境条件等に応じたモニタリング性能を確認するとともに、放射性セシウムの濃度上昇の予測シミュレーションなども併せて検討し、対策技術の確立に繋げていく。

表 1.2-4 廃吸着剤の放射能濃度別の処分方法

廃棄物種類	特定廃棄物(対策地域内廃棄物+指定廃棄物)						特定一般廃棄物		
	放射能濃度 (Bq/kg)	8,000超～10万 Bq/kg以下			8,000 Bq/kg以下		8,000 Bq/kg以下		
省令第33号(規則)	第26条第1項	第26条第2項第3号	第26条第2項第2号	第26条第2項第2号ホ(溶出量が少ないもの)	第26条第3項	第26条第4項(溶出が少ないもの)	第29条	第29条第3号ニ	
構造等	埋戻し層が定める要件を満たす外周は埋戻し層が設けられ、かつ、当該の天板及び地下水と遮断されていること	(遮断型相当)	(管理型相当)	(管理型相当)	(管理型相当)	(安定型相当)	(管理型相当)	(管理型相当)	
溶出濃度 (Bq/L)	-	-	-	Cs137が150Bq/L以下(告示第3号)	-	Cs134+137がND。但し、安定五品目 [*] に限る。(告示169号)	-	Cs134+137がND(告示第6号)	
埋立物の前処理	特定廃棄物の種類に応じて前処理(破砕、焼却、固型化等)		特定廃棄物の種類に応じて前処理(破砕、焼却等)。セメントその他の結合材により固型化。		特定廃棄物の種類に応じて前処理(破砕、焼却、固型化等)			-	-
埋立物の要件等			廃棄物槽の下に、概ね厚さ50cm以上の土壌層を敷設。加えて、不透水性土壌層を敷設。	廃棄物槽の下に、概ね厚さ50cm以上の土壌層を敷設。			廃棄物槽の下に、概ね厚さ50cm以上の土壌層を敷設。		
下部土壌層	-	-	-	-	-	-	-	-	
埋立物表面及び側面	-	-	不透水性土壌層を設置	-	-	-	-	-	
層状埋立	-	-	-	一層の厚さが概ね3m以下。一層毎に表面に不透水性土壌層を設置。	一層の厚さが概ね3m以下。一層毎に表面を概ね厚さ50cmの土壌で覆う。	-	-	一層の厚さが概ね3m以下。一層毎に表面を概ね厚さ50cmの土壌で覆う。	
ばいじんの埋立	-	-	-	-	雨水浸入防止措置	-	-	雨水浸入防止措置	
埋立物の収納	-	-	損傷しにくい容器に収納	-	-	-	-	-	
モニタリングの要件等	地下水等検査項目(別表第3)、ダイオキシン類を埋立開始前及び年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)、電気伝導率又は塩化物イオンを埋立開始前及び月1回以上測定					地下水等検査項目(別表第3)を埋立開始前及び年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)を埋立開始前及び月1回以上測定		地下水等検査項目(別表第3)、ダイオキシン類を埋立開始前及び年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)、電気伝導率又は塩化物イオンを埋立開始前及び月1回以上測定	
浸出液/放流水/浸透水の測定	-	-	【浸出水】 排水基準項目(別表第4)、ダイオキシン類を年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム)、pH、BOD、COD、SS、T-Nを月1回以上測定	【浸透水】 地下水等検査項目(別表第3)、ダイオキシン類を年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム濃度)、BOD又はCODを月一回以上測定			【放流水】 排水基準項目(別表第4)、ダイオキシン類を年一回以上測定 事故由来放射性物質濃度(放射性セシウム)、pH、BOD、COD、SS、T-Nを月1回以上測定		
空間線量率測定	敷地境界で測定								

*安定五品目: 廃プラスチック類、ゴムくず、金属くず、ガラスくず・コンクリートくず及び陶磁器くず(廃石膏ボードを除く。)、コンクリートの破片その他これに類する不要物

(環境省廃棄物関係ガイドライン3)を参考に作成)

(6)まとめ(要約)

浸出水処理施設において放射性セシウムが検出されるという万が一の事態に迅速に対応するため、通常分析では不検出となるレベルで放射性セシウムを連続的に検出し、濃度上昇の兆しを見つめるためのモニタリング装置の実証試験を行った。これにより、極低濃度の放射性セシウムであっても、本モニタリング装置において吸着・検出できる可能性が見いだされたが、このような低濃度の放射性セシウムを検出する上では、設置場所の空間線量率の揺らぎが大きな影響を与えること、従って、バックグラウンドをどのように取っ

ていくべきかを検討する必要があることなどが明らかとなった。

参考文献

- 1) 山田正人、遠藤和人、石森洋行、大迫政浩（2013）最終処分過程における挙動と制御、日廃振センター情報、12（4）、18-21.
- 2) 特開 2014-085163「排水中の放射性セシウムの濃度を実質上連続的に測定する方法および装置」
- 3) 環境省廃棄物関係ガイドライン第2版第6部特定廃棄物関係ガイドラインおよび同第2部特定一般廃棄物・特定産業廃棄物関係ガイドライン

1.3 不燃物等減容化技術

1.3.1 はじめに

東京電力福島第一原子力発電所によって飛散し、陸域へ大量に沈着した放射性セシウム（以下、放射性 Cs と呼ぶ）により多くの物質が汚染されたが、コンクリート構造物も汚染された。実コンクリートの調査によると道路側溝の蓋や道路擁壁のコンクリートの汚染は表面に限定されており、水では溶出もしない。したがって、表面の汚染部分を研削除去すれば除染が可能である。一方で、建築物等より深部まで汚染が拡大している例もあった。2014年度までの検討により、汚染したコンクリートの除染と再利用/廃棄に関する一定の指針を示した（図 1.3-1）。

コンクリートを廃棄する場合、多くは粉碎粒度調整され、路盤材などに再利用される。この流れを考えると、汚染レベルが低く、コンクリート部材厚が大きい場合は、表面汚染を除去することなく放射能を一定レベル以下に抑制できる。その暫定目安についても提案した（表 1.3-1）。

2015年度は、引き続き倒壊した建築構造物付近での計測点数を増やし、現場計測値の位置づけを考察し、かつひび割れ部からコンクリートを採取し、浸透状況を調査し、汚染状況の分布の評価をした。さらに、放射性 Cs のコンクリートへの浸透メカニズムを評価するため、一般建築物からコアを採取し、Cs-137 試薬を浸透させる実験を行った。

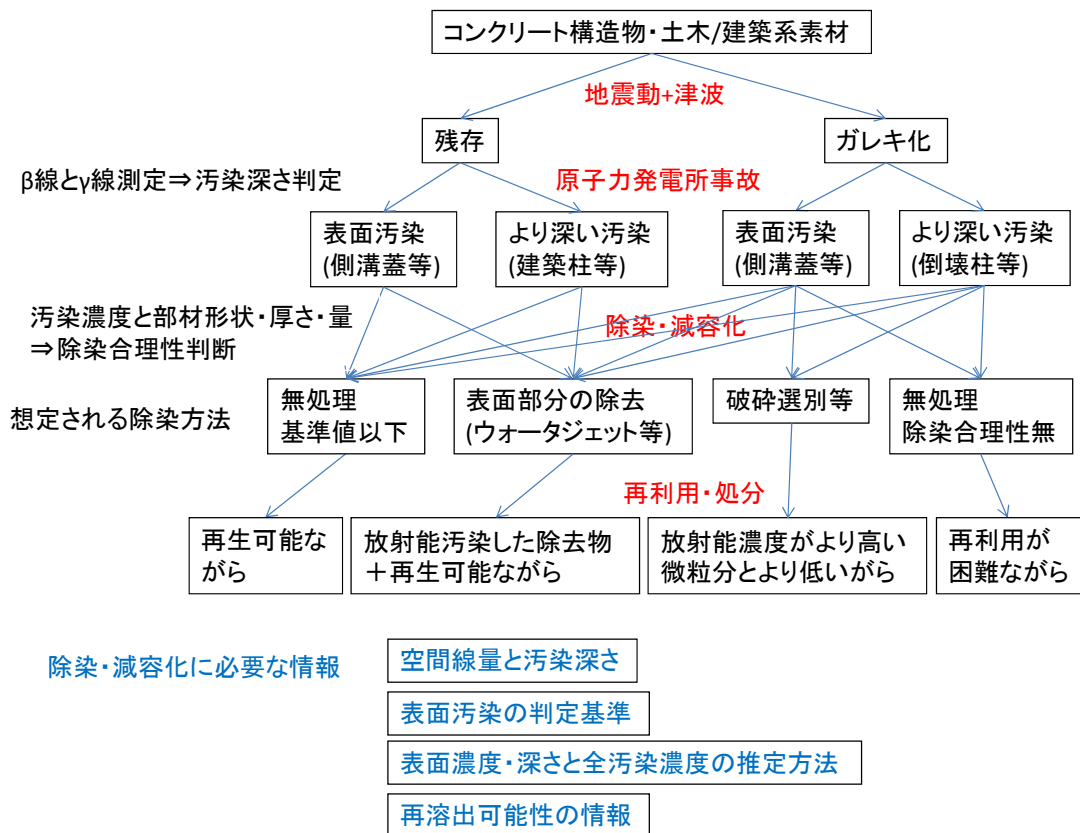


図 1.3-1 コンクリート系汚染廃棄物の処分フロー案

表 1.3-1 現場計数値と放射能濃度の関係

現場計数値 (GM 管, cpm)	実験室計数値 (PS, cpm)	表面濃度 (Bq/cm ²)	想定コンクリート厚さ (cm)	放射能濃度 (Bq/kg)
57,500	46,862	137	10	5957
34,208	23,636	69	10	3000
68,415	47,271	138	20	3000
1,140	788	2.3	10	100
2,281	1,576	4.6	20	100

現場計数値と室内計数値の関係は、調査結果の回帰式から、現場=1.45×室内とした。

PS：プラスチックシンチレータ、表面濃度：コア試料を粉砕し Ge 検出器で計測。

1.3.2 汚染コンクリートの放射性 Cs 浸透深さ解析と除染

(1) 現場計測値の信頼性

表 1.3-1 は、GM 管による現場計数値を用いている。サーベイメータとしては NaI シンチレータ式が使用されることも多いので、NaI と GM 管の比較を多数の点を測定することで行った。

図 1.3-2 に測定位置を示す。測定は、南の建物の西側 (No.1-16) で他の場所に比べ植生が近く多い場所、北の建物の西側 (No.17-25)、北の建物の東側 (No.27-34)、南の建物の東側 (No.35-54) の 4 つの領域に分けて行った。測定は、2015 年 12 月 2 日である。



図 1.3-2 現場での計測位置図 (右が北、下は 10m で海岸)

図 1.3-3 に現場での計測地に及ぼす遮蔽体の影響を示す。GM 管では、位置によらず同じ相関線の上に位置し、遮蔽がないと高いバックグラウンドの影響を受け 28%の増加となった。NaI では、全体としては正の相関があるが、場所により、遮蔽の効果は相当に異なった。特に植生が近く植生からのガンマ線の影響が強いと考えられる南西位置（図 1.3-4）での計測値は大きなばらつきを示した。

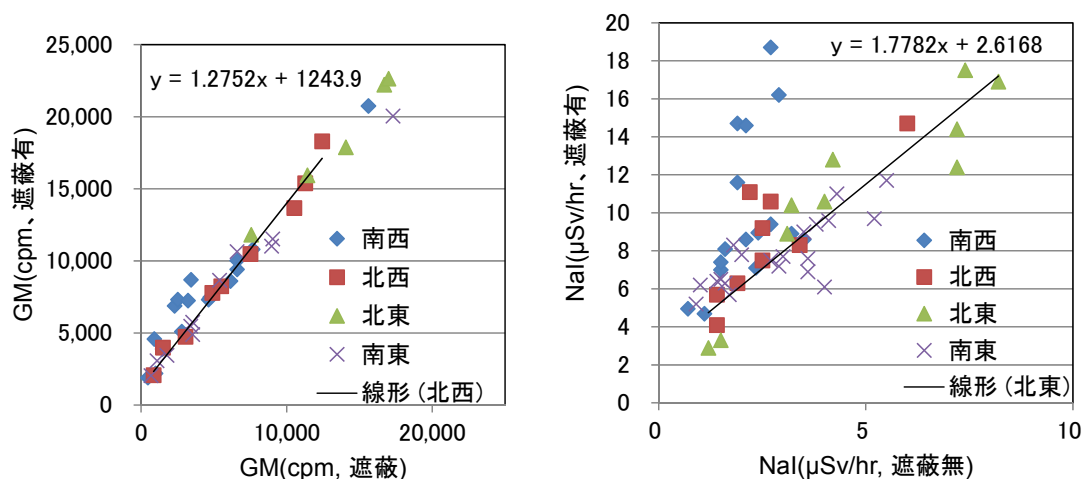


図 1.3-3 現場での計測値に及ぼす遮蔽体の影響



図 1.3-4 南西位置の植生の影響を受けやすい測定場所

図 1.3-5 に、現場で測定した GM 管と NaI による計数値の関係を示す。GM 管は主に β 線を検出し、NaI は主に γ 線を検出すると考えられる。この図には、一部の試料を国立環境研究所（つくば）に持ち帰り、バックグラウンドが低い環境で測定したデータも示す。

β 線はコンクリート内部での飛程は 0.16mm と短いので、表面汚染のみを示し、 γ 線はより内部への浸透を示す。つまり、同じ β 線強度において、表面汚染であれば γ 線には下限値があり、内部への浸透とともに γ 線強度はより高くなる。

現場での測定データは一部の例外を除き、β線が増えればγ線も増えるというおおよそ同じトレンドにある。GM5000cpm-NaI6μSv/hrの点はモルタルであり、Csが内部まで浸透した可能性がある。これに対して、コンクリートブロックなどをつくばに持ち帰ったデータを見ると、β線強度の分布は現場計測データとほぼ同等であるが、γ線強度は1/2~1/3程度になっている。このコンクリートブロックは現場作業の手順の都合から、現場でβ線強度を測定していない。2本のコンクリートコアの現場とつくばでの計測結果を表1.3-2に示す。場所により、現場とつくばの比率は違うが、β線は0.9倍と1.7倍で比較的近い値であるが、γ線は3.5倍と4.8倍と大きく異なった。この結果から、遮蔽体を使用すれば現場においてもGM管によるβ線測定から表面汚染密度は一定の精度を持って測定できるが、NaIによるγ線は遮蔽体を使用してもバックグラウンドの影響を強く受け、現場での汚染評価には適さない。

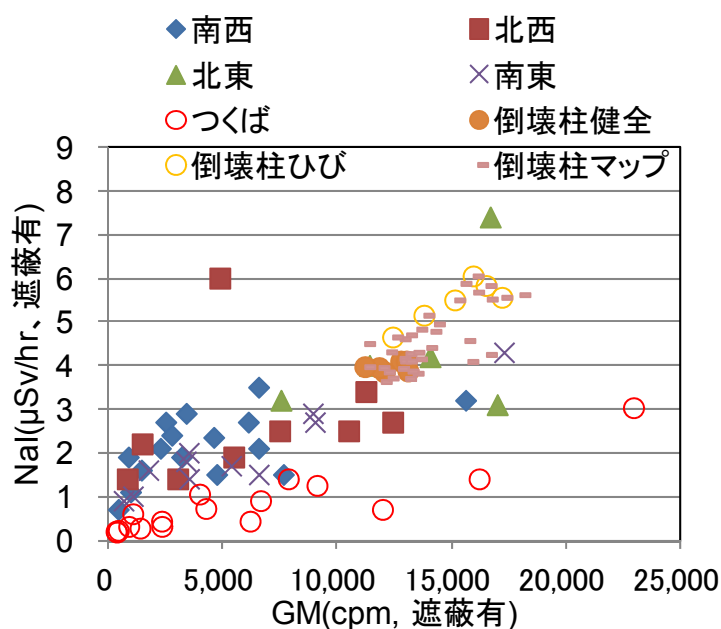


図 1.3-5 GM管とNaIによる計数値の関係

表 1.3-2 高線量地域と低線量地域での測定値の比較

コア番号	測定場所	NaI/ μSv/hr					GM/ cpm		
		遮蔽無	遮蔽有	BG	Net	底面	遮蔽有	遮蔽無	底面
48	現場	12.3	6.05/ 3.5	7.0	5.3/ 3.1		15958/ 0.9	-	-
	つくば	1.80	-	0.09	1.71 / 1.0	0.25	-	18546/ 1.0	226
38	現場		3.1/ 4.8				6548/ 1.7	-	-
	つくば	0.74	-	0.09	0.65/ 1.0	0.13	-	3887/ 1.0	126

++/ ** : **は現場のつくばに対する比率

No.38 : 表面汚染密度=13Bq/cm²(Cs-134+Cs-137)、
長さ 6.6cm のコアの放射能濃度=32,012Bq/kg

図 1.3-6 につくばで測定したβ線とγ線の関係を示す。2014年調査の道路側溝蓋は直線状にあり、すべての放射性Csが表層に留まっていると推定できる。また、2014年はより内部まで浸透していると考えられた多孔質な大谷石や建築用コンクリートブロックはこの線よりかなり上部に位置する。2015年調査のコンクリートブロックの測定結果は、表面近傍に留まるものから、内部まで浸透していることを示唆するものまで多岐にわたった。これらのコンクリートがらについては、表 1.3-1 に示したような指針をもとに除染したり再利用したりすることは難しいと考えられる。今後、これらのコンクリートブロックの断面内のラジオグラフにより放射性Csの浸透深さをさらに調査する予定である。

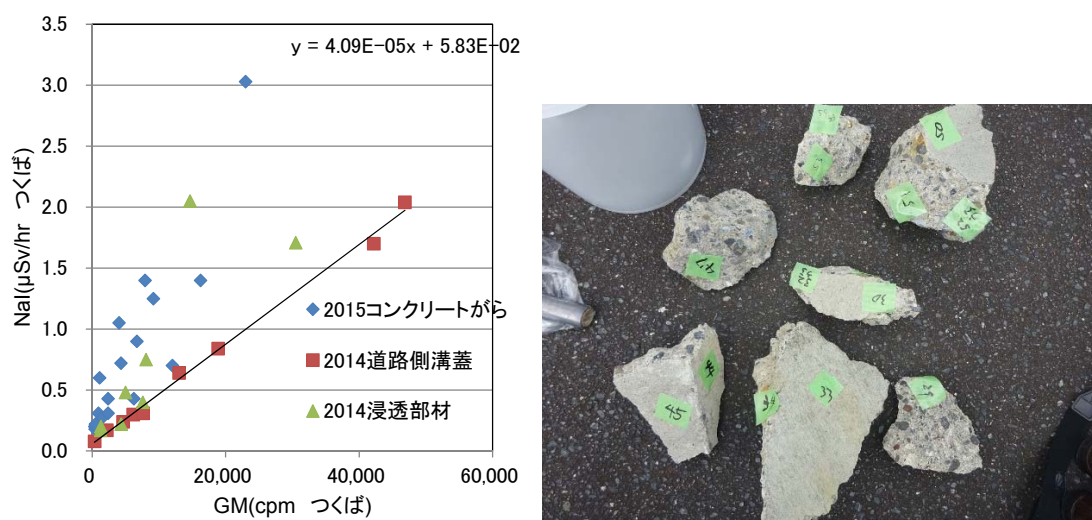


図 1.3-6 採取したコンクリートがらとつくばで計測したβ線 (GM) とγ線 (NaI) の関係

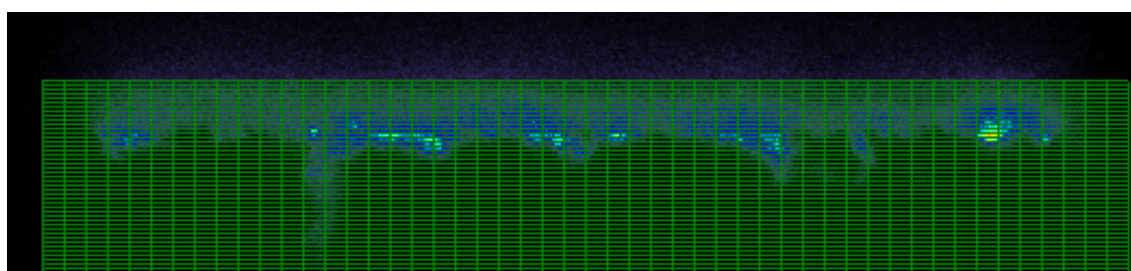


図 1.3-7 コンクリート表面からの放射性Csの浸透状況(メッシュ=1×0.2mm)

(2) コンクリート表面での放射性Csの分布

事故により、炉心の放射性Csは揮発し、水溶性塩となり、降雨とともに地表に達したと想定される。そうすると、均一な水溶液と考えられるが、コンクリート断面のβ線ラジオグラフ(図 1.3-7)によると、放射性Csは骨材を避けセメントペースト部分及びひび割れに沿って浸透している。また表面部分には何らかの理由で高濃度部位が点在する。この高濃度部位は、局所的粘土鉱物の存在の可能性もある。

これまではコンクリート部材の汚染について、数 cm 範囲の平均情報を取得してきたが、

数 10cm 範囲の面的分布およびひび割れに沿った深さ方向の分布を評価する。図 1.3-8 にひび割れ部分を含む柱からのコア抜き作業の様子を示す。コア採取した周辺の放射能濃度の測定結果を図 1.3-9 に示す。

雨に濡れて水平に入るひび割れが黒く見えている。ひび割れがないところでは計数値が 2700~5500cpm であり、ひび割れているところは 5000-7100cpm とより大きい値であり、ひびに沿って放射性 Cs が浸透した可能性を示している。図 1.3-10 に β 線と γ 線の関係ひびの有無に区分して示す。ひびがあるところはないところと比べ、 γ 線強度が高く、放射性 Cs がより内部に浸透していることを示唆している。



図 1.3-8 コンクリート柱からのコア抜き作業

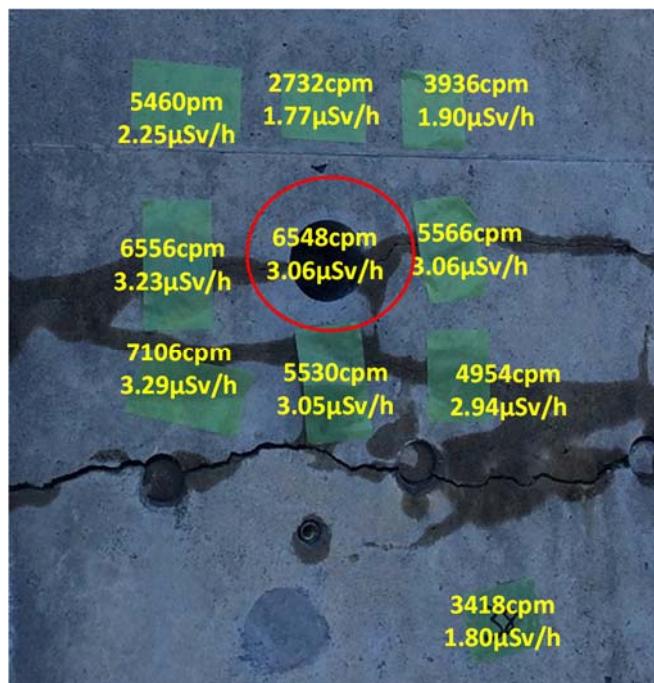


図 1.3-9 ひび割れたコンクリート柱の計測結果

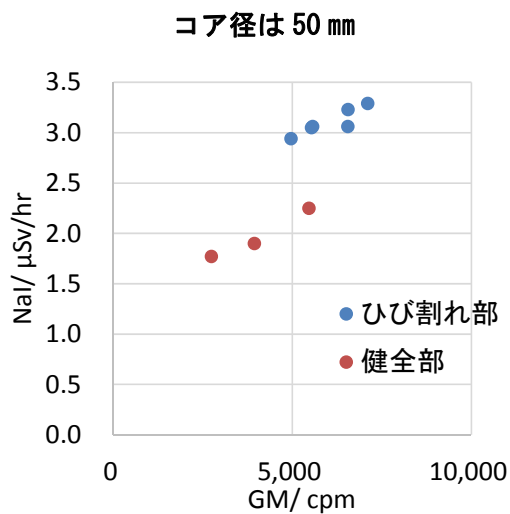


図 1.3-10 ひび割れの有無によるβ線とγ線の関係の違い



図 1.3-11 倒壊した柱

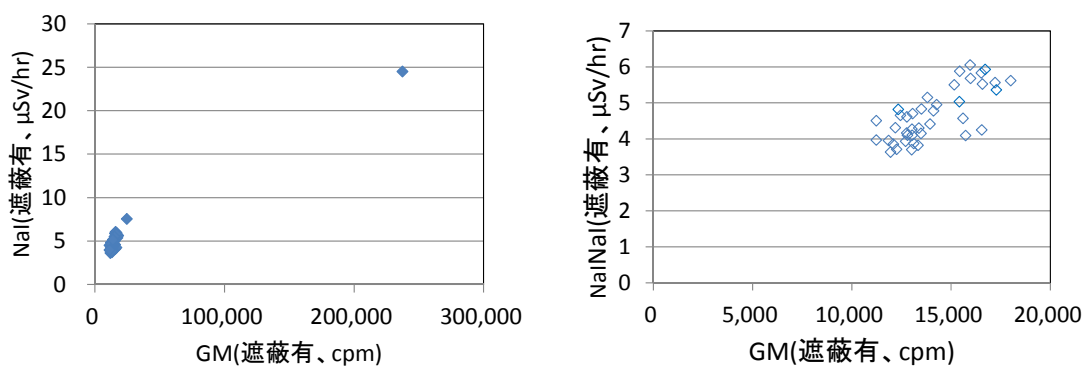


図 1.3-12 倒壊した柱の放射能濃度

図 1.3-11 に示す倒壊した柱について、より広い範囲を計測した。その結果を図 1.3-12 に示す。42 点の計測のうち、2 点を除き、15,000±4,000cpm の範囲に入るが、1 点のみ 25

万 cpm、 $25 \mu\text{Sv/hr}$ と極めて高い濃度を示した。この原因は定かではないが、この位置にのみ、他の汚染原因のように降雨により放射性 Cs が水溶液としてもたらされたのではなく、別の高濃度粒子として供給されている可能性も考えることができる。

図 1.3-13 にひび割れを含む倒壊した柱上の放射能分布の測定結果を示す。数値データから等高線図に変換したものも示す。ひび割れが左上から右下に伸びているが、そのひび割れに沿って放射能濃度が高くなっていることが分かる。

ひび割れを含む径 50mm のコンクリートコアを採取し、 β 線ラジオグラフにより表面の放射能濃度を測定した。その結果を図 1.3-14 に示す。ひび割れに沿って放射能濃度が高いことが分かる。今後は深さ方向についても測定を行う予定である。

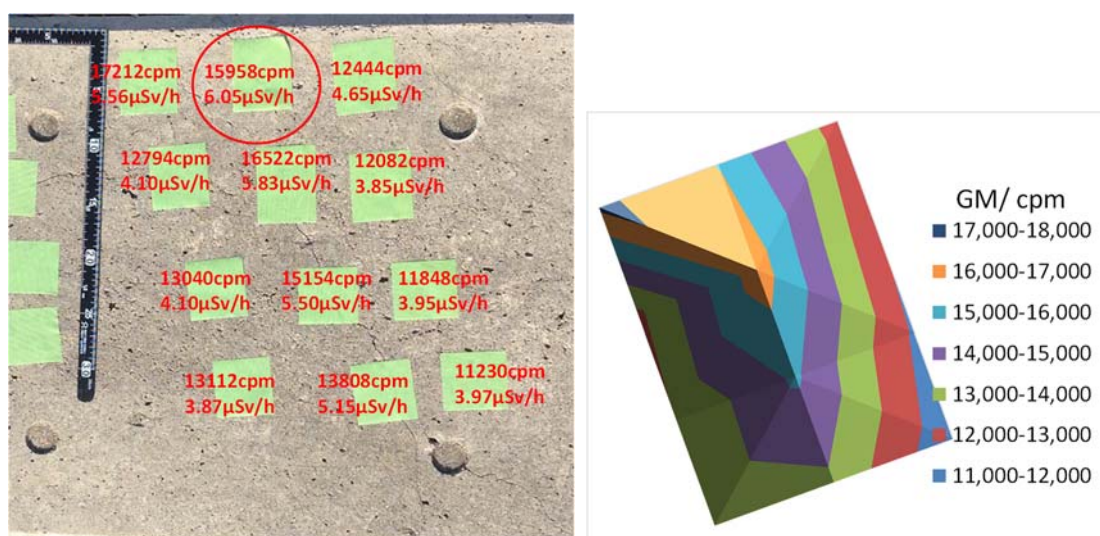


図 1.3-13 ひび割れを含む倒壊柱の放射能分布

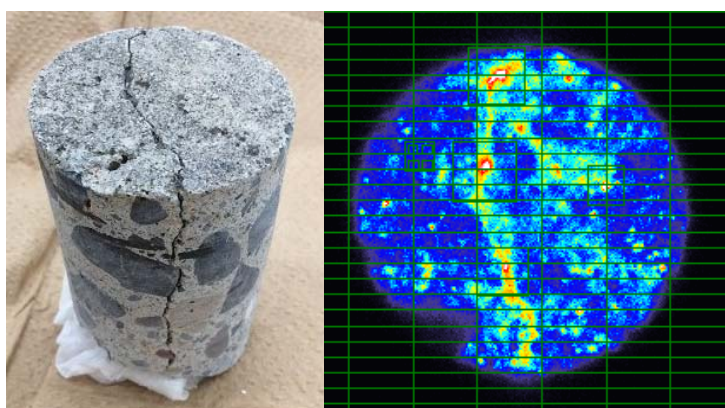


図 1.3-14 ひび割れを含むコンクリートコアと β 線ラジオグラフ

ここで事故の経緯をもう一度考える。東日本大震災により津波が発生し、この地域は津波により建築物が倒壊した。津波堆積物が施設の大部分を覆っていたことが 2011 年 3 月 12

日の衛星写真から分かる(図 1.3-15)。この堆積物は3月19日には除去されている。したがって、3月15日から16日にかけての降雨による汚染が起きたかどうかは定かではないが、少なくともその後の20日から22日にかけての降雨によっては放射能汚染が起きたと考えられる。



図 1.3-15 サンプル採取場所の航空写真(上: 2011.3.12、下: 2011.3.19)

1.3.3 コンクリートの汚染の作用機構解析

(1)はじめに

コンクリートへのCsの浸透は、表層に限定されている場合とある程度内部まで浸透する場合があることが屋外のコンクリートの測定から分かってきた。実験室で作製した粘土鉱物を含むコンクリートには、図 1.3-16 に示すように数 cm 内部までCs-137(放射性同位元素)が浸透する結果が得られている。Cs-137は骨材を回避し、セメントペースト部分を浸透する状況が示されている。コンクリートが乾燥している場合には数時間のうちに2

cm 程度浸透した。コンクリートが湿潤な場合は、約 1 か月をかけて 2-4cm の浸透であった。コンクリートの水セメント比が低く強度が高い場合には浸透深さが小さくなる結果であった。これらはコンクリートの塩害研究における塩素イオンの拡散挙動の知見と一致しており、現場の道路側溝蓋のコンクリートでみられたような表層に留まることはなかった。さらに図 1.3-17 には、モルタルへの Cs-137 浸透に及ぼす粘土鉱物と前処理条件の影響を示す。溶脱することが内部浸透をより促進していることが分かる。

ここでは、現実の構造物のコンクリートコアに Cs-137 を浸透させる実験を行い、Cs がコンクリート表層に留まる原因と、内部に浸透する条件に関する知見をさらに探った。

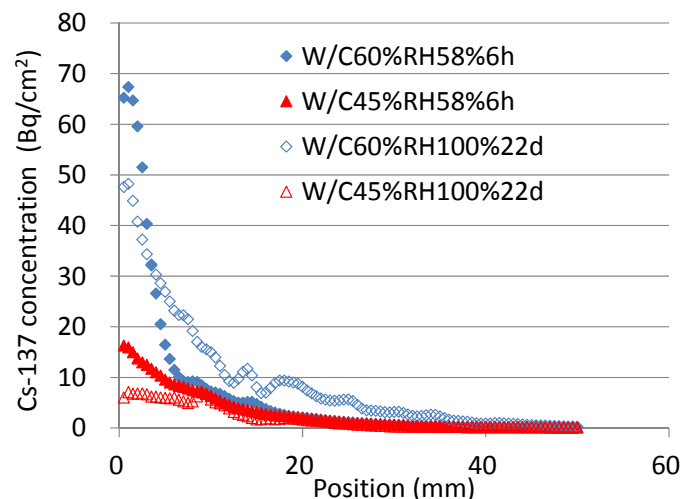
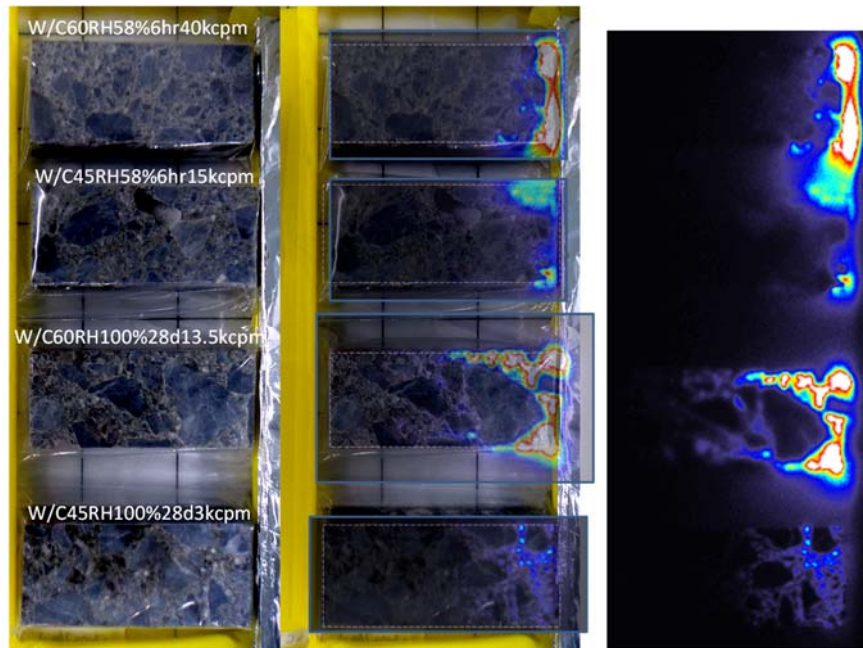


図 1.3-16 粘土を含有しないコンクリートへの Cs-137 の浸透のラジオグラフによる評価
凡例：W/C は水セメント比、RH は前処理乾燥条件、6h は 6 時間浸漬、22d は 22 日間浸漬

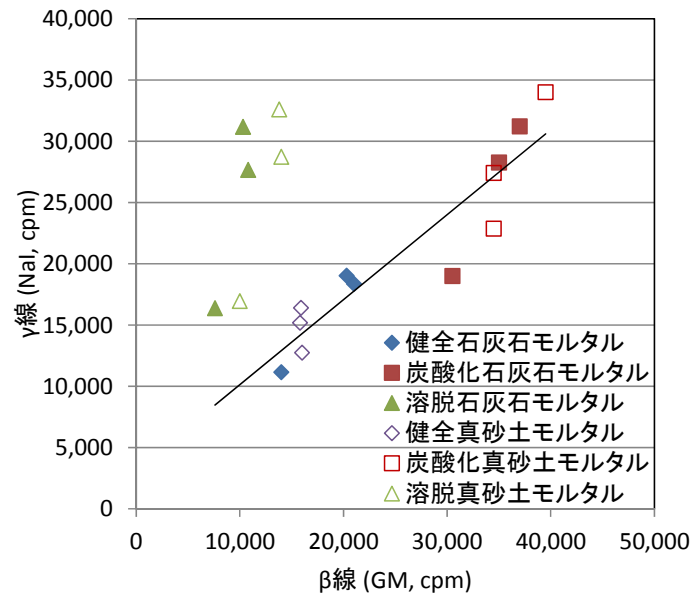


図 1.3-17 モルタルへの Cs-137 浸透に及ぼす粘土鉱物と前処理条件の影響

(2) 試料

1) 採取場所

国立環境研究所内の大気拡散実験棟の建替工事を利用し、この施設の玄関の土間縁のコンクリートブロック（シリーズ B）、および建屋の側面外壁場所打ちコンクリート（シリーズ C）から径 45mm 程度のコアを採取した。本棟の竣工は 1978 年だが、玄関や外壁部分の完成については詳細な記録は残っていなかった。コア採取の状況を図 1.3-18 と図 1.3-19 に示す。



図 1.3-18 玄関の土間からのコア採取の様子



図 1.3-19 側面外壁からのコア採取の様子(シリーズ C)

2) 中性化深さ

採取した一部のコアから、図 1.3-20 に示すように、コアの中心部分から厚さ 18mm、長さ 50mm 程度までの板状のサンプルを切り出した。その後、フェノールフタレイン溶液を噴霧し、2つの面で中性化深さをノギスで測定した。フェノールフタレイン溶液噴霧後のサンプルの状態と中性化深さの測定結果を表 1.3-3 に示す。シリーズ B はコンクリート製品と想定され、碎石が用いられ、中性化深さは小さい。シリーズ A は砂利が用いられており、中性化深さは 1cm を超える。

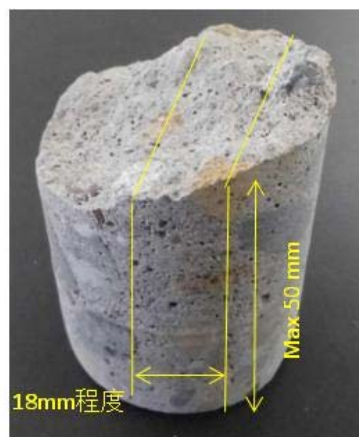
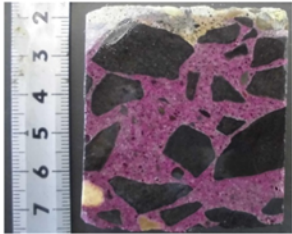
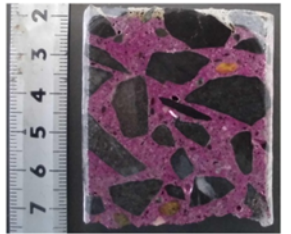
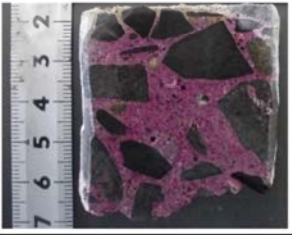
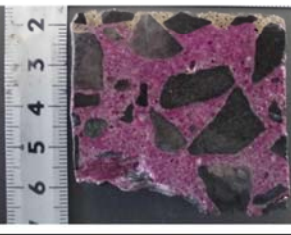
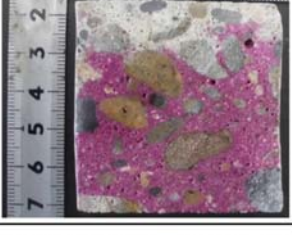
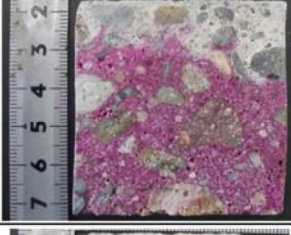
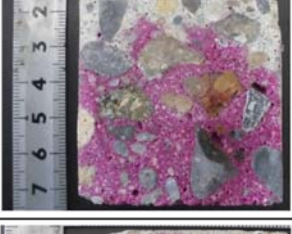
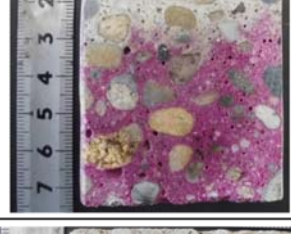
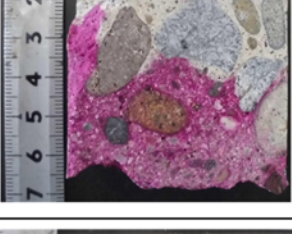
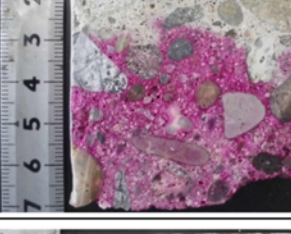
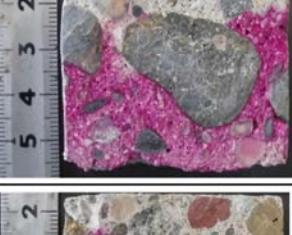
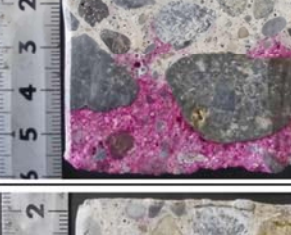




図 1.3-20 コアからのサンプル切り出し方法

表 1.3-3 コアフェノールフタレイン溶液噴霧後の状態と中性化深さ

シリーズ	コア名称	No.	A面	B面	中性化深さ(mm)
B	玄関	3			4.2
		4			2.4
C	玄関 左側壁	8			11.3
		4			11.3
		2			14.6
		3			10.4
		1			13.5

3) EPMA 分析による元素の溶脱挙動評価

アルカリ溶脱の状態および変質厚さを確認する目的でシリーズ B と C のコアについて EPMA 分析を実施した。

電子線マイクロアナライザー (EPMA: 日本電子データ株式会社製、JXA-8100) により、コア断面の元素組成分析を行った。測定条件は加速電圧 15KV、照射電流 5×10^{-8} A、ビーム径 $50 \mu\text{m}$ とし、測定元素は、Ca、Si、Al、Fe、Mg、S、Na、Fe の 8 元素とし、酸化物として表記した。SiO₂ が 40% 以下、MgO が 2% 以下、Al₂O₃ が 1~6% の条件をすべて満たすピクセルをペースト部分と判断し、ペースト部分元素の濃度を解析した。表層から水平方向にそれぞれの元素濃度の平均値を求め、深さ方向のペースト部分の元素組成変化を図 1.3-21 に示す。

B シリーズの No.5 コア

表面から 4~5mm 程度の範囲の CaO、SO₃、SiO₂ 濃度が低下しており、同じ範囲で Na₂O、K₂O 濃度が上昇していた。SO₃ 濃度は表層の低下している領域の内部側に若干濃度が上昇している領域が確認された。フェノールフタレインで中性化している領域は 2~8mm 程度であり、元素組成が変化している範囲とおおむね一致していた。

C シリーズの No.6 コア

表面から 2~3mm 程度の範囲の CaO、SO₃ 濃度が低下していた。表層から 15mm 程度の範囲で Na₂O、K₂O 濃度が上昇していた。SO₃ 濃度は表層の低下している領域の内部側に若干濃度が上昇している領域が確認された。フェノールフタレインで中性化している領域は 7~20mm 程度であり、Na₂O と K₂O 濃度が上昇している範囲とおおむね一致していた。

表層付近の CaO、SiO₂ 濃度の低下は雨水による溶脱だと考えられる。それ以外のイオンの移動と濃集は中性化(炭酸化)によって生じると考えられ、小林ら(1990)によって以下のよう説明されている^り。

【SO₃ の移動】

表層の炭酸化によってエトリンサイトやモノサルフェート水和物が分解し、間隙水中の SO₄²⁻イオン濃度が上昇する。SO₄²⁻イオンは濃度拡散によって炭酸化部から非炭酸化部(内部)に移動し、非炭酸化部で再びエトリンサイトやモノサルフェート水和物として固定される。したがって、炭酸化部では SO₃ 濃度は低下し、濃集は炭酸化部の境界(内側)で生じる。また、液相中の SO₄²⁻イオンは雨水に溶脱し、ごく表層では濃度がさらに低下する。

【アルカリイオン】

表層部分では炭酸化により間隙水中の陰イオンは炭酸イオンや重炭酸イオンとなり pH が下がり、OH⁻イオン濃度が低下する。濃度勾配により OH⁻イオンは非炭酸化部(内部)から炭酸化部(表層)に移動する。その時、電気的中性を保つためにアルカリイオンを帯同するために表層付近にアルカリイオン (Na や K) の濃集が生じる。これらのアルカリイオンは炭酸塩となり固定されている。したがって Na₂O、K₂O 濃度は炭酸化部で高くなり、特に表層付近で高濃度域が観察される。

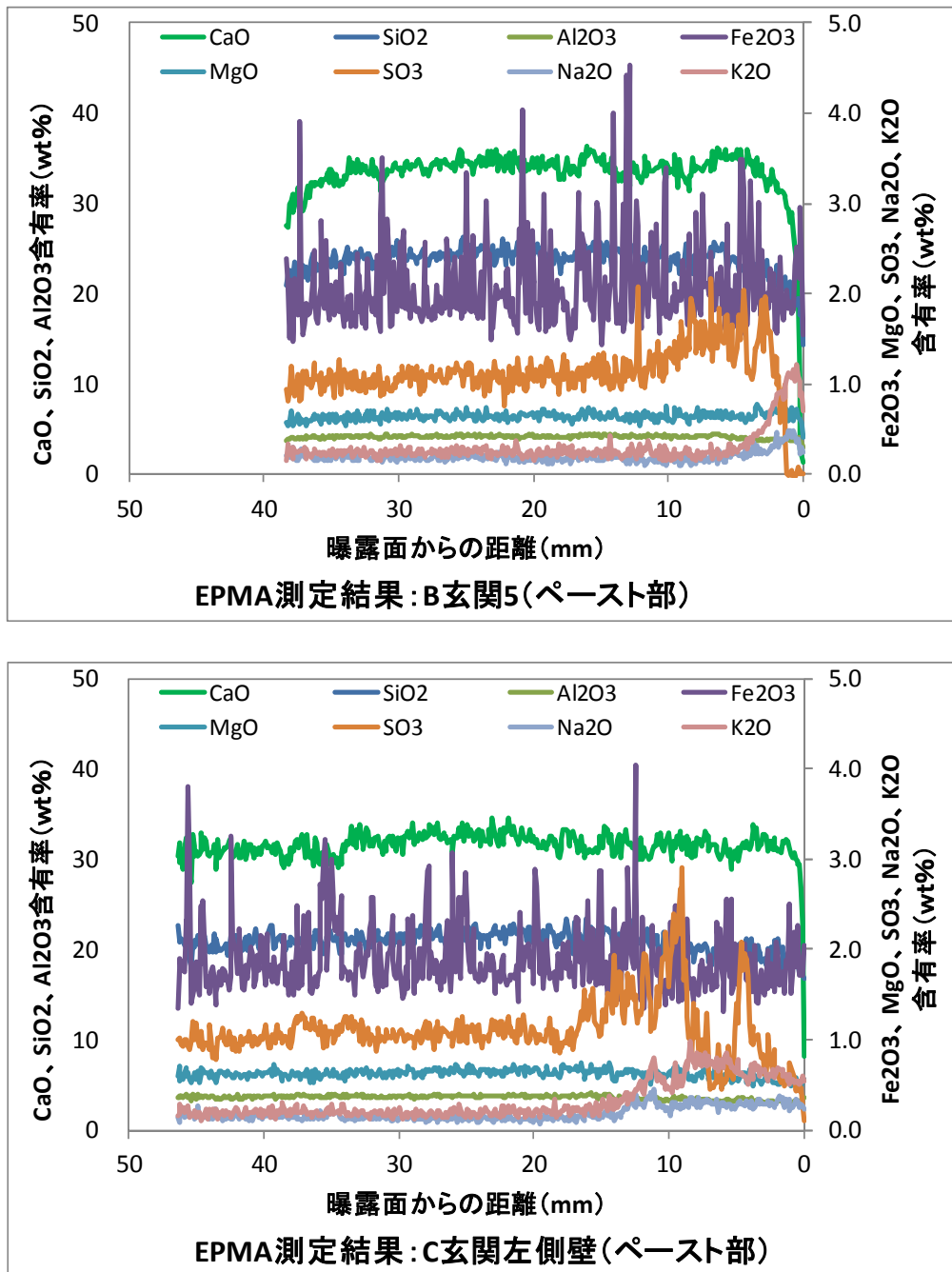


図 1.3-21 コア断面深さ方向のペースト部分の元素組成変化

4) Cs-137 浸透試験

Cs-137 浸透試験に供するコアの前処理条件は、相対湿度 65%と 100%とし、重量がほぼ恒量に達した後 (65%RH で 9 日、100%で 21 日)、浸透試験に供した。コンクリート用シリコン系ボンドで上下面を除く四面を塗装後、同一湿度雰囲気下で 1 日硬化させた。浸透面を下にして 500Bq/cc の Cs-137 を含む溶液 20cc 中に浸漬した。溶液線量強度は 5176.2cpm で吸着後は 3173.9cpm だった。測定結果を GM 管による β 線と NaI による γ 線の関係の図 1.3-22 に、これまでの調査結果や実験結果とともに示す。

実構造物コンクリートからのコア試料への Cs-137 浸透は道路側溝蓋と同様であり、表面に留まっていると考えられる。一方で、実験室で作製したコンクリートは、粘土鉱物の存在や、溶脱や中性化という処理にかかわらず、表面にとどまることなく内部に一定程度浸透したことが分かる。実験室コンクリートと実構造物コンクリートの浸透挙動の際が何に由来するものなのか本質的原因は現時点では不明確である。

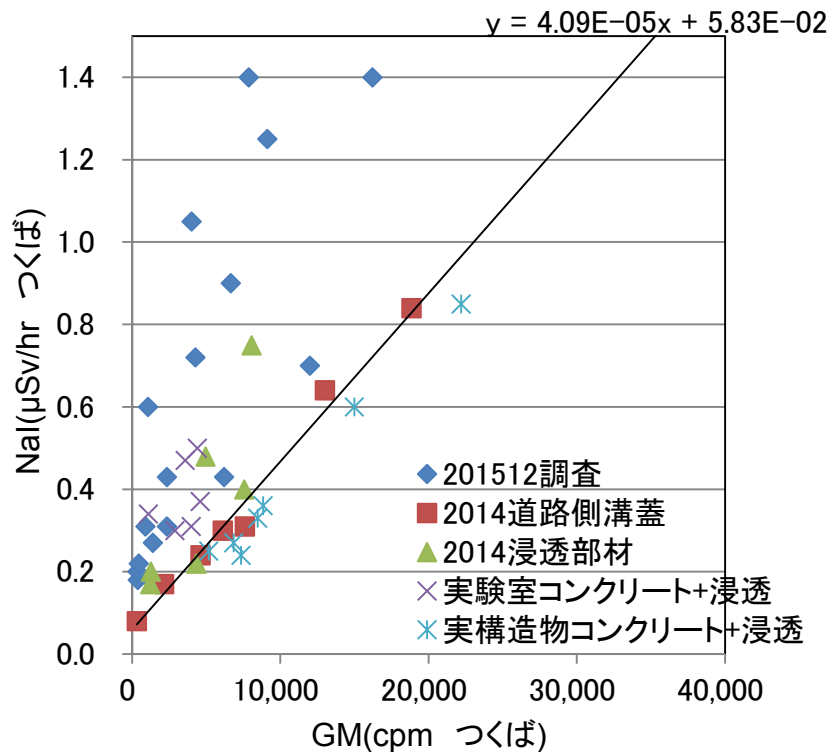


図 1.3-22 コア断面深さ方向のペースト部分の元素組成変化

1.3.4 不燃系減容化のまとめ

放射性 Cs により汚染したコンクリートの除染による減容化と再利用を目的とし、現場コンクリートの汚染状況を調査し、浸透の際のメカニズムを探るために Cs-137 の浸透試験を行い以下の結果を得た。

- NaI による γ 線計測は環境の影響を強く受け、遮蔽体を用いてもコンクリートの汚染状況を正確に評価できない。
- GM 管による β 線計測では、遮蔽体を用いることで、表面汚染を一定精度で評価できる。
- NaI と GM 管を用いた現場計測値の比較による汚染深さの推定は難しい。
- 調査した建築物のコンクリートへは放射性 Cs は一定程度浸透していると考えられた。
- コンクリートのひび割れに沿って放射性 Cs は濃縮し、内部へ浸透している。
- コンクリート表面を構造物全体にわたり評価した場合、ホットスポットが存在する可能性がある。
- 一般建築物からコアを採取し、Cs-137 を実験室で浸透させたところ、試料の乾燥状態によらず浸透は起きず、汚染は表面にとどまった。

- ・ 実験室で作製したコンクリートには、溶脱によりより内部まで浸透する可能性は示されたが、どのような条件でも表層にはとどまらず一定内部まで浸透していると考えられたが、その原因の特定には至っていない。

参考文献

- 1) 小林一輔、白木亮司、河合研至（1990）炭酸化によって引き起こされるコンクリート中の塩化物、硫黄化合物及びアルカリ化合物の移動と濃縮、コンクリート工学論文集、1、69-82.

1.4 コンクリート技術適用

1.4.1 はじめに

これまで福島第一原子力発電所事故により環境に放出された放射性 Cs に起因する放射能汚染した各種廃棄物の処理処分にセメント・コンクリートの材料科学の観点から種々の検討を加えてきた。一つの成果が、指定廃棄物の主要な構成物である都市ごみ焼却飛灰の遮断型相当の最終処分施設を鉄筋コンクリートで建設することを前提に、設計・施工・維持管理に関わる技術資料を取りまとめホームページ公開している¹。

図 1.4-1 に最新のコンクリート技術の適用フローの全体イメージを示す。汚染廃棄物をそのまま、あるいは種々の処理をして処分することを考えると、処分にはコンクリート施設や容器が考えられる。処分には長期的に起きえる現象の理解が必要で、その理解には、汚染廃棄物などの処分対象物の特性および汚染廃棄物とコンクリートの相互作用とその予測が必要である。このためには、事故により放出された放射性 Cs による現実のコンクリートの汚染状況も参考になり、1.3 節で記載したように、汚染コンクリートの調査も行ってきた。

コンクリート施設の種類は、図 1.4-2 に示すようにいくつかの候補が示されている。福島県外の指定廃棄物の遮断型相当の処分場、中間貯蔵施設の廃棄物貯蔵施設における遮蔽コンクリート、最終処分の候補として考えられる浅地中処分のコンクリートピットがある。コンクリートの特性として、一定のひび割れが発生する可能性が常にある。それぞれの状況に応じて何が起きえ、どう制御していくべきなのかを理解したうえで、コンクリート構造物の設計・施工が求められる。これをまとめたのが前述の技術資料である。セメント・コンクリート技術の適用先は、図 1.4-3 に示す管理型処分場における指定廃棄物におけるセメント固型化体もある。これまでの検討により、コンクリートとの相互作用の観点から、汚染廃棄物の何を考慮すべきなのか、コンクリート自体として処分施設を考えるとどうあるべきなのかを考えてきた。

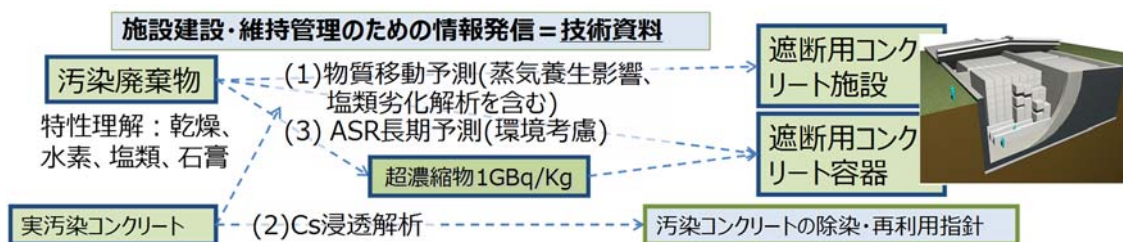


図 1.4-1 コンクリート技術の適用フロー

¹汚染焼却飛灰廃棄物等の最終処分場（遮断型構造）に用いるコンクリートに関する技術資料（第二報） <https://www.nies.go.jp/whatsnew/2014/20141203/20141203.html>

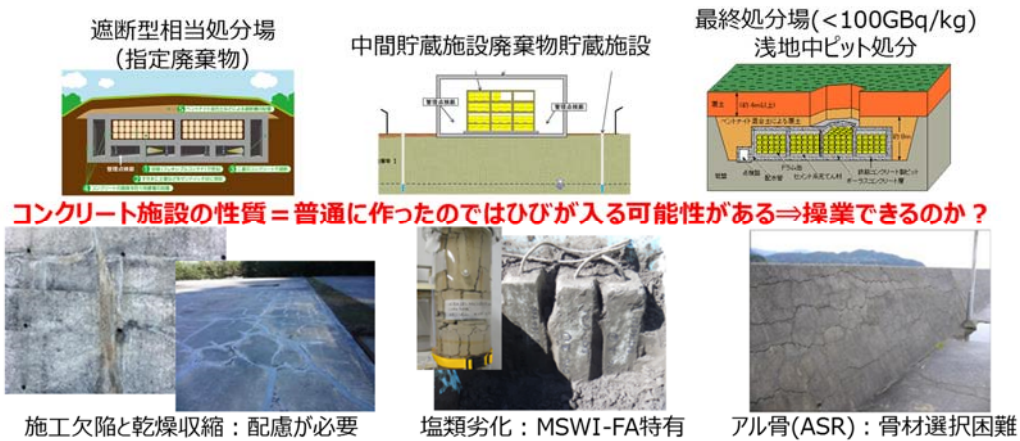


図 1.4-2 コンクリート技術の適用候補の構造物

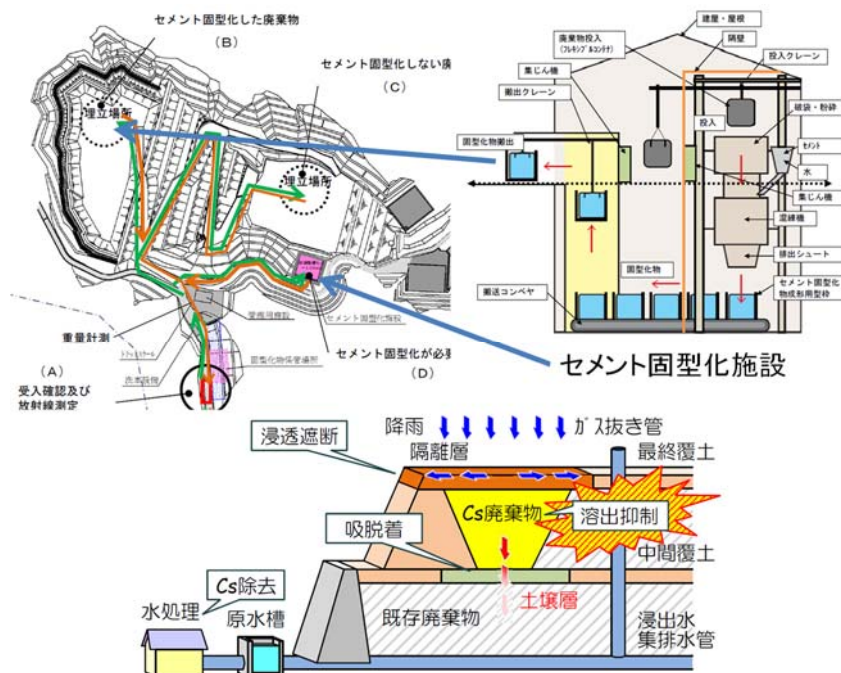


図 1.4-3 指定廃棄物のセメント固型化

2015年度は、Csを含有する廃棄物とコンクリートの相互作用と安全な処分に向けてさらに詳細な検討を行った。検討内容は、(1)コンクリートへのCsの移動予測、(2)焼却飛灰とコンクリートの相互作用、(3)焼却飛灰のセメント固型化、(4)コンクリートのアルカリシリカ反応の抑制の4の領域に区分される。各内容の詳細な検討項目を以下に示す。

(1) コンクリートへのCsの移動予測

- 1) 種々の焼却飛灰浸出成分のモルタルへの浸透挙動
- 2) 飛灰抽出液劣化成分の熱力学的相平衡物質移動モデルによる浸透解析
- 3) ポズラン添加コンクリートの実効拡散係数の迅速測定法
- 4) コンクリート中への塩化物イオンの浸透メカニズムに関する文献調査

コンクリート構造物内部にCs汚染した廃棄物を処分するのであるから、Csが可用性の場合、どのようにコンクリート中をCsが移動するかを理解することは重要である。そこで基礎的な実

験として、焼却飛灰からの溶出成分をモデル化し、モルタルへの浸透挙動を評価した。コンクリートへのイオンの浸透解析には、熱力学的相平衡を考慮した物質移動モデルを適用してきた。このモデルでは、セメント水和物とイオン相互作用を取り扱うが、コンクリートの結合材であるセメント水和物は非晶質でありモデル化研究が常に進化している。従来は、この相を珪酸 Ca 水和物 (C-S-H) として取り扱ったが、実際には Al が一定量固溶しており、珪酸アルミン酸 Ca 水和物 (C-A-S-H) となっている。Al の固溶を考えるかどうかは、アルミネート系水和物量に影響し、セメント水和物によるアルカリ固定にも影響する。そこで、C-S-H に Al を固溶させた単成分を合成し、アルカリの固定性情を調べ、かつ相平衡モデルに組み込んだ。

先述の技術資料でも、Cs 浸透が抑制でき、耐久的なコンクリートを建設するには、石炭火力発電所から産出されるフライアッシュを添加することが有効であることを示しているが、物質移動速度が遅いため、電気泳動法による促進試験がしばしば行われる。この手法の妥当性についても検討を加えた。さらに異なる濃度の単成分の浸透試験から、コンクリート工学で従来考えられてきた挙動とは異なる結果が得られたので、改めて膨大な研究がなされているコンクリート中の塩化物イオンの移動研究の整理を行った。

(2) 焼却飛灰とコンクリートの相互作用

- 1) 焼却炉排ガスの中で生じるカルシウム塩化物の存在化学形態
- 2) 湿潤飛灰によるコンクリートの乾燥解析
- 3) 高濃度塩水によるコンクリートの化学的劣化に関する評価

コンクリートは遮断の機能を有するが、前項の Cs の移動は、コンクリートが健全でひびがないことを前提としている。しかし、焼却飛灰の特性から、コンクリートが劣化する可能性があることがこれまでの研究でわかっている。可燃性廃棄物に塩素が含有される場合、焼却により HCl ガスが発生し、その脱離のためにバグフィルターで石灰が添加され、CaCl₂ が生成することが知られている。まず、この CaCl₂ が実際にはどのような化学形態で存在しているのか検討した。CaCl₂ は乾燥剤であり、これまでの検討で大気から吸湿し、自然発生的に濃厚塩水があふれ出す現象の定量的解析を行ってきた。CaCl₂ による乾燥は、コンクリートは収縮しひび割れる可能性がある。そこで、CaCl₂ がコンクリートの収縮挙動に及ぼす影響を調べた。CaCl₂ は強い乾燥剤であるが、吸湿により発生する濃厚溶液も吸湿作用を有する。CaCl₂ がコンクリートと接すると、コンクリート中の水分を吸収し、濃厚 CaCl₂ 溶液が発生するが、この溶液を介してもさらに水分は吸収されるが、Cl イオンのコンクリートへの拡散がどうなるのか知見がないため、評価を行った。さらに焼却飛灰から発生する高濃度塩水はセメント水和物と化学的にも相互作用し、コンクリートにひび割れをもたらす可能性があり、発生する反応を解析した。

(3) 焼却飛灰のセメント固型化

- 1) 焼却飛灰のセメント固型化体の膨張挙動
- 2) 焼却飛灰のセメント固型化体の安定性に関するモデル解析
- 3) 分子修飾によるフェロシアン化ニッケルの耐アルカリ性への影響評価概要
- 4) フェロシアン化物の分子軌道法による構造計算

コンクリートは骨材を、セメントを結合材として固めたものだが、骨材の代わりに焼却飛灰を固型化することも重要な技術である。これまでの検討で、焼却飛灰のセメント固型化体からの可

用性成分の溶出実験を行う過程で、固型化体がひび割れたり崩壊する現象が分かってきた。このことは、指定廃棄物のセメント固型化体が長期的には膨張破壊する可能性を示しており、その挙動を実験的に解析した。さらに、この現象は化学反応に起因していると考えられるため、通常のセメント水和物の系で適用されてきた相平衡モデルを濃厚溶液系に適用し、現象の再現を試みた。

セメント水和物にはCsを静電的に可逆的に固定する能力はあるが、水の移動とともに流失し、セメント固型化の意義は水と飛灰の接触面積を低減し移動速度を遅くすることにある。一方、セメント固型化体内部で安定にCsを不溶化できる物質があれば、格段にCs移動速度を低下させることができる。Csの特異的吸着剤としてはプルシアンブルーが知られているが、耐アルカリ性が低いため、セメント固型化には併用できない。これまでの研究で、フェロシアン化物イオンと錯体形成をさせる金属イオンをニッケルとすることで耐アルカリ性が高まることが分かっている。このフェロシアンなニッケルの耐アルカリ性をさらに高める検討を行った。

(4) コンクリートのアルカリシリカ反応の抑制

- 1) 骨材のアルカリ反応性の適切な評価方法
- 2) 環境条件を考慮したコンクリートのアルカリシリカ反応の定量予測
- 3) 蛍光発色によるアルカリシリカ反応の定量的検出

コンクリートの耐久性に影響を及ぼす因子は各種ある。塩素浸透により鉄筋を腐食させる塩害、乾燥収縮ひび割れ、水溶液による溶脱、セメント水和物との化学反応による膨張破壊、そして骨材とセメント中のアルカリによるアルカリシリカ反応(ASR)による膨張である。このうち特にASRはJISに定める方法が不十分であることが最近の日本コンクリート工学会の活動により指摘されている。さらに、一般の土木・建築構造物に比べ、廃棄物処分施設ははるかに長期間にわたる安定性が求められるため、より慎重な対応が必要である。この背景から、ASRについては特に詳細な検討を実施した。

まず、コンクリートプリズム試験(CPT)と呼ばれる骨材のアルカリ反応性の評価法について前年度から引き続く研究をまとめた。次いで、CPTの結果をもとに環境条件を考慮したASR膨張の予測について検討した。また、既存の構造物の診断を考慮して、ASRの存在を定量的に評価する手法の開発を行った。

1.4.2 コンクリートへのCsの移動予測

(1) 種々の飛灰浸出成分のモルタルへの浸透挙動

1) 高濃度塩水の浸透挙動の評価

濃度の異なるCaCl₂溶液のモルタルへの浸透挙動を測定し、Cl濃度が浸透挙動、3CaO・CaCl₂・15H₂O(以下、3-1-15と表記)の生成に与える影響を検討した。また、セメント水和物と相互作用のないとされるIを含むKI溶液への浸透試験結果をKClの浸透試験結果と比較することで、浸透に与えるセメント水和物との相互作用の影響を検討した。

i) 実験条件

試料は、普通セメント(OPC)モルタルとフライアッシュ混合セメント(FAC)モルタルである。配合は、砂セメント比S/C=3、水セメント比W/C=0.5とした。養生条件は40°C28日間でFACが十分に水和するように促進した。

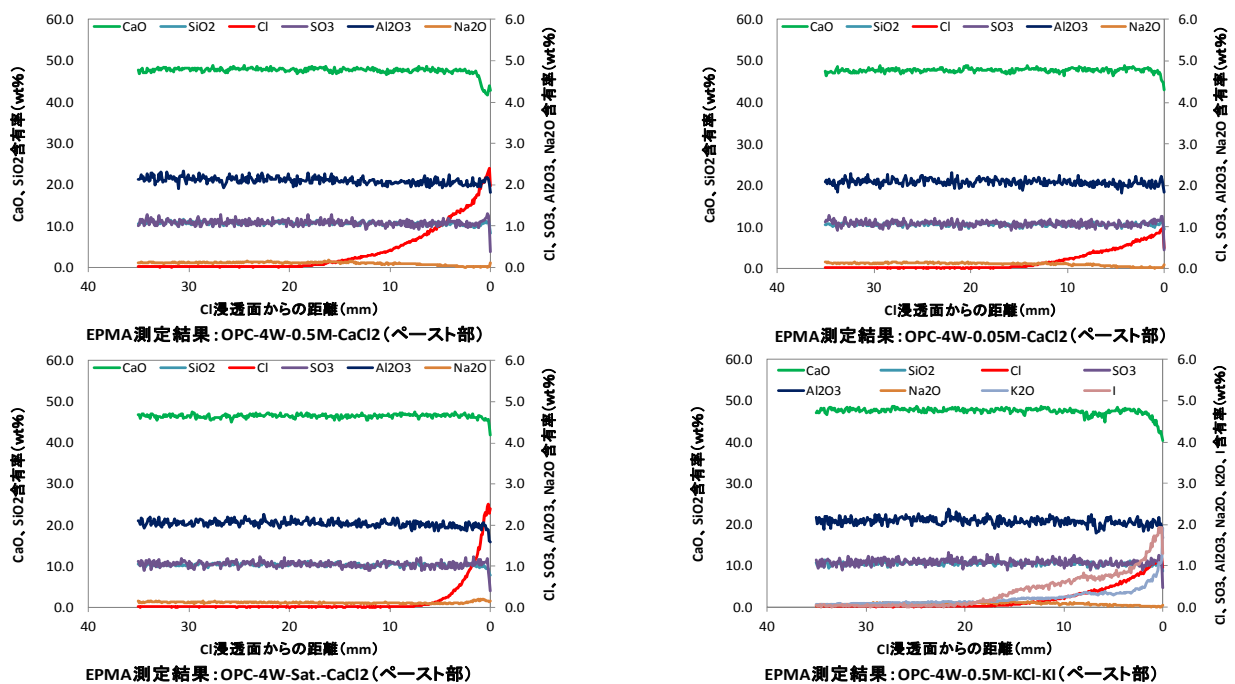
浸漬液は、OPCモルタルについては4水準(飽和CaCl₂、0.5M-CaCl₂、0.05M-CaCl₂、0.5M-KCl

と 0.5M-KI の混合溶液)、FAC モルタルについては 3 水準 (飽和 CaCl_2 、0.5M- CaCl_2 、0.5M-KCl と 0.5M-KI の混合溶液) とした。

測定項目は、電子線微小分析 (EPMA) による関連元素 (Ca, Na, K, Si, Al, S, I, Cl などから 6 元素) のマッピングを行った。測定までの浸漬期間は 4W を基本とし、飽和 CaCl_2 溶液浸漬試料に関しては OPC モルタルで 1、4、20W、FAC モルタルでは 4、20W とした。

ii) 結果

EPMA で測定した浸透試験後の OPC モルタル断面の元素組成プロファイルを図 1.4-4 に示す。浸漬液の Cl が試料内部に拡散している。Ca はセメント中の CaO 濃度が高いため、浸透による濃度変化は確認されず、表層から溶脱した事による濃度低下が観察された。KCl と KI 溶液に浸漬した試料では K、Cl、I の浸透が観察された。I はセメント水和物と相互作用がないため、相互作用がある Cl よりも深くまで浸透すると予想したが、浸透深さに差は見られず、また、表層付近と内部で濃度プロファイルの傾きが異なっており、セメント水和物との相互作用を示唆する濃度プロファイルとなっていた。I も Cl と同様にモノサルフェートに置換固溶している可能性がある。



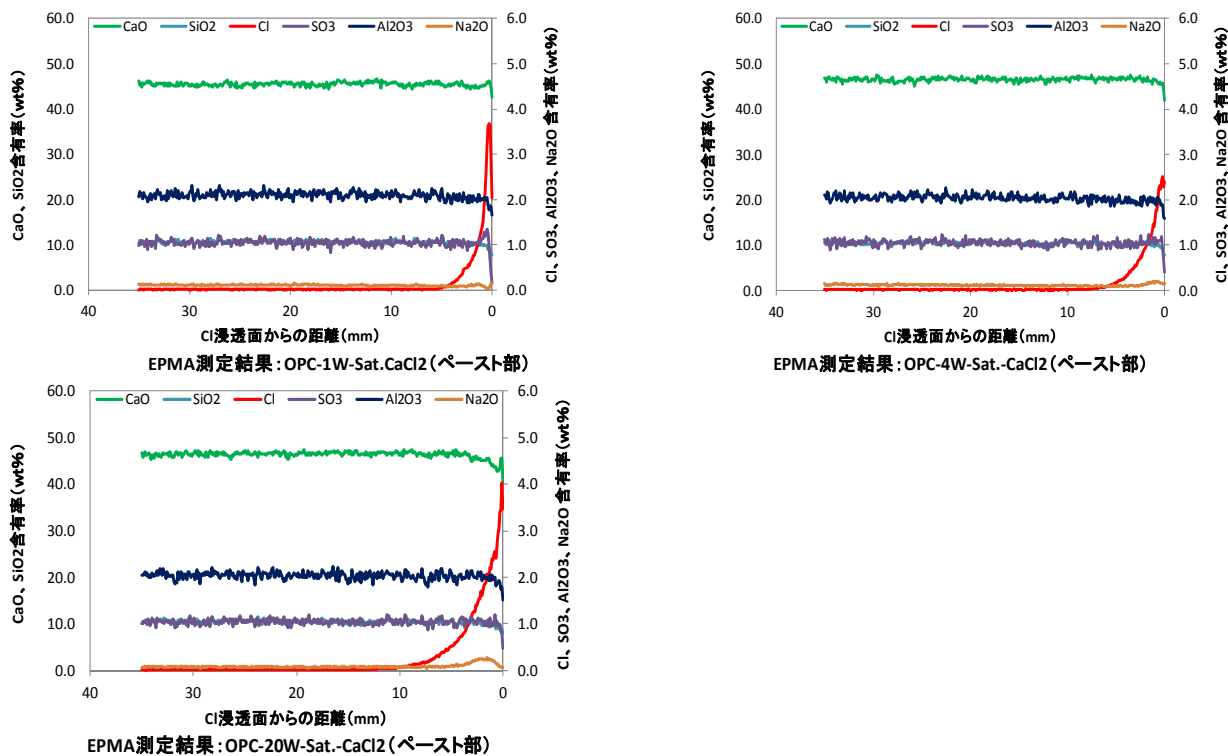


図 1.4-4 OPC モルタル断面の元素濃度プロファイル

塩素の濃度プロファイルのみを抜粋して図 1.4-5 に示す。塩素が浸透していない 25~35mm の範囲の塩素濃度の標準偏差を求め、標準偏差の 3 倍よりも濃度が高くなった深さを浸透深さとした。それぞれの試料の塩素とヨウ素の浸透深さの表を図中に示した。浸漬液濃度による浸透挙動の違いを左上のグラフに示す。塩素濃度 0.1M (CaCl₂ 0.05M)、1M (CaCl₂ 0.5M)、0.5M (KCl 0.5M) の条件では表層付近の塩素濃度は異なるが、浸透深さに差は見られなかった。しかし、CaCl₂ の飽和溶液に浸漬した試料では浸透深さが小さくなった。これは CaCl₂ の溶解度は高く、飽和溶液の粘性が高いために試料内部に拡散しなかったと考えた。CaCl₂ 飽和溶液への浸漬試験で浸漬時間を変化させた時の塩素の浸透状況を左下に示す。浸漬時間が長くなるに従って内部に浸透している様子が観察された。KCl と KI の混合溶液に浸漬した時の塩素とヨウ素の浸透状況を右上のグラフに示す。塩素に比較してヨウ素濃度が高くなっているが、塩素に比較してヨウ素の原子量は大きく (塩素 35.5、ヨウ素 127)、浸透しているイオン量は塩素に比較してヨウ素のほうが少ない。塩素濃度の変化は比較的きれいな拡散プロファイルとなっているのに比較して、前述のようにヨウ素はセメント水和物との相互いくつかの作用が伺える濃度プロファイルとなっていたが、本試験ではどのような相互作用があるかは明らかにならなかった。

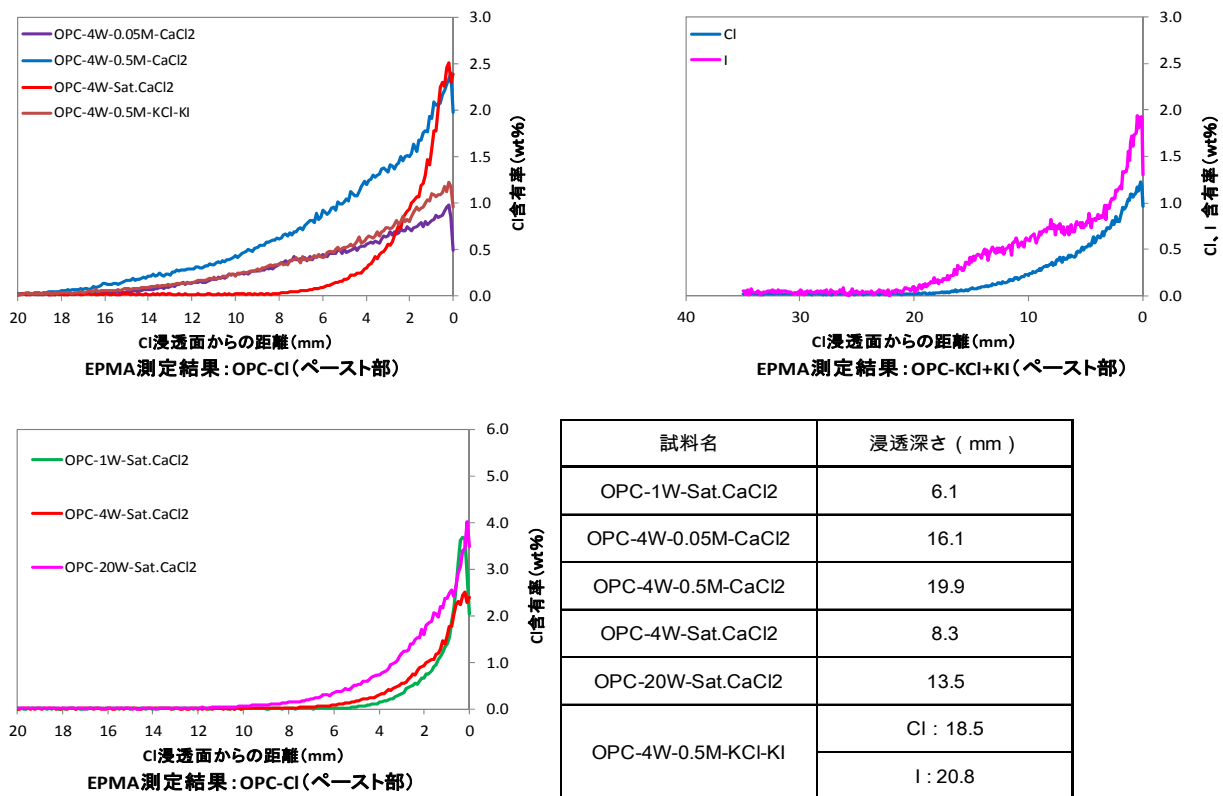


図 1.4-5 OPC モルタル断面の塩素濃度プロファイルと浸透深さ

CaCl₂ 溶液に浸漬したセメント固化体は 3-1-15 の生成により膨張することが報告されている。そこで CaCl₂ 飽和溶液に 20 週間浸漬した OPC モルタルの表層付近の塩素濃度を詳細に分析したが、本試料ではひび割れや析出物等は確認されず、3-1-15 の生成はなかった。

EPMA で測定した浸透試験後の FAC モルタル断面の元素組成プロファイルを図 1.4-6 に示す。OPC モルタルと同様に塩素の浸透、Ca の溶脱が観察された、KCl と KI の混合溶液に浸漬した試料では K、Cl、I の浸透が観察された。

図 1.4-7 に塩素の濃度プロファイルを示す。塩素およびヨウ素の浸透深さの表も一緒に示した。OPC モルタルと同様に試料内部 (25~35mm) の塩素濃度の標準偏差を求め、その 3 倍以上の濃度増加が見られた深さを浸透深さとした。

塩素濃度による Cl 浸透挙動の違いを左上のグラフに示す。飽和溶液の浸透深さは小さく、塩素濃度 1.0M、0.5M の条件で浸漬した試料の浸透深さに差は見られなかった。飽和溶液は粘度が高く内部に浸透しにくかったと考えている。浸漬時間による塩素の浸透挙動の違いを左下のグラフに示す。時間経過に伴って浸透深さが大きくなった。KCl と KI の混合溶液に浸漬した時の塩素とヨウ素の浸透状況を右上のグラフに示す。OPC モルタルと異なり、塩素濃度とヨウ素濃度のプロファイルの形状に差は見られなかったが原因は不明である。濃度の差については OPC モルタルと同様のことが言える。

FAC モルタルは OPC モルタルに比較していずれの条件においても塩素の浸透深さは小さく、フライアッシュセメントにすることで飛灰からの有害成分の浸透をおさえられる。

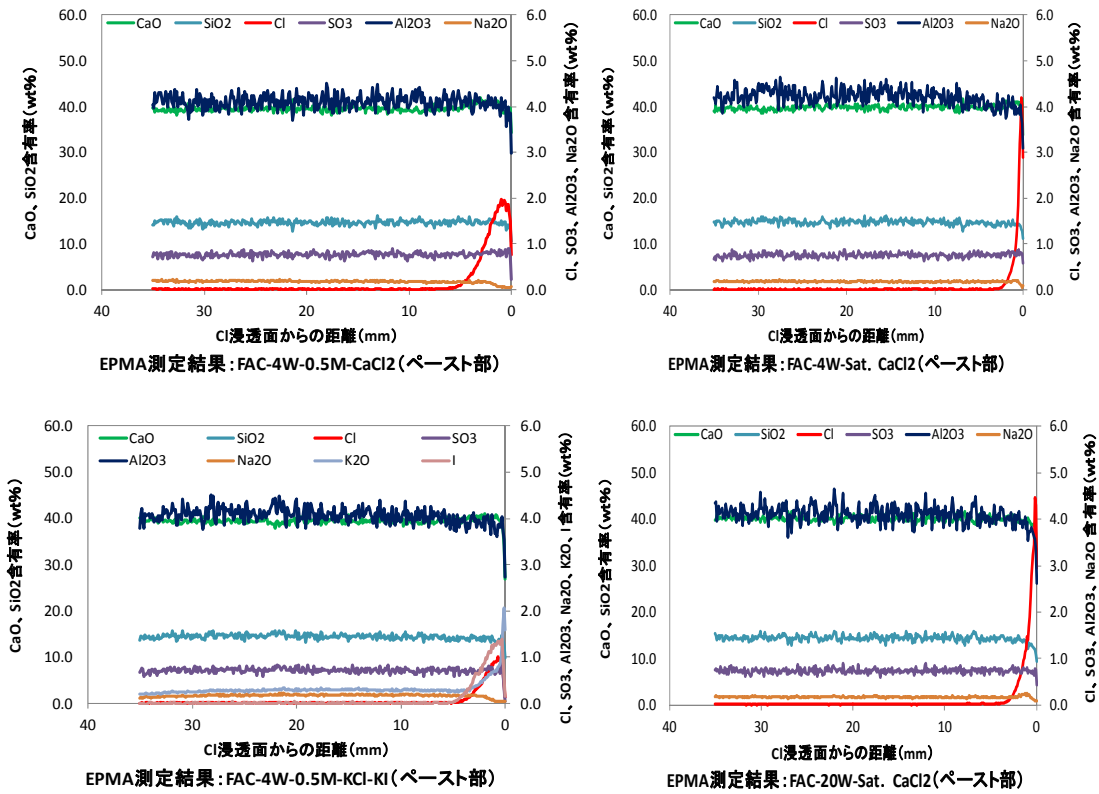


図 1.4-6 FAC モルタル断面の元素濃度プロファイル

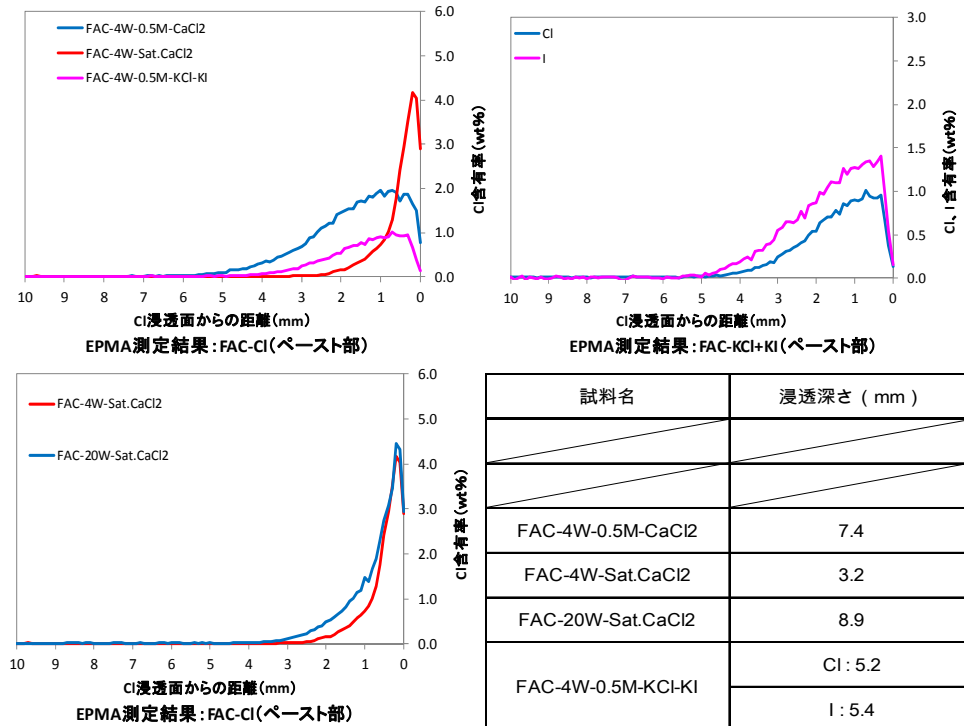


図 1.4-7 FAC モルタル断面の塩素濃度プロファイル

(2) 飛灰抽出液劣化成分の熱力学的相平衡物質移動モデルによる浸透解析

最終処分場において飛灰が吸湿し漏水した時に生じる濃厚塩水（飛灰抽出液）劣化成分がコン

クリートに浸透した時の劣化事象を、液相とセメント水和物との相互作用を考慮した多元素移動解析によって評価してきた。セメント水和物の主要鉱物は $\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2\cdot\text{H}_2\text{O}$ (以下、C-S-H) であり、コンクリート中の Cs の浸透に関しては、C-S-H に対する Cs や Cs の競合元素となり得る Na、K の収着が重要な要因である。しかし、セメント水和物中では C-S-H には Al_2O_3 が固溶して $\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{SiO}_2\cdot\text{H}_2\text{O}$ (以下、C-A-S-H) となっており、特に混合セメント水和物では Al_2O_3 の固容量が多いことが報告されている。そこで、 Al_2O_3 が固溶することがイオンの収着に及ぼす影響に関する検討および C-A-S-H と液相の相互作用に関するモデル化が必須の課題であると考えた。そこで、Na、K の C-A-S-H への収着の測定と C-A-S-H への C-S-H 溶解平衡モデルの拡張に関して検討した。

1) Na、K の C-A-S-H への収着の測定

i) C-A-S-H の合成

合成 C-A-S-H の組成を表 1.4-1 に示す。原料は、CaO として $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 SiO_2 としてアエロジル (200 m^2/g)、 Al_2O_3 として γ -アルミナを用いた。P.P. ボトルに所定組成に計量した試薬と純水を液固比 20 の条件で投入し、1 回/1 日程度ハンドシェイクし、70°C 環境で約 7 日間合成した。XRD 測定により、未反応の鉱物が残存しないことを確認後、固液分離 (ろ過: 5C ろ紙) して、真空乾燥した。

表 1.4-1 合成 C-A-S-H の組成

Si/Ca	Ca/Si	Ca/(Si+Al)	Al/Ca	Al/Si
1.25	0.8	0.74	0.1	0.08
1	1	0.92	0.08	0.08
0.8	1.2	1.11	0.07	0.084

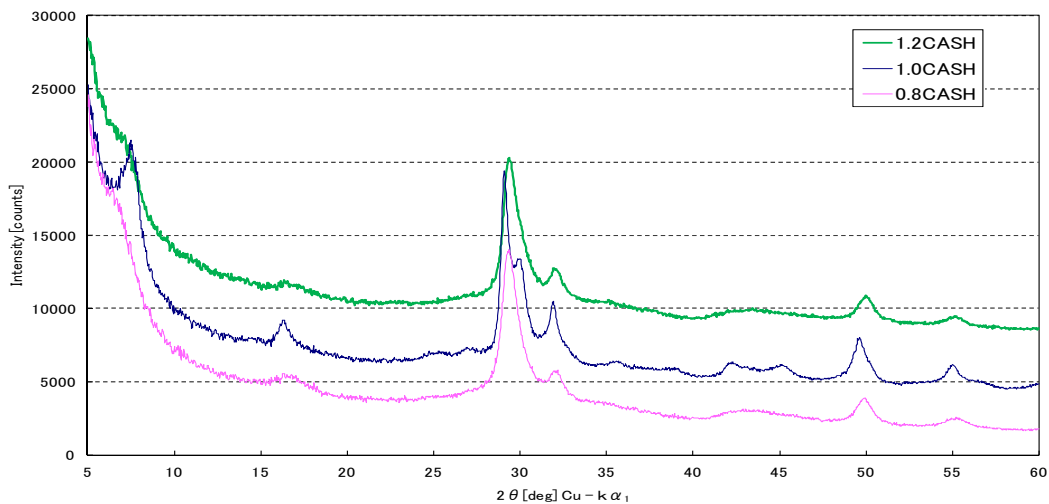


図 1.4-8 合成 C-A-S-H の XRD チャート

ii) C-A-S-H の評価

合成物の粉末 X 線回折チャートを図 1.4-8 に示す。出発試料のピーク等は確認されず、C-S-H のピークのみであるが、C/S=1.0 の C-A-S-H は他の水準に比較して結晶化度が高く、トバモライ

トに近いピークが観察されている。C/S1.0C-A-S-H は $C/(A+S)=0.93$ であり、これは別件で実施している熱による結晶化に関する研究で C/S 比 0.9 の組成が最も早く結晶化する結果と整合している。

iii) 平衡液の化学組成

合成時の液相は平衡液と考え、分析した結果を表 1.4-2 に示す。L'Hopital¹⁾が C-A-S-H を合成した時の平衡液相組成と比較すると、具体的値は一致しなかったが、組成と液相濃度の関係において、C/S 比の変化に伴う傾向は一致した。

表 1.4-2 合成 C-A-S-H の平衡液組成分析結果

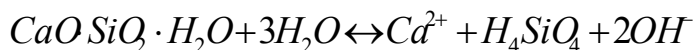
Target C/S	Target A/S	Time(d)	Si	Ca	Al	pH
			(mmol/L)	(mmol/L)	(mmol/L)	
1.2	0.08	10	0.042	6.0	0.0025	10.55
1.0	0.08	10	0.066	3.8	0.0000	11.95
0.8	0.08	10	0.672	1.3	0.0009	12.19

iv) アルカリ収着試験

合成 C-A-S-H に対し液相の組成を作製したときの液相を使用し、NaCl、KCl、NaOH を所定の濃度（1、10、100mmol/L）となるように調整した。液固比 10、試験期間 7 日間、浸透方法はハンドシェイク（1 回/1 日平日）、N 数 2、固液分離は $0.45\mu\text{m}$ メンブランフィルターろ過、液相分析は、Na、K は原子吸光光度法、Cl はイオンクロマトグラフ、Ca、Al、Si は ICP 発光分光分析とした。

NaCl 溶液に浸漬した場合、液相の Ca 濃度は平衡液組成よりも増加しており、NaCl 溶液に浸漬することで Ca が溶脱していた。KCl 溶液に浸漬した場合も NaCl に浸漬した時と同じように Ca が平衡液組成よりも多く溶脱しており、溶脱量は NaCl 溶液に浸漬した時よりも若干大きかった。このように他のイオンが存在する溶液に浸漬した場合に、溶脱量が増加するのは異種イオン効果と呼ばれる現象である。

NaOH 溶液に浸漬した場合、NaCl 溶液に浸漬した時よりも CaO の溶脱量が少なくなる傾向が見られた。C-S-H の溶解を模式的にあらわすと以下ようになる。



NaOH が入ることで OH⁻濃度が高くなり、C-S-H は溶解しにくくなるのが原因である。

液相組成から下式より分配比を求めた結果を表 1.4-3 に示す。液相濃度と R_d の関係を整理した結果を図 1.4-9 と図 1.4-10 に、Ca/ (Al+Si) モル比(以下 C/ (A+S) 比)との関係で整理した結果を図 1.4-11、図 1.4-12 に示した。これらのグラフには C-S-H で実施した結果（H26 年度に報告）も合わせてプロットした。

$$R_d = \frac{\text{Alkali in solid C-S-H}}{\text{Alkali in concentration in solution}}$$

NaのRdに比較してKのRdのほうが大きかった。これは、また浸漬液をNaClとした時よりもNaOHにした時のほうがNaのRdは大きかったが、C-A-S-HのC/S比が大きくなるほどその差は小さくなった。NaOH溶液はpHが高く、C-(A-)S-Hの脱プロトン化が進み、Naの収着量が高くなったと考えられる。NaCl、KCl溶液の浸漬試験において、溶液濃度が大きくなるほどRdは小さくなる傾向が見られた。いずれの条件においてもC/S比が大きくなるほどRdは小さくなる傾向が見られた。これは従来の知見と一致するものであり、C/(A+S)比が大きくなるほどアルカリイオンが収着するシリケートアニオンのサイトが増えることによるものである。C-S-HとC-A-S-HのRd(Na)はC/(A+S)比と良い相関があり、Na、Kの収着に対してC-A-S-HのAlはSiと同じ作用を示すことが分かった。

表 1.4-3 CASHに対するNaとKの分配比 (Rd)

CASHのC/S比	NaCl濃度 (mmol/L)	Rd(Na)	KCl濃度 (mmol/L)	Rd(K)	NaOH濃度 (mmol/L)	Rd(Na)
0.8	1	19.6	1	131.2	1	24.2
	10	11.0	10	32.2	10	20.3
	100	3.8	100	5.6	100	22.1
1	1	10.0	1	53.0	1	11.0
	10	5.6	10	14.4	10	7.7
	100	2.2	100	2.7	100	6.9
1.2	1	3.3	1	5.4	1	3.6
	10	2.2	10	3.2	10	2.1
	100	1.0	100	1.2	100	2.2

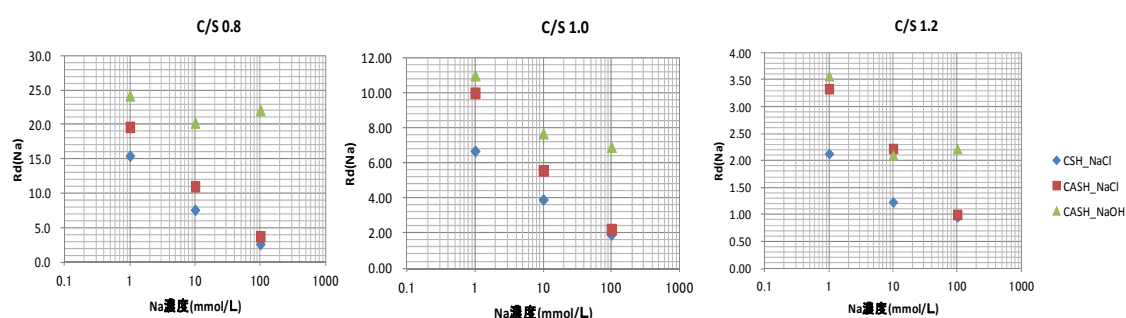


図 1.4-9 浸漬液のNa濃度とNaの分配比の関係

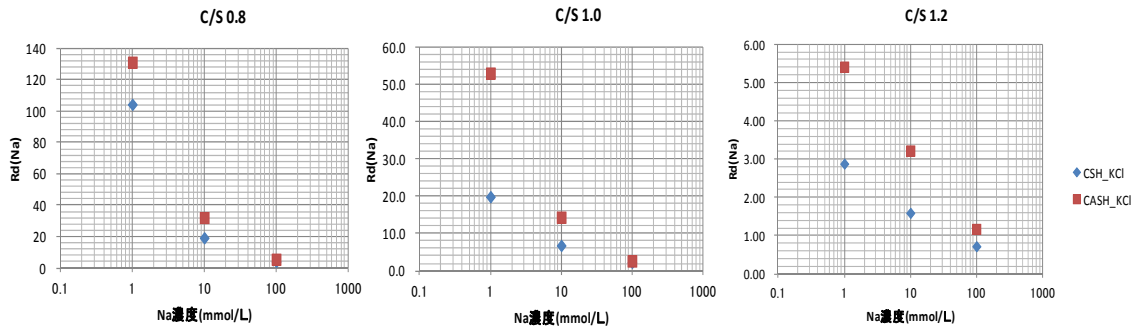


図 1.4-10 浸漬液の K 濃度と K の分配比の関係

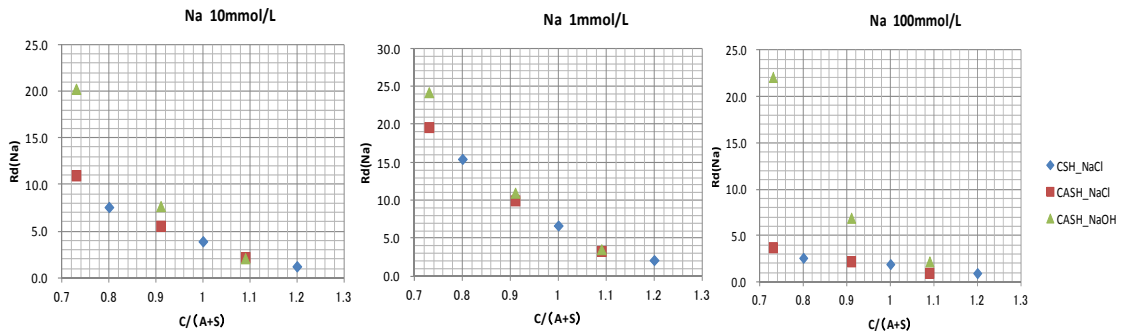


図 1.4-11 固相の C/ (A+S) 比と Na の分配比の関係

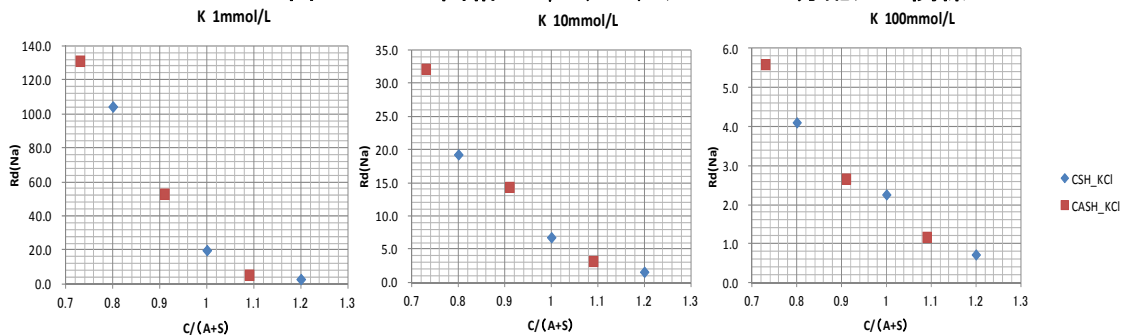


図 1.4-12 固相の C/ (A+S) 比と K の分配比の関係

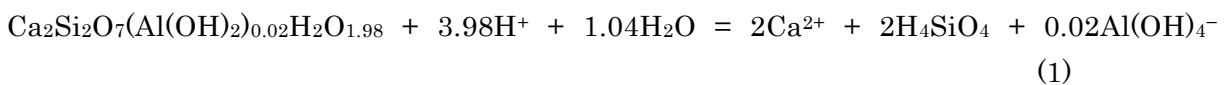
2) C-A-S-H への C-S-H 溶解平衡モデルの拡張

これまで、相平衡物質移行解析コード中の相平衡モデルに組み込まれた C-S-H 溶解平衡モデルについては、Nonat らが構築したモデル²⁾を活用してきた。今般、Haas と Nonat によって、C-A-S-H の溶解平衡に対応するためのモデルの拡張³⁾が実施されたことから、相平衡モデルに対し、Haas らの検討に基づき C-A-S-H への拡張を実施した。

i) 変更・追加された反応式と平衡定数

a) solubility の反応式と平衡定数

Nonat らの C-S-H 溶解平衡モデル²⁾では、2 量体のカルシウムシリケートを基本の固相として溶解平衡を定義している。C-A-S-H のモデルを構築するに当たり、C-A-S-H の溶解平衡の実験結果から、Al/Si = 0.01 として、以下の固相の反応式を基本の solubility の反応式とした。



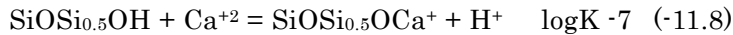
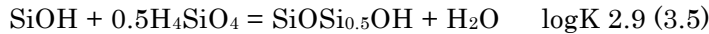
b) シラノール基の反応式と平衡定数

シラノール基の反応式とその平衡定数は、Haas らの検討により、以前のモデル²⁾から変更になっており、文献 3)では新たな反応式あるいは平衡定数が採用されている。しかし、論文記載の数値は一部誤りであり、共著者の Nonat 教授に問い合わせ、以下の数値を得た。C-S-H の微細構造から、反応は外部(External)サイトと内部(Internal)サイトに区別している。

• External site



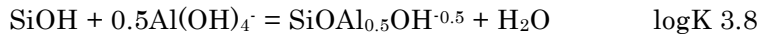
(以下同様)



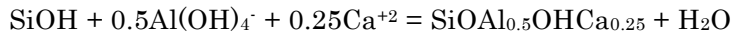
以下の式は、文献 3)に記載されているものの、実際には計算に反映されていない。



External site で Al の挙動を計算するために加えられた反応式は以下の通りである。



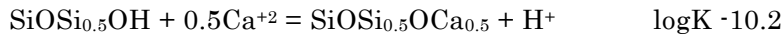
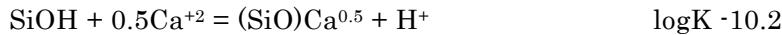
以下の式は、文献 3)に記載されているものの、実際には計算に反映されていない。



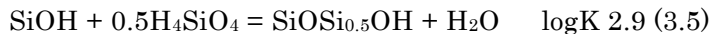
上式の代わりに以下の式と平衡定数が使われている。



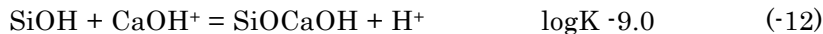
• Internal site



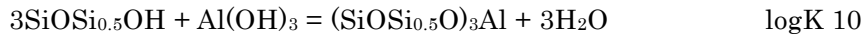
上記の二つの式の平衡定数は、[3]では-11.4 と記載されているが、実際の計算では上記の平衡定数が用いられている。



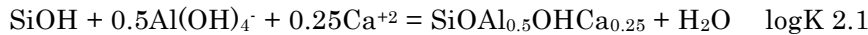
以下の式は、文献 3)に記載されているものの、実際には計算に反映されていない。



Internal site で Al の挙動を計算するために加えられた反応式は以下の通りである。



以下の式の平衡定数は文献 3) に記載の平衡定数と異なる。



ii) 計算結果

文献 3)の計算結果のうち、C₃A の水和で得られた水溶液 ([CaO]=4.63mmol.dm⁻³, [Al]=3.22mmol.dm⁻³) に Ca/Si=0.8 の C-S-H を所定量添加して得られた C-A-S-H サスペンションの平衡状態について、文献 3)と同様な結果が得られるか確認の計算を行った。

図 1.4-13 は、C-A-S-H サスペンションの液相の Ca と Si の濃度の計算結果を、図 1.4-14 は C-A-S-H サスペンションの固相中の Al/Si の計算結果を、文献 3) の計算結果と併せて示したものである (それぞれの図の右のグラフが文献 3) の論文の結果)。文献 3) の計算結果との比較を容易にするために、計算結果に C-A-S-H サスペンションの実験結果も併記した。いずれのケー

スについても、文献 3) の論文の計算結果と一致する結果が得られていることがわかる。したがって、Haas と Nonat が構築した C-A-S-H の溶解平衡モデルに従った計算ができていることが確認された。

今回の計算結果を用いて、C-A-S-H の溶解平衡モデルで得られる計算結果の特徴について述べる。図 1.4-15 に C-A-S-H の Ca/Si と Al/Si の関係を示す。C-A-S-H 中の Al が増えると Ca も増える。

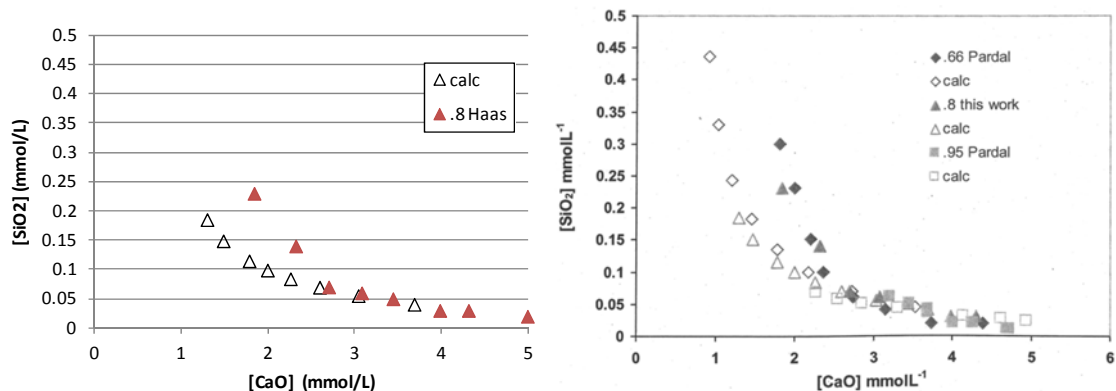


図 1.4-13 C-A-S-H サスペンションの液相の Ca と Al の濃度

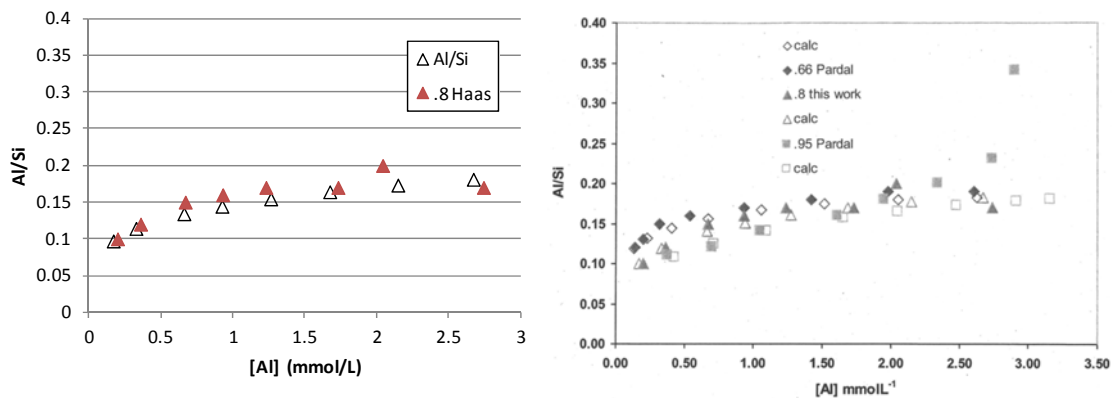


図 1.4-14 C-A-S-H サスペンションの固相中の Al/Si

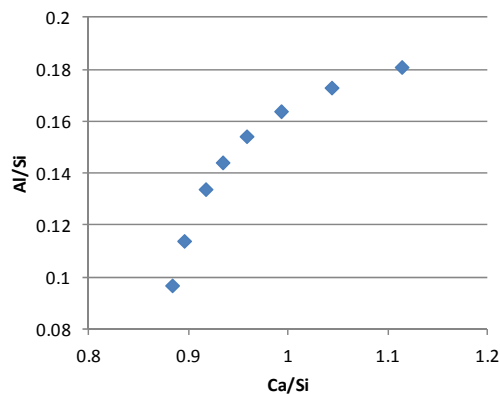


図 1.4-15 C-A-S-H モデルで得られた C-A-S-H 中の Ca/Si と Al/Si の関係

図 1.4-16 は、Ca/Si の変化に対するシラノールサイトの挙動を示した。External site では、Al と結合したシラノールサイトの割合が高く、Ca/Si が高いほど Al と結合したシラノールサイ

トの割合も高くなる結果となった。一方、Internal site では、低 Ca/Si では Al と結合したシラノールサイトの割合は低いが、Ca/Si の増加に伴い、Al と結合した二つのシラノールサイトの内、片方の割合が高くなるのが認められた。図 1.4-15 に示したとおり、本モデルでは Ca/Si が増えると Al/Si も増えるが、これは上述した Al と結合したシラノールサイトの挙動に起因していると言える。

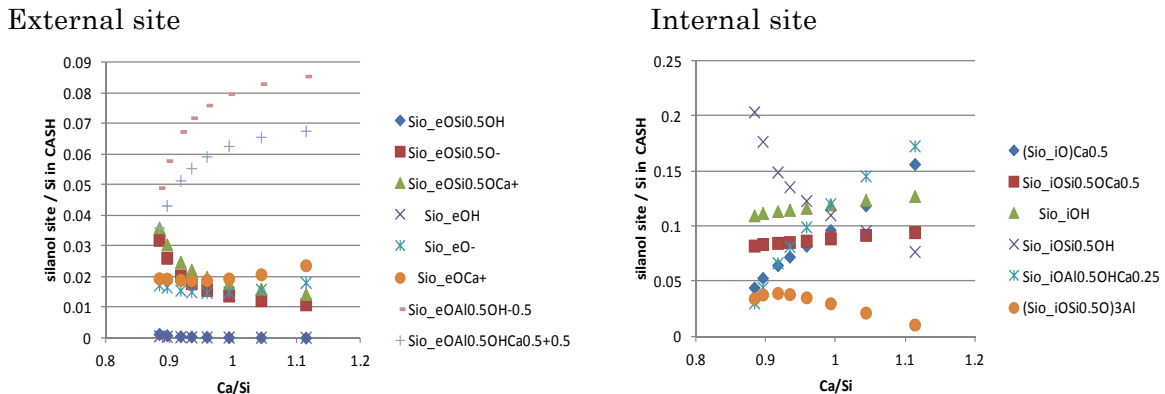


図 1.4-16 Ca/Si とシラノールサイトの関係

参考文献

- 1) Emile L' Hopital, Aluminium and alkali uptake in calcium silicate hydrates(C-S-H), 2014.
- 2) A. Nonat: The structure and stoichiometry of C-S-H, Cement and concrete research, 34, pp.1521-1528(2004)
- 3) J. Haas and A. Nonat: From C-S-H to C-A-S-H: Experimental study and thermodynamic modeling, Cement and Concrete Research, 68, pp.124 – 138(2015)

(3) ポゾラン添加コンクリートの実効拡散係数の迅速測定法

1) はじめに

塩分や水溶性有害物質を含む廃棄物をコンクリート構造物内に長期安全保管する場合、塩分の浸透による鉄筋腐食やコンクリートを通しての有害物の漏出が問題となる。これを防止する方策として、石炭飛灰や高炉スラグなどのポゾランを加えてコンクリート内部を緻密化し、拡散浸透速度を低減させる方法がある。この方法によって作成したコンクリートの性能を評価するには、コンクリート中での実効拡散係数を迅速かつ正確に測定する必要がある。電気泳動法は電解質の実効拡散係数の迅速測定法として多用されているが、この方法では細孔壁での界面電導や細孔壁内電導と細孔溶液中のイオン移動を区別できないため、正しい値を得ることはできない。拡散セル法を使えば正確な実効拡散係数を求めることができるが、測定にはきわめて長時間を要する。

これらの欠点を補う実効拡散係数迅速測定法として、改良電気泳動法を開発した。これは、細孔壁界面や細孔壁内部での固体内イオン電導が細孔溶液の電解質濃度にほとんど依存しないことを利用したもので、電気泳動に用いる電解質溶液の濃度を変えて溶液とコンクリートの導電率を測定し、導電率無限大の極限での両者の導電率比から、実効拡散係数を定めるものである。以下

に測定法と測定結果について述べる。

2) 測定法

細孔を電解質溶液で満たした細孔率 ϕ の非導電性多孔質固体の導電率 σ_s と実効拡散係数 D_e 、および電解質溶液の導電率 σ_L と溶液中の拡散係数 D_0 の間には、

$$D_e = D_0(\sigma_s / \sigma_L) / \phi \quad (1)$$

なる関係が成立することが理論的に導かれる。しかしながらコンクリートのように細孔壁がイオン導電性を持つ場合、測定される電流には細孔溶液中のイオン電流に加えて壁表面および細孔壁内を伝って流れるイオン電流が重畳する。よって観測される導電率 σ_T は $\sigma_s + \sigma'$ となるが、 σ' は溶質の濃度にほとんど依存しないから、溶液との導電率比は

$$\sigma_T / \sigma_L = D_e \phi / D_0 - \sigma' / \sigma_L \quad (2)$$

となる。溶質濃度無限大の極限では(2)式の右辺第2項はゼロとなるから、導電率比を溶液の導電率の逆数に対してプロットすれば、その切片すなわち溶液の導電率無限大での極限值から実効拡散係数が求まることとなる。

(2)式に基づいて実効拡散係数を決定するためには、異なる濃度の溶液の各々について、試料内外の溶液の濃度が平衡状態に達したのちに測定する必要がある。試料を溶液中に浸漬して放置すればいつかは必ず平衡状態に達するが、これには長時間を要する。しかしながら電気泳動法を用いると、溶質を電氣的に試料内に浸透させることにより平衡状態に達するのに要する時間を短縮させることができる。そのための測定装置を図1.4-17に示す。

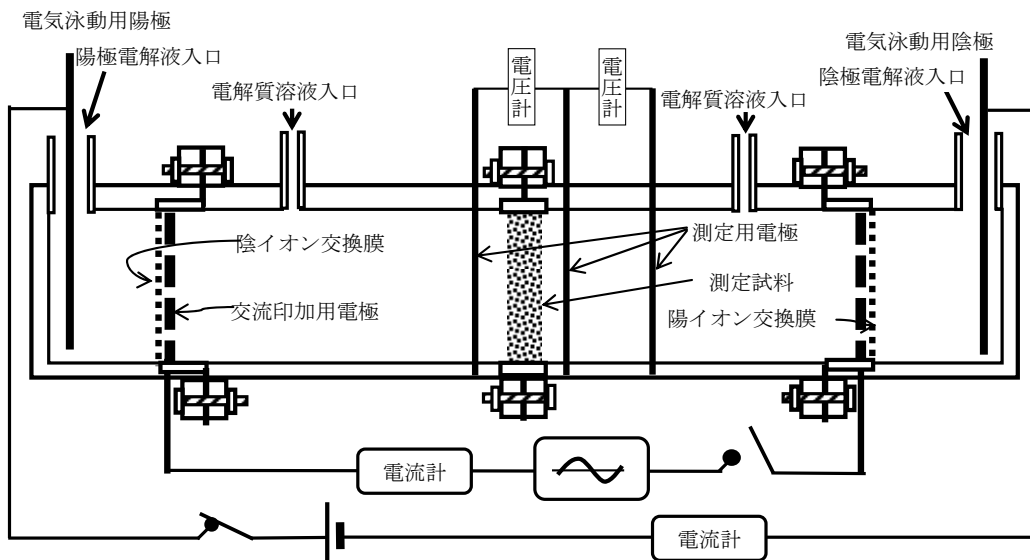


図 1.4-17 実効拡散係数測定用電気泳動装置

水酸化カルシウムで飽和した電解質溶液を満たした内径 3cm の円筒状のセルの中央部に円盤状の測定試料を挟み込み、純鉄製陽極とステンレス製陰極間に電気泳動用直流を印加する。試料および溶液の抵抗値は測定用電極で読み取られる。直流抵抗がほぼ一定となるまで電流を流した

後、約 500Hz の交流を印加して正しい抵抗値を読み取る。イオン交換膜は、直流印加で生じる電気分解生成物の電解質溶液内への混入を防止する。陽極では、侵入した Cl⁻に見合う分の Fe²⁺が生じるが、これは電解液中のエチレンジアミン四酢酸 (EDTA) と反応して安定化する。陰極では、侵入した Na⁺に見合う分の OH⁻と H₂が生じる。EDTA が無いと金属水酸化物の沈殿が生じる。溶液中の電解質濃度は電気泳動とともに減少する。正負イオンの移動度には差があるので、減少の程度は正負電極側で異なる。減少量は積算電流値から推定できるが、この値が溶液中の電解質量の数%程度に達したら溶液を新しいものと交換する必要がある。

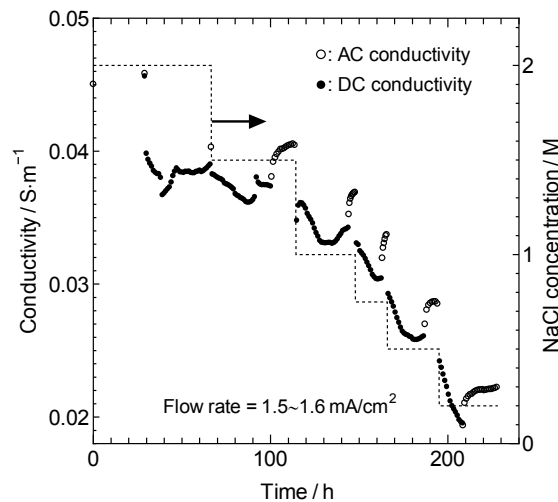


図 1.4-18 NaCl 溶液濃度を変えた際の OPC モルタルの導電率応答

3) 測定結果

飽和水酸化カルシウム中で 1 年間水中養生させた、細骨材/セメント比 3, 水/セメント比 0.55, 厚さ 9.2mm, 直径 29mm、細孔率 0.25 のモルタル円板 (OPC モルタル) を、異なる濃度の Ca(OH)₂ 飽和 NaCl 溶液に浸漬して測定した結果を図 1.4-18 に示す。直流導電率が一定となるのにほぼ 1 昼夜を要するが、その過程で導電率に不規則性が観測される。これは直流印加による電気浸透流や細孔内の荷電粒子の移動による細孔構造の乱れによるものであろう。交流伝導率は直流を遮断してから測定する。これは時間とともに上昇した後一定値に達するが、これが測定電極の物性回復によるものか、あるいは直流で生じた系の乱れの回復によるものかは明らかでない。

図 1.4-19 に示すように、OPC モルタル中の細孔壁はイオン電導性を持つため、OPC モルタルの導電率 σ_s と溶液の導電率 σ_L の比 σ_s/σ_L は一定とはならず、 $1/\sigma_L$ に対して直線的に減少する。図の切片は 0.0019 となるから、細孔内溶液中の電解質の拡散による実効拡散係数は、水溶液中の NaCl の拡散係数 $D_0=1.5 \times 10^{-9} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ を用いると、(1)式より、 $D_e=1.14 \times 10^{-11} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ となる。しかし、「土木学会基準 (案) JSCE-G 571-2003」に準拠して 0.5M の NaCl 溶液のみの値から拡散係数を求めると、実際より 4 倍程度大きな値となってしまう。

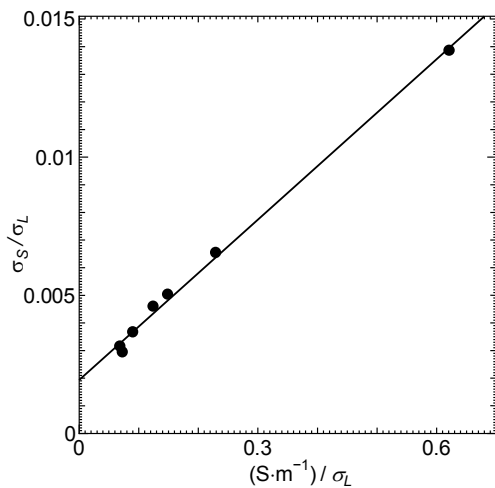


図 1.4-19 OPC モルタルの導電率 σ_s と溶液の導電率 σ_L の関係

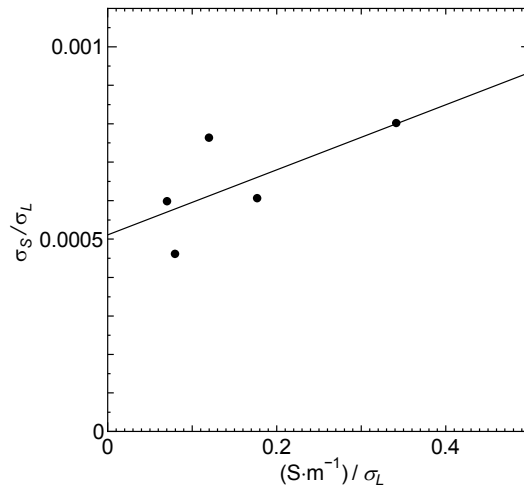


図 1.4-20 FA モルタルの導電率 σ_s と溶液の導電率 σ_L の関係

内割で 30wt%のフライアッシュを含むフライアッシュセメントを OPC の代わりに用いて作成した、細骨材／セメント比 3，水／セメント比 0.55，厚さ 9.9mm，直径 29mm、モルタル円板（FA モルタル）を飽和水酸化カルシウム中で 1 年間水中養生させ、OPC モルタルと同様の測定手法により測定した結果を図 1.4-20 に示す。細孔率は 0.22 である。切片の値は 0.0005 となるから、FA モルタルの実効拡散係数は $D_e=3.41 \times 10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ となり、OPC モルタルの 1/4.5 程度となることがわかる。しかしながらデータにはかなりのばらつきがあるので、これが正確な値かどうか、さらに検討する必要がある。

謝辞：本項は市川恒樹北海道大学名誉教授の協力により実施した。

(4) コンクリート中への塩化物イオンの浸透メカニズムに関する文献調査

コンクリートに塩化物イオン (Cl^-) が侵入すると鉄筋腐食などの有害な反応を引き起こすため、 Cl^- の浸透速度を知ることは、コンクリートの耐久性を知るうえで重要である。コンクリート中への Cl^- の浸透を予測するには、適切な Cl^- 浸透機構に基づく数式モデルを構築し、これに実測パラメータを入れて計算するというプロセスが必要になる。ここでは Cl^- の浸透研究がどのように発展してきたかを紹介する。Liu らはコンクリート内を拡散するイオン種の種類と拡散空間の種類に基づき、イオン浸透に関する研究を表 1.4-4 のように分類している¹⁾。以後この分類に基づいて文献紹介を行う。

表 1.4-4 拡散イオン種と拡散空間の数に基づくコンクリートへのイオン浸透研究の分類

	拡散空間は均一	拡散空間はペーストと骨材境界相
単一種のみが拡散 Cl^- 、 Na^+ 等が拡散	単一イオン種・単一空間系 複数イオン種・単一空間系	単一イオン種・複数空間系 複数イオン種・複数空間系

i) 単一イオン種・単一空間系

コンクリートに対する Cl^- の実効拡散係数を測定した初期の例としては、Page らの研究が挙げ

られる²⁾。彼らは、一方に $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 飽和 1M NaCl 溶液、他方に $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を入れた拡散セルを用い、水/セメント比を変えた試料に対する NaCl の実効拡散係数を測定した。その結果、NaCl の拡散活性化エネルギーとして $\sim 40\text{kJ/mol}$ を得ているが、この値はバルク水中での NaCl の拡散の活性化エネルギー 18.5kJ/mol に比べて 2 倍以上大きい。Atkinson らは、これが加熱による細孔の不可逆的構造変化のためではないかと推測している³⁾。

拡散セルによる実効拡散係数の測定には数か月を要する。Luping らは、測定時間を短縮するため、電気泳動法によって浸透した Cl^- の浸透深さを測る方法を提案した⁴⁾。彼らは水/セメント比の異なるセメントペースト及びモルタルに電気泳動で 3%NaCl 溶液を浸透させた時の試料中での Cl^- 分布を測定し、それと理論式で得られる分布とを比較することにより、拡散係数を決定した。また、拡散セルを用いて得た拡散係数との比較も行った。彼らは試料中の電場が常に一定と仮定したときの拡散方程式の解と実測値を比較し、拡散係数を求めている。電場が一定ということは NaCl が試料に一部浸透しても電気抵抗が変わらないことを意味するが、NaCl が浸透するとその部分の電気抵抗は減少するので、この仮定は正しくない。彼らの得た拡散係数と拡散セルを使って得た値との一致度はよくないが、これは拡散セルを使った方法では、試料と溶液との界面の濃度が正しく見積もられていないためであろうと推測している。また、イオン交換によるイオン吸着は無いものとしている。

ii) 複数イオン種・単一空間系

Li ら⁵⁾は鉄筋コンクリートの鉄筋を陰極、外部電極を陽極にして電気泳動で Cl^- イオンを除去する場合の有限要素法による計算を、活量係数の濃度依存性も含めて行っている。取り扱っているイオン種は Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- 、 OH^- である。活量係数の実測値を使っていないため、結果の信頼性は不明である。2年後の Li らの論文⁶⁾では、実測実効拡散を用いることなく同様の系を有限要素法で計算することも試みている。しかしながら実測拡散係数を求める際に屈曲率などをアジャスタブルパラメーターとして導入しているので、実測実効拡散を使っているのと同じことになる。

Truc ら⁷⁾は、細孔水に Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- 、 OH^- が含まれるコンクリートに電気泳動法で Cl^- を浸透させた場合の、泳動電流一定下での拡散方程式の数値解を種々の条件下で求めた。 Cl^- イオンの吸着に関しては瞬時平衡が成り立つとし、吸着量 C_b はラングーミュアの等温吸着式で与えられるとした。拡散方程式には活量係数の項も含まれている。

Krabbenhøft ら⁸⁾、および Friedman ら⁹⁾も文献 7)と同様の計算結果を得ており、文献 7)と同様、電気泳動法で得られた実験結果から実効拡散係数を決定する際のデータ解析法の問題点について指摘している。しかしながら、いずれの文献も実際の拡散では生じないが電気泳動時にのみ特異的に生じる、フリーデル氏塩などイオン交換体内でのイオン移動の寄与については触れていない。文献 9)では、電気泳動実験と理論計算値の不一致の原因として、細孔壁の表面電荷によって生じる電気 2 重層内での拡散係数の減少効果を挙げている。

実際のコンクリートでは、イオンの濃度変化に伴い、イオン交換や溶解、沈殿など様々な化学反応が誘起されるし、イオンの活量も変化するから、拡散方程式にはこれらの反応を組み込む必要がある。Samson らは、文献 10)で、これらの問題について概説している。

Truc ら¹¹⁾は拡散セルを用いた場合のイオン拡散についても同様の計算をしており、“実効拡散係数が入り口側の NaCl 水溶液の濃度に依存する。”という過去の結論が、液間ポテンシャル項の無視に基づく誤りであることを見出した。

これまでの実験や計算の多くは 1 次元空間系で行われてきたが、Wang ら¹²⁾は、計算を 2 次元に拡張し、鉄筋を陰極とした電気泳動 Cl^- 除去時の鉄筋周りのイオン分布を計算している。計算結果の図表は膨大だが、特に変わった計算結果は見られない。

Johannesson ら¹³⁾は、3%NaCl 水溶液に 1 年間浸漬したコンクリート試料中の元素分布を EPMA で測定し、これを Cl^- 、 OH^- 、 Na^+ 、 K^+ 、及び Ca^{2+} が関与する、これらのイオンとセメントペースト間のイオン交換反応を含んだ拡散方程式で再現することを試みた。細孔壁が負に帯電しているためカチオンの拡散係数はバルク水の 40% となるとし、溶解反応も含めて、固液間のイオンの出入りはセメントペースト成分とのイオン交換であるとし、交換反応の速度定数は測定値のベストフィットから求めた。静電ポテンシャル（液間ポテンシャル）はポアソン方程式から求めている。なお、用いた拡散方程式には通常含まれる電場と濃度勾配の積の項が含まれていないが、その理由は不明である。

Elakneswaran ら¹⁴⁾は、イオン交換反応の替りに、イオンが帯電細孔壁がつくる電気 2 重層に固定化されるというモデルに基づく拡散方程式の数値計算を行っている。

表面電荷を有する細い細孔内でのイオン拡散の問題は数学的には厄介な問題である。表面電荷によって生じる拡散電気 2 重層の電界と正負イオン間の自己拡散係数の違いによって生じる液間電位が同程度のスケールで重なり合うため、分離して扱うことが困難になるからである。Friedmann ら¹⁵⁾は（おそらく）液間ポテンシャルがなくて濃度勾配がある場合の、平行平板帯電空間内でのイオン拡散に対する電気 2 重層の寄与を計算している。しかしながら、濃度勾配があると必ず液間ポテンシャルが発生するので、このような取り扱いに意味があるかどうか疑問である。

iii) 単一イオン種・複数空間系

骨材を含むコンクリートでは、骨材とセメントペーストが接する部分の骨材境界層が疎な組織になるため、イオンの拡散はペースト内よりも早くなる。このため実測実効拡散係数を用いることなくコンクリート中での Cl^- の浸透速度を予測するには、ペースト内のイオン拡散と骨材境界層のイオン拡散を別々に取り扱う必要がある。イオンは準連続体としてのセメントペーストを通過して骨材境界層に入り、ここで素早く拡散し、再度セメントペーストを通るか直接別の骨材境界層に移るといふ、パーコレーション的な拡散をすることになる。骨材境界層の形状は骨材の形状で決まるから、このような取り扱いによって浸透速度の骨材形状依存性なども求めることができる。

骨材境界層での拡散もセメントペースト内での拡散も基本的拡散メカニズムは同じだから、問題となるのは、セメントペーストの中にどのように骨材境界層空間を配置するかだけである。Garboczi ら¹⁶⁾は、ペーストを一定導電率の導体、骨材をより高い導電率の疎なペーストで包まれた絶縁体と見なし、骨材をペースト中にランダムに配置した場合の電流値を電気工学で開発された計算手法によって求めている。

Dergrave ら¹⁷⁾は水/セメント比および砂/セメント比を変えたモルタルの Cl^- 拡散係数を測定し、砂が増えると拡散係数は低下するが、ペースト単位体積当たりの拡散係数は上昇することを報告している。

Garboczi ら¹⁸⁾はセメントペースト内のイオン拡散をミクロンスケールで取り扱い、境界層を有する骨材を配置した状態での拡散をミリスケールで取り扱うマルチスケール手法と、その計算

結果について報告している。彼らはマルチスケール手法で得た導電率計算と実験データとの比較も行っている¹⁹⁾。

Xi ら²⁰⁾は Cl^- を透過しない骨材の境界層での Cl^- 拡散を骨材内部での拡散と見なし、実験とのよい一致を見ている。

セメントペーストと骨材境界層でのイオン拡散をきちんと分けて取り扱うためには、骨材境界層の厚さと骨材境界層でのイオン拡散を知る必要がある。Yang ら²¹⁾は骨材体積/モルタル体積比 = V_f を 0% から 40% まで変化させた水/セメント比 0.4 のモルタルの Cl^- 電気泳動時の電気伝導度測定と V_f の関係から、骨材境界層の厚さ h とそこでの拡散係数を推定している。

Caré ら²²⁾は、骨材の大きさは異なるが骨材体積比の等しいコンクリートの Cl^- 拡散係数を実測し、拡散モデルに基づく最適関数を得ている。なお、Oh らは最適拡散係数としてこれとは異なった関数を得ている²³⁾。

iv) 複数イオン種・複数空間系

前述 iii) では移動イオン種は Cl^- だけなので、 Cl^- の拡散と吸着のみを考慮すればよかった。自然条件ではこれ以外に Na^+ や OH^- などの拡散が問題となるので、拡散方程式はややこしくなるが、基本的には複数イオン種・単一空間系で得られた解析手法を単一イオン種・複数空間系で得られた解析手法に組み込んで解析するだけである。Liu らは、上記手法により、電気泳動によるイオンの浸透を解析している^{1,24)}。

v) 終わりに

コンクリートの塩害を予測するにはコンクリート中での Cl^- の拡散速度を知ることが何よりも重要である。拡散セルを用いてこれを決めようとする測定に数か月をようするため、電気泳動法で決定する場合が多い。しかしながら文献調査の結果からわかるように、その値は拡散セルで求めた真の値とは一致しない。調査したすべての文献では、これを共存イオンの効果としており、イオン伝導体の影響を考慮した文献は見当たらない。実際のコンクリートは細孔水以外にもイオン電導性を持つため、細孔溶液のイオン濃度をゼロとした極限でもイオン電導することが我々の実験から判明している。電気泳動法で正しい拡散係数を知るには、この効果を除去することが必要である。文献に現れる実効拡散係数の多くは、実効拡散係数の定義から外れている。その原因は、研究者の多くが“真の拡散空間である細孔内空間のみを取り扱い空間としたい。”という願望を持っているからだと思われるが、これを実現するには、細孔率と屈曲度を前もって知る必要がある。

謝辞：本項は市川恒樹北海道大学名誉教授(国立環境研究所客員研究員)の協力によった。

参考文献

- 1) Liu QF, Li LY, Easterbrook D, Yang J, Li LY. A three-phase, multi-component ionic transport model for simulation of chloride penetration in concrete. Eng Struct 2015; 86:122–133
- 2) Page CL, Short NR, El-Tarras A. Diffusion of chloride ions in hardened cement pastes. Cem Concr Res 1981;11(3):395–406.
- 3) Atkinson A, Nickerson AK. The diffusion of ions through water-saturated cement. J Mater Sci 1984;19:3068–78.

- 4) Tang L, Nilsson LO. Rapid determination of the chloride diffusivity in concrete by applying an electric field. *ACI Mater J* 1993;89(1):49–53.
- 5) Li LY, Page CL. Modelling of electrochemical chloride extraction from concrete by using electrochemical method. *Comput Mater Sci* 1998;9:303–8.
- 6) Li LY, Page CL. Finite element modelling of chloride removal from concrete by an electrochemical method. *Corros Sci* 2000;42(12):2145–65.
- 7) Truc O, Ollivier JP, Nilsson LO. Numerical simulation of multi-species transport through saturated concrete during a migration test – MSDIFF code. *Cem Concr Res* 2000;30(10):1581–92.
- 8) Krabbenhoft K, Krabbenhoft J. Application of the Poisson–Nernst–Planck equations to the migration test. *Cem Concr Res* 2008;38(1):77–88.
- 9) Friedmann H, Amiri O, Ait-Mokhtar A. Shortcomings of geometrical approach in multi-species modelling of chloride migration in cement-based materials. *Mag Concr Res* 2008;60(2):119–24.
- 10) Samsona E, Marchanda J,b,_Beaudoinc JJ. Modeling the influence of chemical reactions on the mechanisms of ionic transport in porous materials An overview. *Cem Concr Res* 2000;30:1895–1902.
- 11) Truc O, Ollivier JP, Nilsson LO. Numerical simulation of multi-species diffusion. *Mater Struct* 2000;33(233):566–73.
- 12) Wang Y, Li LY, Page CL. A two-dimensional model of electrochemical chloride removal from concrete. *Comput Mater Sci* 2001;20(2):196–212.
- 13) Johannesson B, Yamada K, Nilsson LO, Hosokawa Y. Multi-species ionic diffusion in concrete with account to interaction between ions in the pore solution and the cement hydrates. *Mater Struct* 2007;40(7):651–65.
- 14) Elakneswaran Y, Iwasa A, Nawa T, Sato T, Kurumisawa K. Ion-cement hydrate interactions govern multi-ionic transport model for cementitious materials. *Cem Concr Res* 2010;40(12):1756–65.
- 15) Friedmann H, Amiri O, Ait-Mokhtar A. Physical modelling of the electrical double layer effects on multispecies ions transport in cement-based materials. *Cem Concr Res* 2008;38(12):1394–400.
- 16) Garboczi EJ, Schwartz LM, Bentz DP. Modelling the influence of the interfacial zone on the conductivity and diffusivity of concrete. *J Adv Cem-Based Mater* 1995;2:169–81.
- 17) Delagrave A, Bigas JP, Ollivier JP, Marchand J, Pigeon M. Influence of the interfacial zone on the chloride diffusivity of mortars. *Adv Cem Based Mater* 1997;5(3–4):86–92.
- 18) Garboczi EJ, Bentz DP. Multiscale analytical/numerical theory of the diffusivity of concrete. *Adv Cem Based Mater* 1998;8(2):77–88.
- 19) Shane JD, Mason TO, Jennings HM. Effect of the interfacial transition zone on the conductivity of Portland cement mortars. *Am Ceram Soc* 2000;83(5):1137–44.

- 20) Xi Y, Bazant ZP. Modeling chloride penetration in saturated concrete. *J Mater Civ Eng* 1999;58–65.
- 21) Yang CC, Su JK. Approximate migration coefficient of interfacial transition zone and the effect of the aggregate content on the migration coefficient of mortar. *Cem Concr Res* 2002;32(10):1559–65.
- 22) Care S. Influence of aggregates on chloride diffusion coefficient into mortar. *Cem Concr Res* 2003;33(7):1021–8.
- 23) Byung HO, Seung YJ. Prediction of diffusivity of concrete based on simple analytical equations. *Cem Concr Res* 2004;34(3):463–80.
- 24) Liu QF, Li LY, Easterbrook D, Yang J. Multi-phase modelling of ionic transport in concrete when subjected to an externally applied electric field. *Eng Struct* 2012;42:201–13.

1.4.3 焼却飛灰とコンクリートの相互作用

(1) 焼却炉排ガスの中で生じるカルシウム塩化物の存在化学形態

都市ごみなどの廃棄物を焼却炉で焼却処理して生じる排ガス中には、硫酸や主として塩化ビニルなどの有機塩化物の分解によって生じる塩酸（HCl）などの酸が多量に含まれる。排ガスの中和を目的として排ガス中に投入された水酸化カルシウム（Ca(OH)₂）は塩酸と反応してカルシウム塩化物となる。このためごみ焼却飛灰には、ごみの焼却で生じる飛灰に加えて、カルシウム塩化物が多量に含まれることとなる。福島原発事故で飛散した放射性Csを含む廃棄物を焼却処理して生じた焼却飛灰には、カルシウム塩化物と水溶性の放射性Csが含まれるが、カルシウム塩化物が吸湿性の塩化カルシウムである場合、保存飛灰は吸湿により水溶液を生じるから、これに放射性Csが溶解し、周囲を汚染する可能性がある。よって焼却飛灰中のカルシウム塩化物の存在形態を明らかにすることは、飛灰の安全保管上である。よって本研究ではCaCl₂、Ca(OH)₂共存系でのカルシウム塩化物の存在形態に関する文献調査を行い、次に模擬焼却飛灰の吸湿実験に用いるのと同様の条件下でのCaCl₂、Ca(OH)₂共存系でのカルシウム塩化物の形態について実験的に明らかにした。これらの研究により以下の諸点が明らかになった。

- 1) カルシウム塩化物の化学形態については反応 $\text{Ca(OH)}_2 + 2\text{HCl} \rightarrow \text{CaCl}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$ で生じる塩化カルシウム（CaCl₂）であると信じられてきたが、飛灰のX線回折スペクトル等の解析から、Ca(OH)₂が残存している場合にはそのほとんどが塩化水酸化カルシウム [同一化合物であるがさまざまに表記される。CaClOH、CaCl(OH)、CaOHCl、又はCa(OH)Cl等] であって、反応は逐次反応

$$\text{Ca(OH)}_2 + \text{HCl} \rightarrow \text{CaClOH} + \text{H}_2\text{O}, \quad \text{CaClOH} + \text{HCl} \rightarrow \text{CaCl}_2 + \text{H}_2\text{O}$$
 で進行する。
- 2) Ca(OH)₂とCaCl₂•2H₂Oを常温で混合するとCaClOHが次第に生じるが、これは機械的混合によって生じる化学反応であるメカノケミカル反応であって、結晶水はイオン再配向を助ける触媒としての役割を持っている。Ca(OH)₂とCaCl₂の常温混合ではCaClOHはほとんど生じない。
- 3) 模擬飛灰の乾燥条件である250℃以上では、Ca(OH)₂、CaCl₂•2H₂O混合物及びCaCl₂、Ca(OH)₂

混合物、共にCaClOHに変化する。このため乾燥模擬飛灰中でのカルシウム塩化物の主成分はCaClOHとなる。しかしながら無水CaCl₂は結晶性が悪くXRD信号が弱いため、これが共存していても検出が困難である。よって焼却飛灰中の無水CaCl₂の存在を否定することはできない。

- 4) CaClOH、CaCl₂、共に吸湿によって固相表面はCaCl₂飽和溶液に覆われることとなる。CaCl₂飽和溶液は強い吸湿性を持つので、ここに水蒸気が凝縮するが、そこに固相からCaCl₂が溶け込むので、結局のところ、焼却飛灰の吸湿特性はカルシウム塩化物の存在形態がCaClOHであってもCaCl₂であっても変わらないこととなる。

以下にこれらの結論を得るに至った研究についての文献リストと実験結果をまとめる。

文献リスト

- [1] Jatta Partanen*, Peter Backman, Rainer Backman1, Mikko Hupa, Absorption of HCl by limestone in hot flue gases. Part II: importance of calcium hydroxychloride, Fuel 84 (2005) 1674–1684, 及び論文中の引用文献
- [2] Wojciech Jozewicz, Brian K. Gullett, Reaction Mechanisms of Dry Ca-Based Sorbents with Gaseous HCl, Ind. Eng. Chem. Res. 34 (1995), 607-612
- [3] Chien-Song Chyang, Yun-Long Han, and Zi-Chao Zhong, Study of HCl Absorption by CaO at High Temperature, Energy & Fuels 23 (2009), 3948–3953
- [4] F. Bodéan, Ph. Deniard, Characterization of flue gas cleaning residues from European solid waste incinerators: assessment of various Ca-based sorbent processes, Chemosphere 51 (2003) 335–347
- [5] Fenfen Zhu, Masaki Takaoka, Kenji Shiota, Kazuyuki Oshita, Yoshinori Kitajima, Chloride Chemical Form in Various Types of Fly Ash, Environmental Science & Technology, 42 (2008), 3932-3937
- [6] Rong Yan, Terence Chin, David Tee Liang, Karin Laursen, Wna Yean Ong, Kaiwen Yao, Joo Hwa Tay, Kinetic Study of Hydrated Lime Reaction with HCl, Environ. Sci. Technol. 37 (2003), 2556-2562
- [7] Kouki Kasuya, Naomi Onodera, Atsushi Iizuka, Etsuro Shibata, Takashi Nakamura, Reaction of Tricalcium Aluminate with Hydrogen Chloride under Simulated Bag Filter Conditions, Ind. Eng. Chem. Res. 51 (2012), 6987–6990

塩化カルシウムと水酸化カルシウムの混合処理で生じる化合物の実測を行った。

- ①CaCl₂・2H₂O と Ca(OH)₂ の 1 : 1 モル混合物を 250℃で 1 週間保存したもの (封管)
②CaCl₂・2H₂O と Ca(OH)₂ の 1 : 1 モル混合物を 25℃で 1 週間保存したもの
③無水 CaCl₂ と Ca(OH)₂ の 1 : 1 モル混合物を 250℃で 1 週間保存したもの (封管)
④無水 CaCl₂ と Ca(OH)₂ の 1 : 1 モル混合物を 25℃で 1 週間保存したもの
⑤原料である CaCl₂・2H₂O ⑥原料である無水 CaCl₂ ⑦原料である Ca(OH)₂

以上の試料を作成後、10日間室温にて保存後XRD測定した結果、以下の事実が判明した。

無水CaCl₂のほとんどは非晶質である。25℃で純無水CaCl₂とCa(OH)₂を混合攪拌しただけ

では CaClOH は生成しないものと推定される。25℃で $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ と $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を混合攪拌すると、メカノケミカル反応によって $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} + \text{Ca}(\text{OH})_2 \rightarrow 2\text{CaClOH} + 2\text{H}_2\text{O}$ が生じる。室温での熱反応、メカノケミカル反応ともに水が反応の触媒となっているものと思われる。例えば $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} + \text{Ca}(\text{OH})_2 \rightarrow 2\text{CaClOH} + 2\text{H}_2\text{O}$ の反応で自由となった水が $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ を溶かして CaCl_2 溶液となり、この溶液が $\text{Ca}(\text{OH})_2$ と反応して CaClOH を作り出すとともに水をさらに放出させる、という具合に反応が進行すれば、 CaClOH 生成反応は固液反応となるため、物質移動が容易となり室温でも反応が起こる。

$\text{Ca}(\text{OH})_2$ を多量に含む洗浄焼却飛灰に CaCl_2 と NaCl 、 KCl を混合し、230℃で乾燥した模擬飛灰中での CaCl_2 もまた CaClOH に転換しているものと思われる。実際、 NaCl 、 KCl 、 CaCl_2 の含量が同じなら、洗浄前の乾燥飛灰の吸湿挙動は模擬飛灰のそれと同じだった。

謝辞：本項は市川恒樹北海道大学名誉教授(国立環境研究所客員研究員)の協力によった。

(2) 湿潤飛灰によるコンクリートの乾燥解析

1) コンクリート内の水分移動に伴う乾燥収縮の評価

i) 試験体概要および試験方法

試験に用いた試験体の概要および浸漬試験の方法を以下に記す。コンクリートが飛灰と接触した場合について、コンクリート内部の水分分布を特殊な試験体を作製し調べた。

使用材料と配合について、普通コンクリートおよび対策コンクリートの使用材料を表 1.4-5 に、配合を表 1.4-6 に示す。混和剤は、普通コンクリートには AE 減水剤を、対策コンクリートには高性能 AE 減水剤を用いた。

表 1.4-5 使用材料

使用材料	記号	種類・名称	製造会社・産地・備考等	密度(g/cm ³)
水	W	水道水	-	-
セメント	C	普通ポルトランドセメント	太平洋セメント株式会社 熊谷工場品	3.16
フライアッシュ	FA	フライアッシュ II 種	東北電力 能代産	2.31
膨張材	Ex	ハイパーエキスパン	太平洋マテリアル株式会社 セメントに内割り置換	3.16
細骨材	S	山砂	静岡県掛川市産 絶乾密度 2.55、吸水率 1.58	2.59 (表乾密度)
粗骨材(注)	G	G _大	茨城県桜川市産 絶乾密度 2.64、吸水率 0.43	2.65 (表乾密度)
		G _小	茨城県桜川市産 絶乾密度 2.60、吸水率 0.90	2.62 (表乾密度)

(注)粗骨材は、質量比で G_大:G_小=0.25:0.75 で混合して使用。

表 1.4-6 コンクリートの配合

種類	W/B (%)	s/a (%)	単位量(kg/m ³)						
			W	P			S	G	
				C	FA	Ex		G _大	G _小
普通コンクリート	55	47	163	296			850	972	
				296	-	-		245	727
対策コンクリート	40	44	151	377			764	987	
				246	113	18		249	738

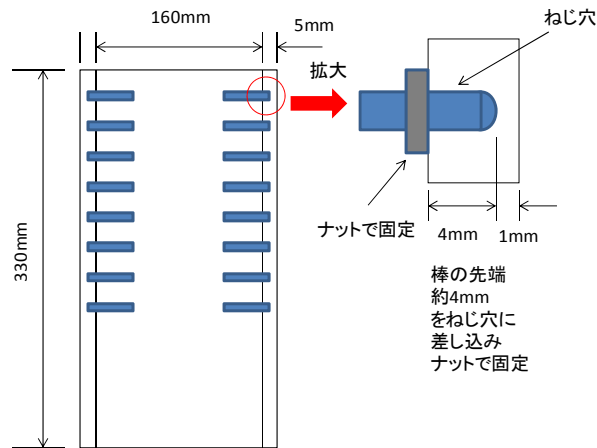


図 1.4-21 加工したアクリルパイプのイメージ

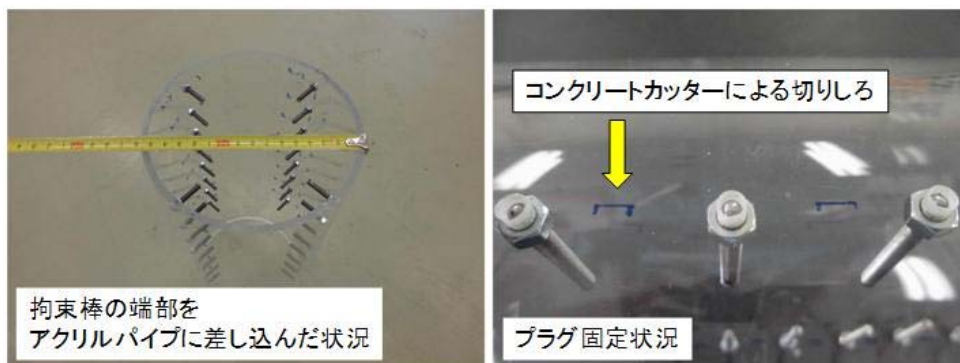


図 1.4-22 加工したアクリルパイプ

型枠は外径 160mm、内径 150mm、厚さ 5mm のアクリルパイプに $\phi 3\text{mm}$ の穴を所定位置に
あけ、この穴に JIS A6202 「コンクリート用膨張材」 附属書 1 に記載されている拘束器具の構成
部品の一つである拘束棒 (M4 \times 0.7) の両端を約 25mm の長さに切断したもの (以下、プラグと
記載) をアクリルパイプの中心で直交する 2 方向の 4 箇所差し込んだ。プラグの差し込みは、
プラグの先端がアクリルパイプの外周から突き出ないように差し込んだ。図 1.4-21 にアクリルパ
イプの加工イメージを、図 1.4-22 に加工したアクリルパイプを示した。加工したアクリルパイプ
をコンクリート打設時に倒れないように、木箱に入れてコンクリートを打設した。

コンクリート打設後、打設面をラップで覆い材齢 28 日まで 40 $^{\circ}\text{C}$ の恒温槽内で封緘養生を行い、
その後、材齢 44 日まで 20 $^{\circ}\text{C}$ 封緘養生を行った。

材齢 44 日目にコンクリートカッターを用いてプラグを埋め込んだ部分を中心に厚さが約
25mm となるようにスライス片 8 枚を湿式で切り出し、切り出したスライス片の質量と長さを測
定した。図 1.4-23 には、ラップで包んだ状態のスライス片を示す。各スライス片の質量と長さを
測定後、プラグに防錆スプレーを塗布し、図 1.4-24 に示すようにプラグにプラスチック製のキャ
ップを被せた。その後、切断したスライス片 8 枚を再度重ね合わせ、解放面 (打設面) を除く全
ての面をシールした。鉛箔テープと防水気密テープの貼った状況を図 1.4-25 に示す。

作製した試験体は、普通コンクリートおよび対策コンクリートの計 2 体を、それぞれ乾燥焼却
飛灰および湿潤焼却飛灰に浸漬させた (合計 4 体)。

JIS A6202 「コンクリート用膨張材」 附属書 1 に記載されている測長器を用いてスライス片に

埋め込んだ4箇所のプラグ間の長さを直交する2方向（X、Y方向）で測定した。なお、アクリルパイプの穴に差し込んだプラグの長さは、事前にノギスで測定した。



図 1.4-23 切り出したスライス片

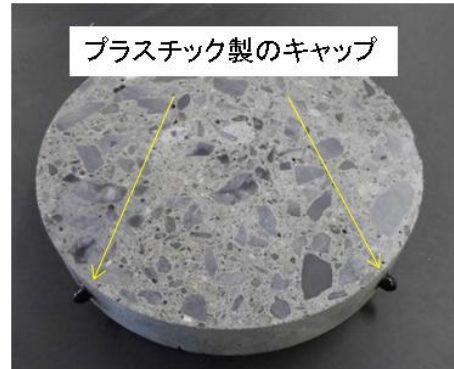
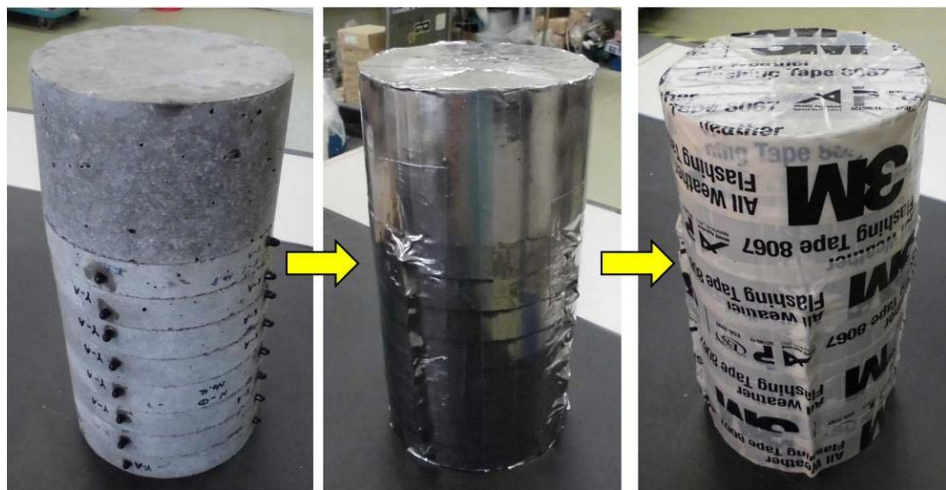


図 1.4-24 試験体に埋め込んだプラグにキャップを被せた状態



スライス片の重ね合わせ

鉛箔テープを巻いた状態

防水気密テープを巻いた状態

図 1.4-25 スライス片を重ねてシールした状態（下面が解放面）

ii) 試験体寸法、質量測定結果

飛灰への浸漬開始から約4ヵ月後と約12ヵ月経過後に試験体を飛灰から取り出し、試験体の寸法と質量を測定した。飛灰浸漬試験開始前、飛灰浸漬から約4ヵ月後、飛灰浸漬から約12ヵ月後に測定した試験体の質量について、図1.4-26 乾燥飛灰に浸漬した試験体を、図1.4-27 は湿潤飛灰に浸漬した試験体の結果を示す。

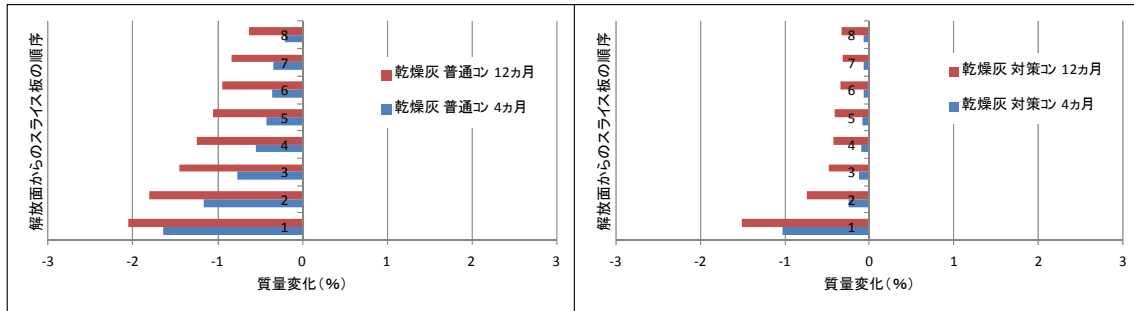


図 1.4-26 乾燥灰に浸漬した試験体の質量変化率

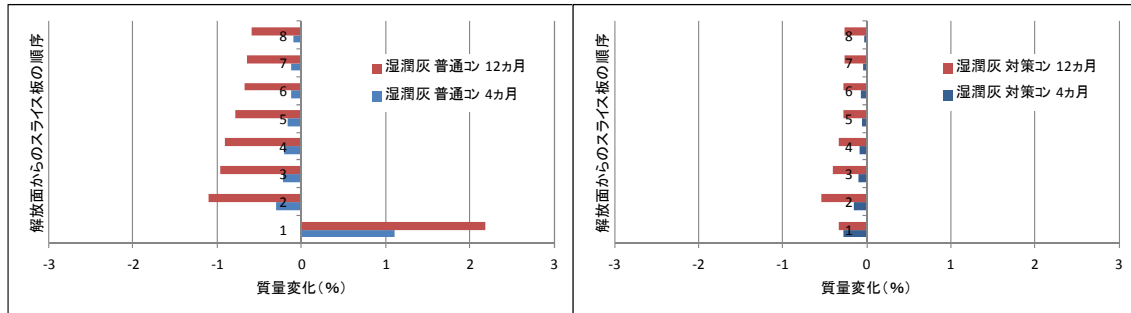


図 1.4-27 湿潤灰に浸漬した試験体の質量変化率

乾燥飛灰に浸漬した試験体の質量は、飛灰に直接接している解放面に近い試験体ほど質量減少が大きいの傾向を示した。これは、飛灰に近い試験体ほど試験体中の水分が飛灰に吸湿されやすかったためと考えられる。また、浸漬期間が長くなるほど質量は減少していた。対策コンクリートと普通コンクリートを比較した場合、対策コンクリートよりも普通コンクリートの方が減少率は大きくなっていった。これは、普通コンクリートよりも対策コンクリートの方が密実な組織を形成したため、飛灰による吸湿を抑えられたためと考えられる。

飛灰浸漬試験開始前、飛灰浸漬から約 4 カ月後、飛灰浸漬から約 12 カ月後に測定した試験体の長さ変化をについて、図 1.4-28 に乾燥飛灰に浸漬した試験体を、図 1.4-29 に湿潤飛灰に浸漬した試験体の結果を示す。乾燥灰に浸漬した試験体の長さ変化は収縮方向に変化しており、概ね、飛灰に接している解放面に近い試験体ほど長さ変化率は大きくなった。これは、解放面に近い試験体ほど試験体の水分が飛灰に吸湿されやすく乾燥収縮が進んだためと考えられる。このことは、試験体の質量減少率が解放面に近い試験体ほど大きくなっていることとも一致する。また、浸漬期間が長くなるほど試験体の乾燥収縮が進み、長さ変化率も収縮方向で大きくなったと考えられる。そして、長さ変化率は、対策コンクリートよりも普通コンクリートの方で大きくなっていった。これは、普通コンクリートよりも対策コンクリートの方が密実な組織を形成したため、飛灰による乾燥収縮を抑えられたものと考えられる。

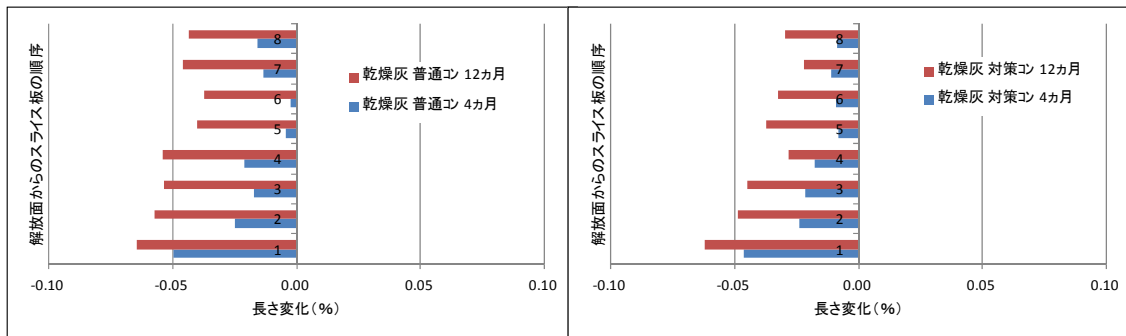


図 1.4-28 乾燥灰に浸漬した試験体の長さ変化率

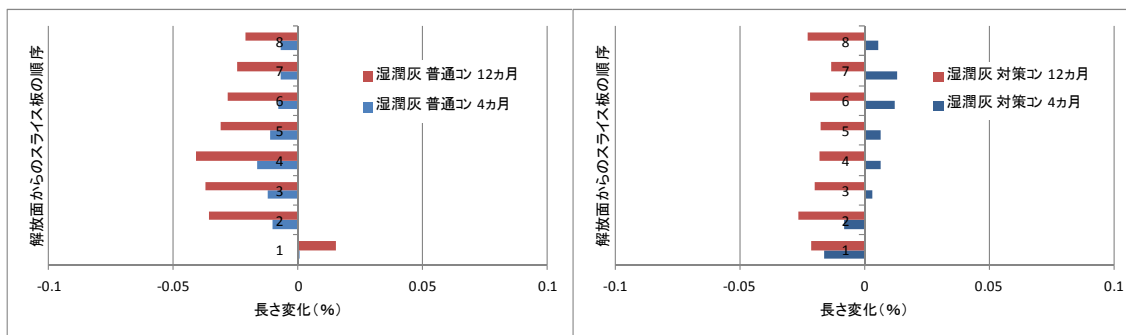


図 1.4-29 湿潤灰に浸漬した試験体の長さ変化率

次に、湿潤灰に浸漬した試験体では、乾燥飛灰に浸漬した試験体と同様に、収縮方向に変化しており、概ね、飛灰に直接接している解放面に近い試験体ほど長さ変化率は大きくなっていた。そして、長さ変化率は、浸漬期間が長くなるほど大きくなり、対策コンクリートよりも普通コンクリートの方で大きくなっていた。

一方、普通コンクリートの浸漬 12 ヶ月後の 1 層目の試験体で膨張側に長さが増加していたが、これは、試験体質量が増加していることから、湿潤飛灰に含まれる水分を試験体が吸湿したことが原因で膨張側に増加したと思われる。なお、浸漬 4 ヶ月後の対策コンクリートの解放面から 3 層目以降の試験体でも膨張側に長さが増加していたが、試験体質量は僅かに減少しており、理由については不明である。

2) 吸湿飛灰がコンクリートの乾燥収縮に及ぼす影響の評価

i) 目的

指定廃棄物の遮断型構造の処分場コンクリートピットの断面を模擬した試験体を作製し、焼却飛灰の吸湿によるコンクリートピット内部の乾燥状態におけるコンクリートの収縮挙動を明らかにすることを目的として、H26 年度に試験を開始した。図 1.4-30 に示すように、乾燥抑制塗料を用いて 4 面をシールし (1 面は観察面)、上部の 1 面は焼却飛灰による乾燥面とし、下面は飽和湿度の湿潤状態とし、実際に焼却飛灰を入れる遮断型構造のコンクリートピット断面を模擬し、画像相関法を用いて、経時的なコンクリートの上面からの乾燥および下面からの吸湿によって試験体撮影面に生じるひずみ分布の変化を測定した。

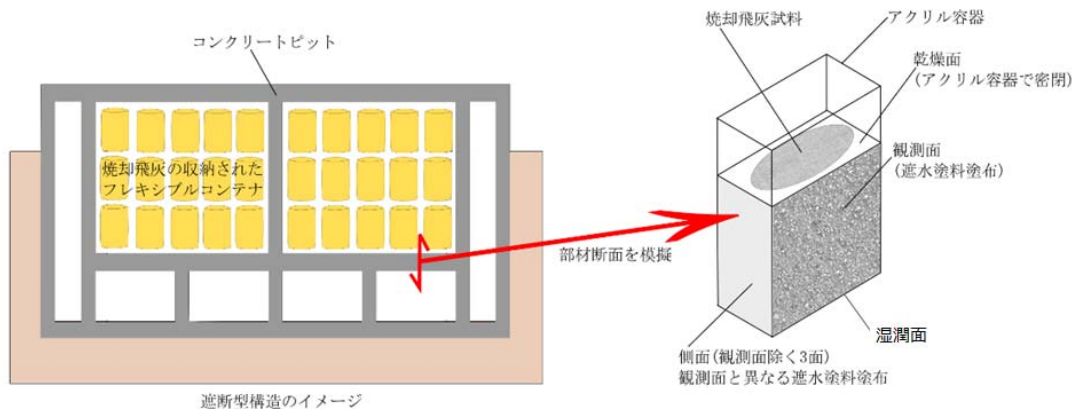


図 1.4-30 コンクリートピット断面と試験体の模擬図

実験において、最終処分場が建設される立地・気候や、コンクリートの調合に関しては複数の検討が必要になる。したがって、コンクリートの調合として、一般的な普通ポルトランドセメントを用いたコンクリート（以下、普通コンクリート）と、汚染焼却飛灰廃棄物の特性を考慮し、温度応力やアルカリ骨材反応、塩分浸透への抵抗性が高いと考えられる、フライアッシュと膨張材を使用したコンクリート（以下、対策コンクリート）とを比較対象とした。試験体の暴露条件として、20℃湿潤状態と 40℃湿潤状態での比較を行った。

また、コンクリートピットに格納される焼却飛灰の多くは、防水シートで作られたフレキシブルコンテナ容器に収納される。そのため、焼却飛灰の吸湿は主にフレキシブルコンテナの上部から起こり、このとき、コンクリートと焼却飛灰は互いに非接触の状態である。しかし、焼却飛灰がフレキシブルコンテナの底部や側部に生じた亀裂や、上部から漏れ出た場合には、焼却飛灰とコンクリートが接触した状態で焼却飛灰の吸湿が起こる。本研究では、このような焼却飛灰がコンクリートに接触および非接触の状態についても比較検討を行った。

ii) 試験方法

a) 使用材料およびコンクリート調合と試験体作製

使用材料およびコンクリート調合は表 1.4-5 および表 1.4-6 と同じである。試験体の養生は、脱枠後、材齢 28 日まで 40℃封緘養生を行い、その後、20℃封緘養生を行った。材齢 61 日目に湿式のコンクリートカッターで 100mm×100mm×50mm のサイズに切り出した。試験体を切り出し後、画像を取得する切断面 1 面と上下方向の型枠面 2 面の計 3 面を除いた 3 面をエポキシ樹脂で被覆した。十分に硬化した後、デジタル画像相関法に用いる試験体の観測面は、切断後、表面に見られる空隙を二液反応硬化系エポキシ樹脂で埋め、樹脂の硬化後に湿式研磨を行い、平滑な面とした。その後、遮水塗料を塗布した。

その後、試験体の上側に高さが 50mm となるアクリル容器を設置した。このアクリル容器の中には、接触、非接触の状態となるように塩化カルシウムを混合した飛灰を入れた。

b) 試験パラメータ

表 1-4.7 に本実験で扱う試験体のパラメータを示す。温度条件は 20℃および 40℃の 2 水準とした。本実験では、各温度条件における試験体の下側の湿潤面の暴露状態を、各温度の恒温槽において、湿ったウエスの入ったアルミニウム製の密閉袋（以下、アルミバック）に試験体を入れ湿潤状態を保って行った。

表 1.4-7 画像相関法試験水準一覧

パラメータ	調合	乾燥	飛灰	飛灰+CaCl ₂ 量(g)
N20C	普通	20℃	接触	62.92
N20UC			非接触	36.39
N40C		40℃	接触	68.92
N40UC			非接触	43.37
NFE20C	対策	20℃	接触	63.55
NFE20UC			非接触	34.85
NFE40C		40℃	接触	65.52
NFE40UC			非接触	34.79

試験体の上側の乾燥面（以下、上乾燥面）に取り付けたアクリル容器には、内部に焼却飛灰を添加する。飛灰の添加状態は、接触・非接触の2水準とした。これは、処分場のコンクリートピット内部で起こる焼却飛灰の吸湿挙動が、焼却飛灰がコンクリートに接した状態と接していない状態で起こることを想定している。図 1.4-31 に2水準の飛灰試料の添加状況を示す。試験体の上乾燥面に5×10×5cmのアクリルケースを接着剤で取り付け密閉とし、内部に焼却試料を添加した。非接触水準では、前述のアクリルケース内部に4×9×3cmのアクリル容器を置き、容器内に飛灰試料を添加した。本実験では、焼却飛灰にCaCl₂を15wt%で添加した試料を用いた。添加する試料高さを2cmで統一して実施した。

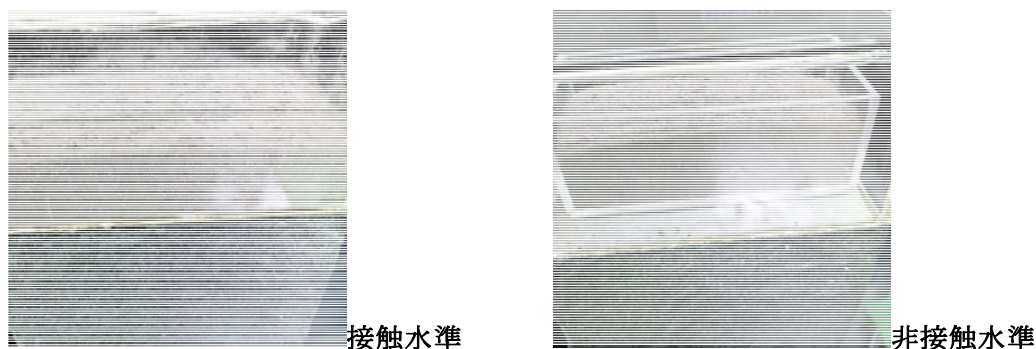


図 1.4-31 飛灰試料の添加状況

c) 画像相関法による二次元ひずみの測定

画像相関法は既往の方法¹⁾を用いた。各パラメータにおいて試験体を用いて、画像相関法（デジタル画像相関法）により試験体観測面に生じたひずみ分布を測定した。同時に、試験体の質量を電子天秤で数日おきに測定した。

デジタル画像相関法²⁾とは、試験体表面にランダムな模様を作成し、変形前後をデジタルカメラなどで撮影、得られたデジタル画像の輝度分布から、試験体の変位とその方向を求める手法である。本検討では、二次元のひずみ分布を測定することにより、焼却飛灰の吸湿によるコンクリートの収縮挙動を把握しようと試みた。デジタル画像相関法には、CCDカメラを使用した。試験

体の観測面には、前処理として白色の遮水塗料の上に黒色のスプレーを吹き付け、まだら模様を作製した。スプレーの乾燥後、飛灰試料の添加前に基調を撮影、その後試料を添加し乾燥を開始した。図 1.4-32 に撮影に使用した治具を示す。Y 方向ひずみ分布は、像相関法で得られた 2 次元のひずみ分布測定点から、等間隔で 110 点数値を抽出し、縦軸を飛灰の添加される上乾燥面からの距離、横軸を Y 方向ひずみとして各パラメータの経時変化を比較したグラフとして示した。

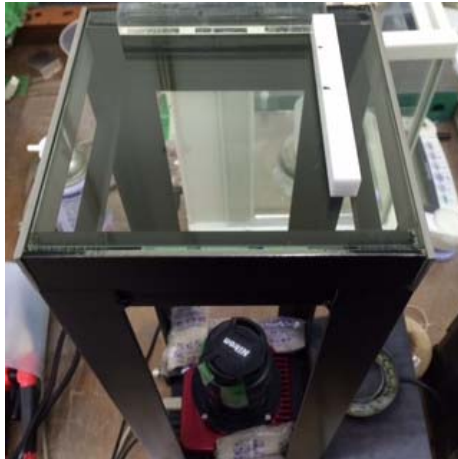
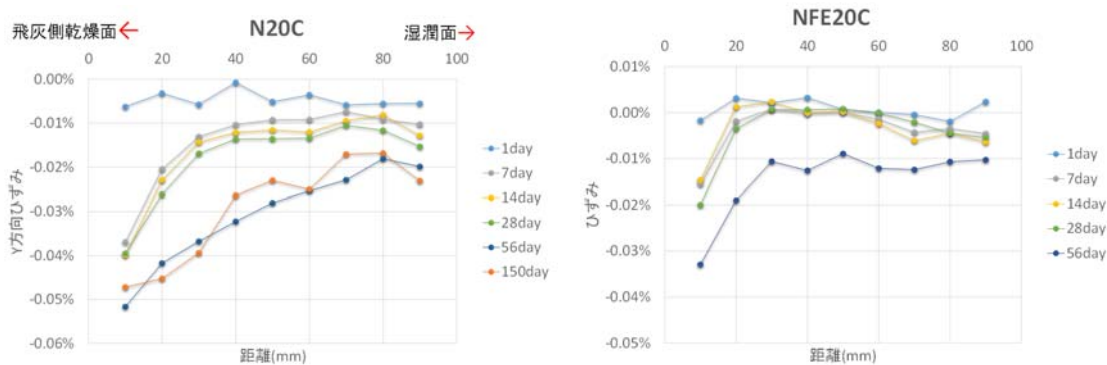


図 1.4-32 湿潤状態での画像相関法に使用した治具

iii) 結果および考察

Y 方向ひずみを図 1.4-33 に示す。材齢 56 日を測定後に画像相関法での下地材が膨れ測定に異常があったため、材齢 150 日での測定は普通(N)のみとなっている。

- ・ 何れの試験体、水準でも飛灰側は収縮していたのに対し、湿潤面は付近では曲線が水平となった。これは、飛灰が吸水によって水分が奪われ、一方で湿潤面から水分が供給されたことで、湿潤面から乾燥面に向かって水分移動が生じたと考えられる。
- ・ 乾燥面では材齢の進行とともに収縮が生じていた。しかしながら、試験体の全体の質量は増加（コンクリート+CaCl₂）しており、これは飛灰が吸水した影響でありコンクリート自体は乾燥し、乾燥面付近では乾燥収縮が生じたと考えられる。
- ・ N（普通コンクリート）に対して NFE(対策コンクリート)のひずみ分布は、乾燥面付近でより急な曲線（線が立っている）を描き、対策コンクリートでは水分移動が抑制されたため湿潤面からの水分が供給されず、乾燥面付近での乾燥収縮が進んだと考えられる。



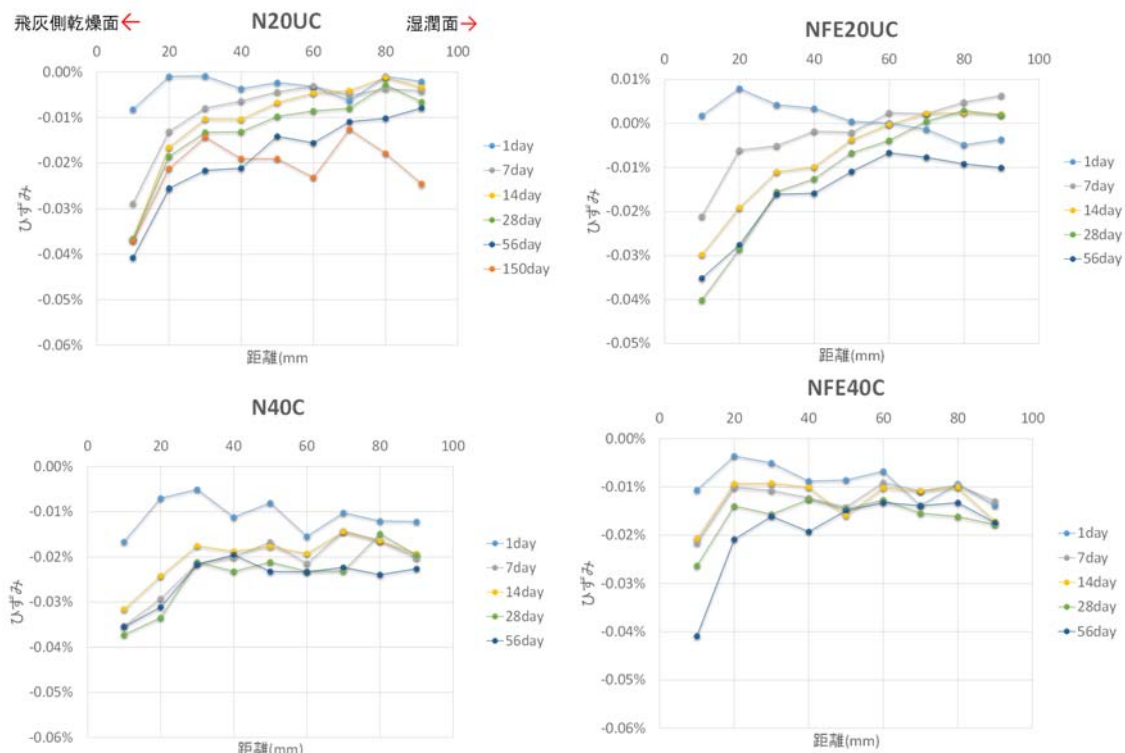


図 1.4-33 ひずみ分布の経時変化

参考文献

- 1) Ippei Maruyama, Hiroshi Sasano : Strain and crack distribution in concrete during drying, Materials and Structures, 47, pp.517-532, 2014
- 2) Chu, T. C., Ranson, W. F., Sutton, M. A. and Peters, W. H. : Application of digital-image-correction techniques to experimental mechanics, Experimental Mechanics, Vol.25, No.3, pp.232-244, 1985

(3) 高濃度塩水によるコンクリートの化学的劣化に関する評価

1) 飛灰抽出液浸漬試料の評価

i) 試験体概要および試験方法

使用材料およびコンクリート調合は表 1.4-5 および表 1.4-6 と同じである。材齢 28 日まで 40℃ 封緘養生を行った。養生終了後、コンクリートカッターで、10cm×10cm×5cm のサイズに切り出した。切り出した試験体の浸透面(型枠面)を除く 5 面を 2 液硬化型のエポキシ樹脂で被覆した。エポキシ樹脂が十分に硬化した後、浸漬試験に供した。浸漬試験の開始は、試験体打設から 36 日目であった。

浸漬試験では、模擬飛灰抽出液を入れたコンテナ容器に試験体の浸透面が下側になるように試験体をコンテナ容器内に設置した。コンテナ容器には蓋をして、環境温度が 5℃、20℃の恒温室内に静置した。浸漬試験は、温度別に普通コンクリート、対策コンクリート各 2 個ずつ実施した。試験体浸漬時の様子を図 1.4-34 に示す。模擬飛灰抽出液は、表 1.4-8 に示す割合で各試薬を溶解、調整したものを用いた。そして、試験開始後、所定の期間経過毎に各試験体の外観観察、質量測定および寸法測定を行った。



図 1.4-34 浸漬時の状況

表 1.4-8 模擬飛灰抽出液調整時の試薬量

試薬	g/L
NaCl	149.12
KCl	98.48
CaCl ₂	151.81
Ca(OH) ₂	5.00

ii) 浸漬試験結果

a) 外観目視観察

浸漬 4 週目までは、各試験体で特に変化は認められなかった。13 週目になると、環境温度 5℃ の普通コンクリート (No.2) で、浸透面の端にわずかなひび割れが認められた (図 1.4-35)。このひび割れは、20 週目でひび割れの幅が広がっており、クラックスケールで確認したところ約 0.25mm であった。その後もひび割れの幅は広がり、37 週目になるとひび割れ幅は約 0.5mm になっていた。もうひとつの環境温度 5℃ の普通コンクリート (No.1) では、13 週目でひび割れは認められなかったが、20 週目になると浸透面の端にわずかなひび割れが認められた。このひび割れ幅は、37 週目で約 0.3mm となっていた (図 1.4-36) 一方、環境温度 5℃ での対策コンクリート、環境温度 20℃ での対策コンクリートおよび普通コンクリートでは、浸透面にひび割れなどの変状は認められなかった。



図 1.4-35 普通コンクリート (5℃) のひび割れの発生状況 (左 : 13 週、中央、右 : 20 週)

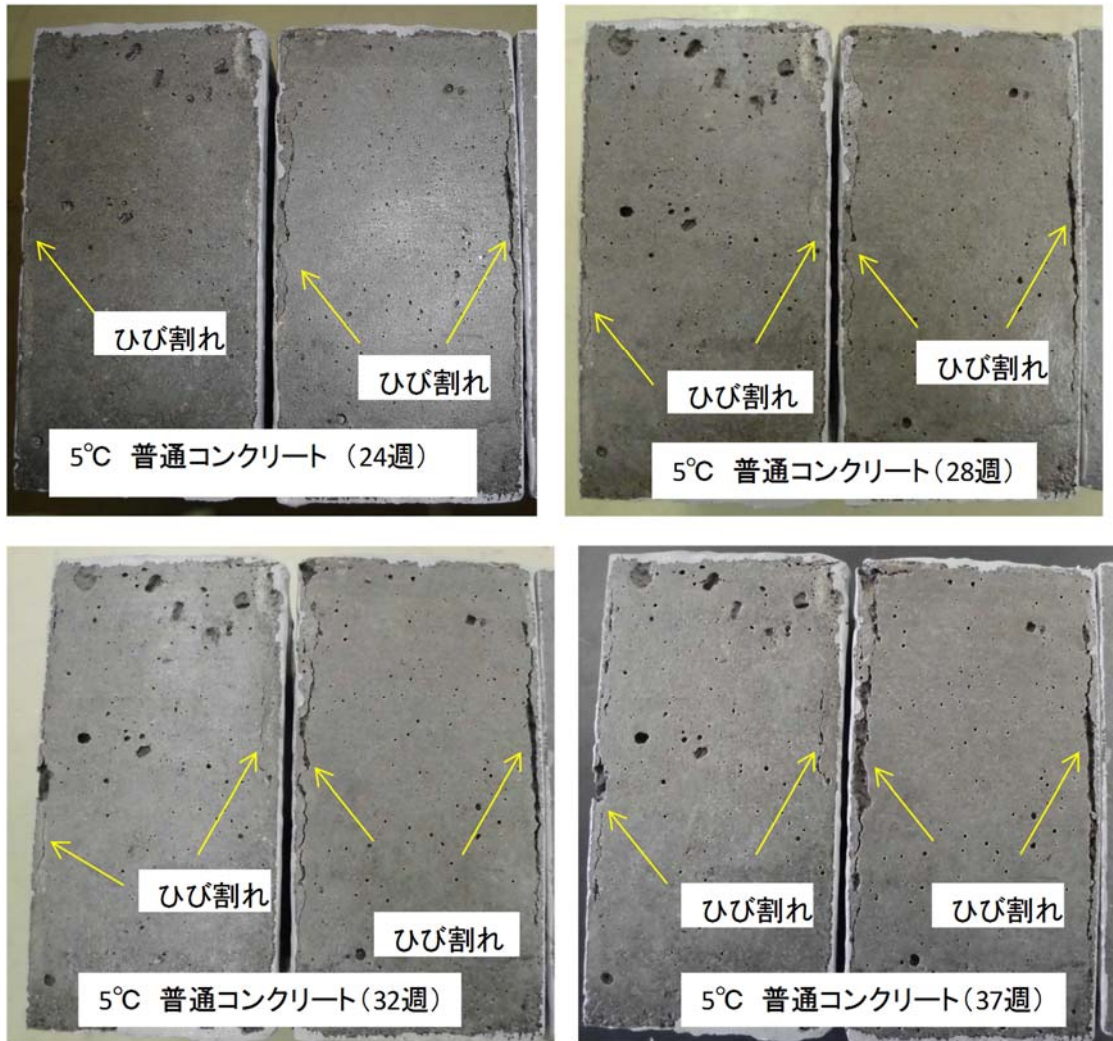


図 1.4-36 普通コンクリート (5°C) のひび割れの発生状況 (24~37 週)

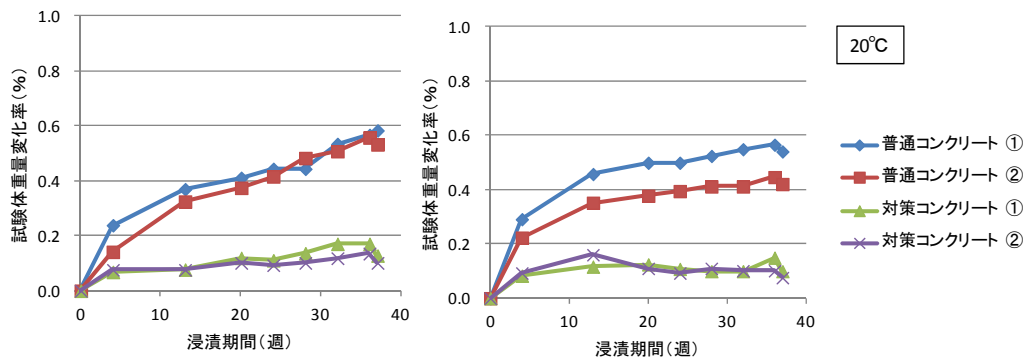


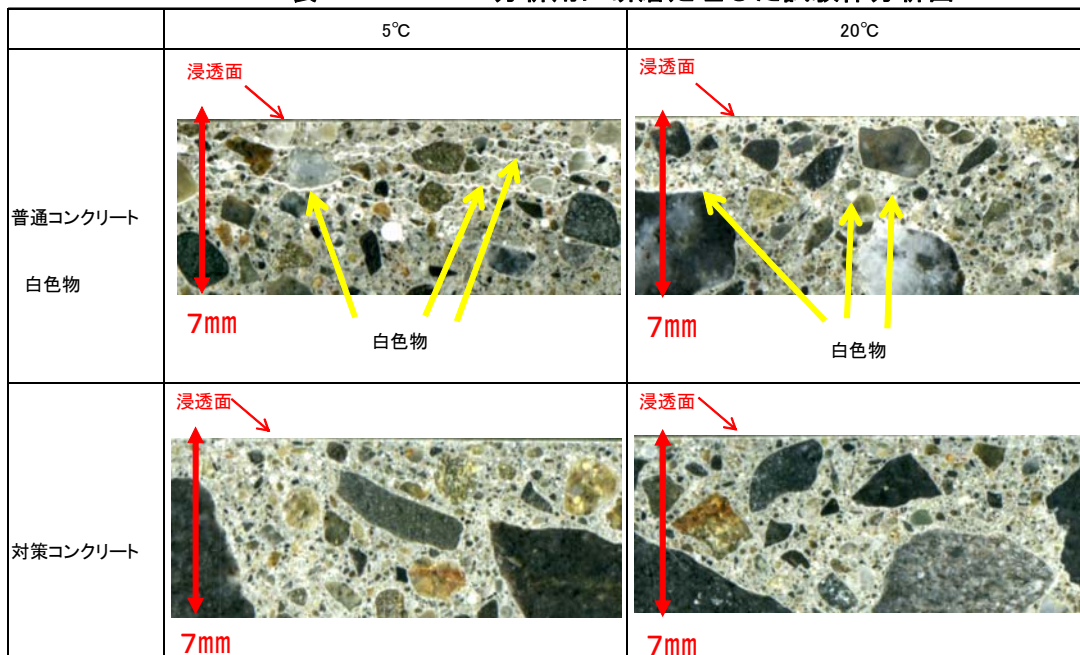
図 1.4-37 試験体の質量変化率 (左 5°C、右 20°C)

b) 質量変化

質量変化を図 1.4-37 に示す。環境温度 5°C での対策コンクリートの質量は、浸漬期間の経過に伴い増加し、浸漬 37 週目で約 0.1% 増加していた。これに対して、普通コンクリートの質量は、浸漬 37 週目で約 0.6% 増加しており、対策コンクリートの約 6 倍であった。環境温度 20°C での対策コンクリートは、質量は浸漬 37 週目で約 0.1% 増加していた。これに対して、普通コンクリー

トの質量は、浸漬 37 週目で約 0.5%増加しており、対策コンクリートの約 5 倍であった。

表 1.4-9 EPMA 分析用に研磨処理した試験体分析面



c) 寸法変化

試験体の寸法変化率は、大半の試験体で±0.6%の範囲内であり、試験体が膨張側あるいは収縮側に変形しているか分からなかった。外観目視観察で、浸漬環境温度 5°Cの普通コンクリートの浸透面にひび割れを確認したが、浸透面の縦、横方向の寸法を測定していなかったため、ひび割れ発生による寸法変化を捉えることができなかったと考えられる。

d) 試験体の断面観察

EPMA 分析を行うために切断面を鏡面研磨した後の研磨面のスキャナ画像を表 1.4-9 に示す。環境温度 5°Cの普通コンクリートの浸透面から内部に向かって数 mm の範囲に、浸透面と平行となる方向に層状に白色物が存在していた。類似の白色物は、環境温度 20°Cの普通コンクリートの表層付近にも点在していた。一方、他の試験体では、表層付近に類似のひび割れを確認することはできなかった。

e) 粉末 X 線回折結果

環境温度 5°Cの普通コンクリートの表層付近に確認された白色物を調べる目的で試験体の表層部から試料を採取し粉末 X 線回折分析を行った。表層部の試料からは、石英、長石類、炭酸カルシウムおよび高濃度塩化カルシウム溶液でコンクリートに劣化を生じる原因物質と考えられる $3\text{CaO}\cdot\text{CaCl}_2\cdot 15\text{H}_2\text{O}$ (以下、3-1-15 と記載) が認められた。

f) EPMA 分析

浸漬試験終了後の各試験体について電子線マイクロアナライザーにより、コア断面の元素組成分析を行った (図 1.4-38)。Cl 浸透深さを図 1.4-39 に示す。Cl 浸透深さは、対策コンクリートの最大でも 1cm よりも普通コンクリートは数 cm と大きく、5°Cよりも 20°Cの方で大きくなっていた。環境温度 5°Cの普通コンクリートで浸透した Cl 濃度が最も大きいのは、浸透面でなく浸透

面から深さ 3mm 付近であった。一方、他の試験体では、浸透面で Cl 濃度が最も大きくなっていた。表層部分の EPMA 測定結果から、表層の 3mm 程度のひび割れ部分や気泡部分に Cl/Ca 比 0.4 以上の高い部分が観察されている。3-1-15 の組成では Cl/Ca モル比は 0.5 となることから、白く観察された部分は 3-1-15 であると判断した。

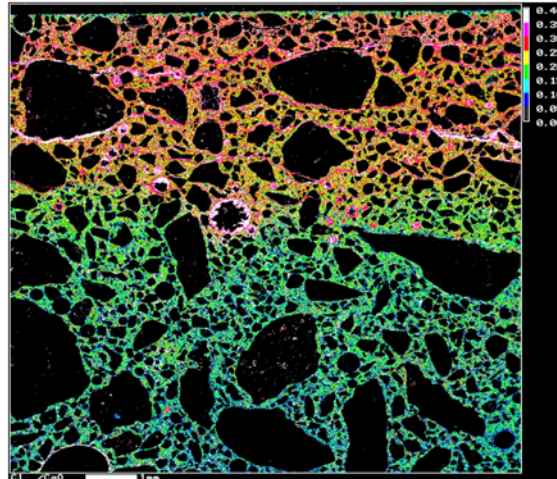


図 1.4-38 環境温度 5°C の封通コンクリート表層部分の Cl/Ca0 モル比の分布

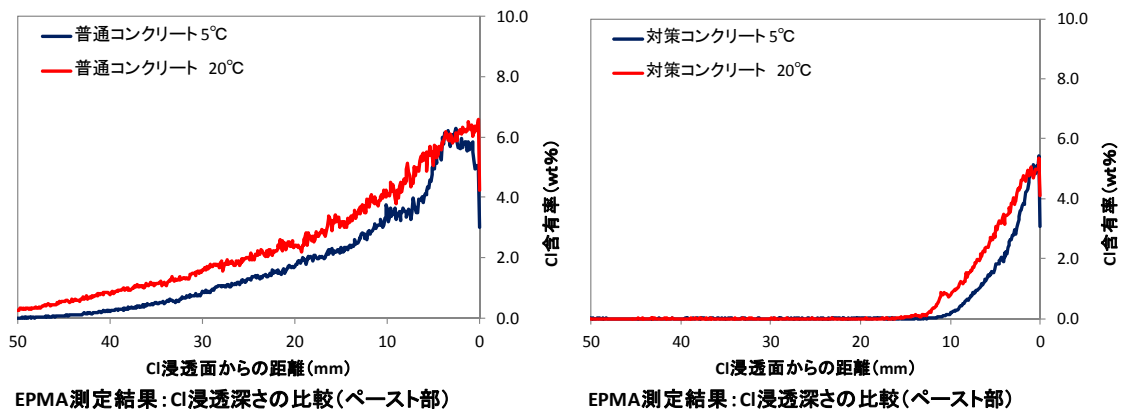


図 1.4-39 コンクリートへの Cl 浸透深さの比較

環境温度 20°C の普通コンクリートの表層付近にも白色物の点在を確認したが、この白色物も 3-1-15 である可能性が高く、浸漬期間が更に長くなれば、Cl の浸透が進み、3-1-15 の生成量も増し、浸透面に平行な方向にひび割れを生じる可能性があると考えられる。

これに対し、対策コンクリートではセメントの 30% をフライアッシュに置換しており、3-1-15 生成に必要な $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が少なく、3-1-15 生成が進みにくかったと考えられる。

1.4.4 焼却飛灰のセメント固型化

(1) 焼却飛灰のセメント固型化体の膨張挙動

i) はじめに

飛灰のセメント固型化体からの溶出性と安定性およびセメント固型化体を定置、盛り土した後

に地下水の浸潤により隆起が生じないかを確認するために、セメント固型化体（以後、灰固化体と記載）を水に浸漬し、溶脱と膨張挙動の相関を評価した。本試験では、処分場環境を模擬するために拘束試験体も作製し、同様に浸漬試験を実施した。

ii) 実験条件

a) 使用材料

本試験に用いた材料を表 1.4-10 に示す。本試験には、とある焼却施設より採取した飛灰を使用し、飛灰中の Cl が 20%、SO₃ が 5% となるように灰 100g に対して CaCl₂ を 3g、CaSO₄ を 2.5g 添加して調整した。調整前の飛灰の化学組成を蛍光 X 線で分析した結果および調整後の化学組成を計算した結果を表 1.4-11 にまとめて示す。

表 1.4-10 使用材料

使用材料	記号	種類・名称	製造会社・産地・備考等	密度 (g/cm ³)
水	W	水道水	-	-
セメント	OPC	普通ポルトランドセメント	太平洋セメント株式会社熊谷工場品	3.16
	BFSC	高炉セメント B 種	太平洋セメント株式会社熊谷工場品	3.04
フライアッシュ	FA	フライアッシュ II 種	東北電力 能代産	2.31
飛灰		飛灰	NIES 採取	-

表 1.4-11 調整前後の飛灰の化学組成

成分	飛灰分析値 (wt%)	調整後の組成 (wt%)
ig.loss*	6.55	6.22
SiO ₂	8.47	8.04
Al ₂ O ₃	5.54	5.26
Fe ₂ O ₃	0.59	0.56
CaO	38.47	38.96
MgO	1.77	1.68
SO ₃	3.87	5.07
Na ₂ O	6.44	6.12
K ₂ O	5.74	5.45
TiO ₂	1.19	1.13
P ₂ O ₅	1.31	1.24
Cl	19.42	20.26

表 1.4-12 配合

		OPC		FAC	BFSC
W/C	%	100	200	100	100
セメント	g	100	52	100	100
水	g	100	104	100	100
飛灰(NIES提供品)	g	100	130	100	100
ペースト量に対する重量比率	%	50	83	50	50
CaCl ₂	g	18.5	24.05	18.5	18.5
CaSO ₄	g	4.0	5.2	4.0	4.0

b) 試験体の配合

試し練りおよび圧縮強度の結果を踏まえつつ、W/C を大きくしないとペーストに入れる飛灰量を多く確保できないこと、W/C を大きくしすぎると試験体の強度が大きく低下し、試験体の膨張挙動を確認できなくなる恐れがあることなどを考慮し、本試験での配合を表 1.4-12 の通り決定した。なお、試験体の養生期間については、浸漬試験開始までに試験体の強度を少しでも大きく発現させたいため、40℃14 日間とした。

c) 拘束型枠

本試験で用いた拘束型枠を図 1.4-40 に示す。パンチングメタルを使い、試験体からの溶出を可能とし、かつ一定の応力が付加されるように配慮した。型枠のひずみ計測が可能なように、ひずみゲージを型枠に貼り付け防水処理した。



図 1.4-40 本試験で使用した拘束型枠の加工の様子

d) 試験体作製

ソイルミキサーを用いて材料を混練し、無拘束試験体作製の型枠および拘束試験体作製の型枠に混練物を充填した。型枠への混練物の充填は、はじめに OPC の W/C=100 の試験体 1 本目の作製時に 2 層詰めで充填したが、2 層目の充填を行う際、混練物がこぼり流動性が著しく低下していた。このことを踏まえ、これ以降の型枠への混練物の充填は、混練物を 1 層詰めで充填することにした。

無拘束試験体作製の型枠には、 $\phi 100 \times 200\text{mm}$ のサミットモールド缶を用い、型枠に混練物を充填後、 40°C で 14 日間封緘養生した。養生終了後、脱型し、試験体質量を測定し、試験体の縦方向（高さ）2 箇所および横方向（直径）2 箇所の長さをノギスで測定した。

拘束試験体については、無拘束試験体と同様に型枠への混練物の充填は 1 層詰めで行い、 40°C で 13 日間封緘養生後、型枠上部にスポット溶接で上蓋を固定した。上蓋固定後、試験体の質量を測定し、型枠に貼ったひずみゲージのひずみ量の初期値をデータログで測定した。

e) 浸漬試験

浸漬試験は、容積 20L のトスロン容器（PE 製）に試験体と試験体容積の 10 倍量のイオン交換水を入れ、容器に蓋をした状態で $20 \pm 2^\circ\text{C}$ に設定した試験室内に静置させて行った。なお、浸漬試験は、試験体養生 14 日目から開始した。浸漬試験開始後、1 週間毎に、容器内から試験体を取り出し、試験体の外観観察、質量測定、寸法測定、浸漬液の採取・分析を合計 10 回、浸漬溶液の交換を 9 回行った。なお、9~10 回目の浸漬期間は 2 週間とした。

拘束型枠上部への上蓋のスポット溶接後の様子、無拘束試験体および拘束試験体の浸漬試験の様子を図 1.4-41 に示す。

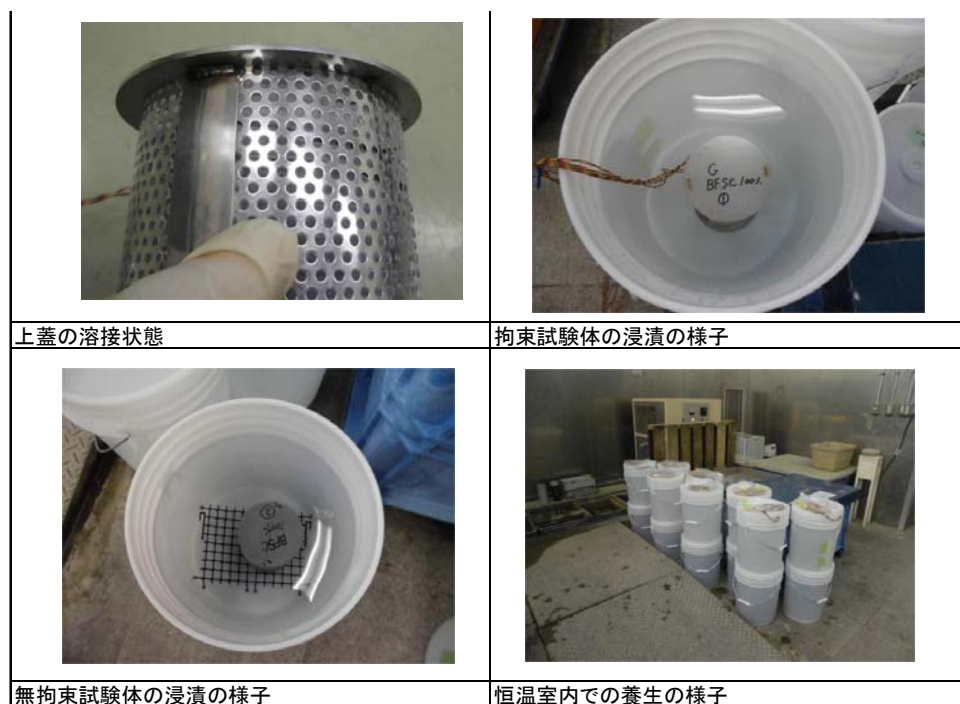


図 1.4-41 溶接した上蓋と浸漬試験開始時の様子

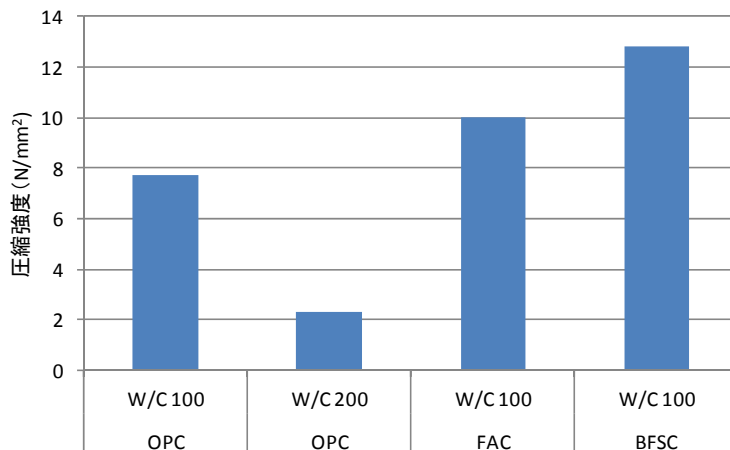


図 1.4-42 圧縮強度測定結果

iii) 結果

a) 圧縮強度

拘束試験体および無拘束試験体作製時に混練した混練物の圧縮強度の測定結果を図 1.4-42 に示す。W/C=100%のOPC、FAC、BFSCの圧縮強度は、それぞれ、7.7N/mm²、10N/mm²、12.8N/mm²であり、コンクリート製品の脱型基準の目安となる強度 5 N/mm² よりも大きい強度が得られていた。なお、OPC W/C=200%の圧縮強度は、2.3N/mm²と小さかったが、養生日数 7 日間の時の圧縮強度と比べ 2 倍以上の強度が得られていた。

表 1.4-13 ひび割れ発生状況

回数	OPC W/C=100		OPC W/C=200		FAC W/C=100		BFSC W/C=100	
	①	②	①	②	①	②	①	②
1	○	×	○	○	○	○	○	○
2	○	×	×	×	○	○	×	×
3	○	×	×	×	○	○	×	×
4	○	×	×	×	○	○	×	×
5	○	×	×	×	○	○	×	×
6	×	×	×	×	×	×	×	×
7	×	×	×	×	×	×	×	×
8	×	×	×	×	×	×	×	×
9	×	×	×	×	×	×	×	×
10	×	×	×	×	×	×	×	×

b) 無拘束試験体の浸漬試験

b-1) ひび割れ

各試験体でひび割れを確認した浸漬回数を表 1.4-13 に示す。表中には、ひび割れを確認できなかった時を「○」、ひび割れを確認できた時を「×」で記載した。

OPC W/C=100% (以下、OPC100 と記載)

OPC100 では、1 本で試験 6 回目からひび割れを確認した。最初に確認したひび割れの幅は 0.06mm 程度であったが、試験 9 回目では約 0.1mm になっていた。そして、試験 10 回目では、

亀甲状のひび割れになっていた。もう 1 本では、試験 1 回目からひび割れを確認し、ひび割れの幅は最大 3mm 程度であった。この試験体は、混練物を型枠に 2 層詰めで作製したものであり、2 層目の充填の際、混練物がこぼり材料を良好に充填できなかったことが、試験 1 回目からひび割れが発生した要因の一つとして考えられる。

OPC W/C=200% (以下、OPC200 と記載)

OPC200 では、試験 2 回目からひび割れを確認した。最初に確認したひび割れは、試験体上部で横方向に発生していた。試験 3 回目になると、ひび割れは、試験体の縦方向（高さ方向）に進展していた。そして、試験 6 回目になると、試験体の上部が手で簡単に取れてしまうような状態になっていた。この時のひび割れの幅は、狭いところで 0.1mm、広いところで 1.5mm 程度であった。

FAC W/C=100% (以下、FAC100 と記載)

FAC100 では、試験 6 回目からひび割れを確認した。この時のひび割れの幅は、0.08mm 程度であった。試験 7 回目になると、ひび割れは、試験体の縦方向（高さ方向）に進展していた。そして、試験 10 回目では、ひび割れの幅は、最大 0.15mm 程度であった。

BFSC W/C=100% (以下、BFSC100 と記載)

BFSC100 では、OPC の W/C=200 と同じく、試験 2 回目からひび割れを確認した。この時のひび割れは、試験体上部で横方向に発生していた。試験 3 回目になると、ひび割れは、亀甲状になっており、ひび割れの幅は 0.2mm 程度であった。そして、試験 10 回目では、ひび割れの幅は、最大 0.6mm 程度に広がっていた。

OPC100②の試験体を除くと、ひび割れの発生が最も早かったのは、OPC200 と BFSC100 であった。OP200 でひび割れの発生が早かったのは、4 水準の中で最も強度が小さかったことが大きく影響していると思われる。BFSC100 については、セメント中の約 42%を高炉スラグが占めており、水セメント比が小さいことが影響していると思われる。

b-2) 長さ変化

各試験体の長さ変化率の結果を図 1.4-43 に示す。

OPC100

OPC100①では、縦方向と直径方向で長さ変化率は、浸漬 6 回目から増加傾向を示し、試験体にわずかなひび割れを確認できた時と一致していた。

OPC100②では、浸漬 1 回目の長さ変化率が、縦方向で 1.0%、直径方向で 0.5%と大きくなっている。これは、外観観察の結果のところでも記載した通り、試験体製作時の型枠への混練物の充填を良好に行えなかったことが大きく影響し、浸漬 1 回目で大きなひび割れが発生し、結果として長さ変化率が大きくなったと考えられる。

OPC200

OPC200 の試験体の縦方向の長さ変化率については、試験体の上部の一部が手で簡単に取れる状態になっていた浸漬 6 回目以降では測定を行わなかった。直径方向については、浸漬 10 回目までの測定データを示した。縦方向の長さ変化率は、浸漬回数の増加に伴い増加傾向を示し、浸漬 5 回目の長さ変化率は約 1.5%となった。直径方向の長さ変化率も縦方向と同様に浸漬回数の増加に伴い増加傾向を示したが、浸漬 7 回目以降では、大きな変化はなかった。直径方向の長さ変化率が、浸漬 7 回目以降で大きな変化を示さなかったのは、浸漬 6 回目で試験体上部の一部が

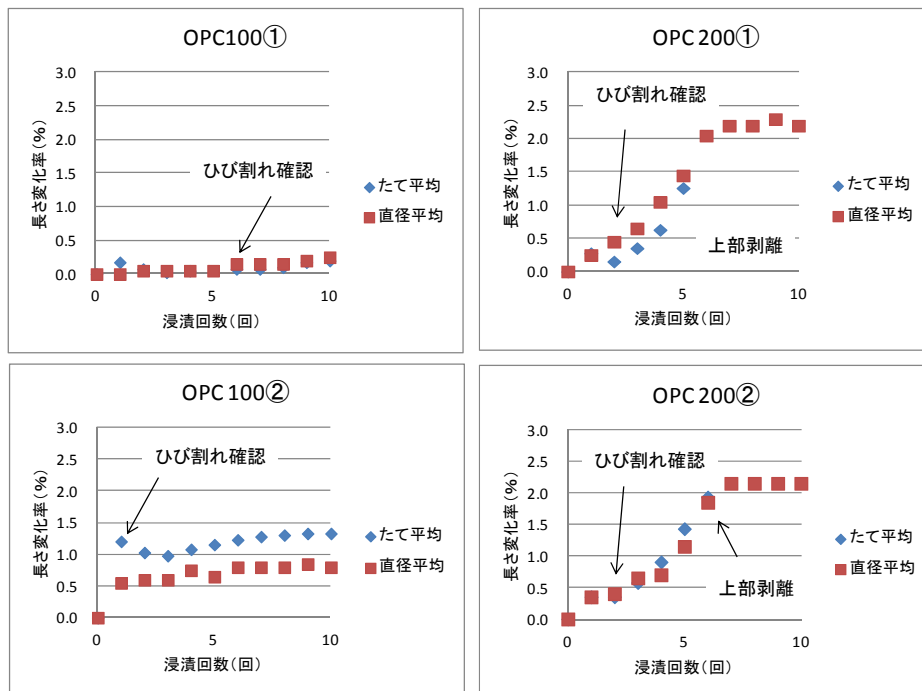
手で簡単に取れる状態になったところで、膨張力が低下したことが影響していると考えられる。

FAC100

FAC100 の長さ変化率は、浸漬 5 回目まで大きな変化はなかった。ひび割れを確認した浸漬 6 回目以降になると、長さ変化率は、僅かに増加の傾向を示したが、長さ変化率は 0.1%以下であり、他の水準と比べて最も小さかった。

BFSC100

BFSC100 の縦方向と直径方向の長さ変化率は、浸漬回数が増加に伴い増加する傾向を示した。BFSC100①での長さ変化率は、縦方向で最大 2.7%程度、直径方向で最大 2.2%程度になり、OPC 200 の最大長さ変化率に近い値であった。一方、BFSC100②での長さ変化率は、縦方向で最大 1.3%程度、直径方向で最大 1.1%程度になり、BFSC100①の半分程度の値であった。



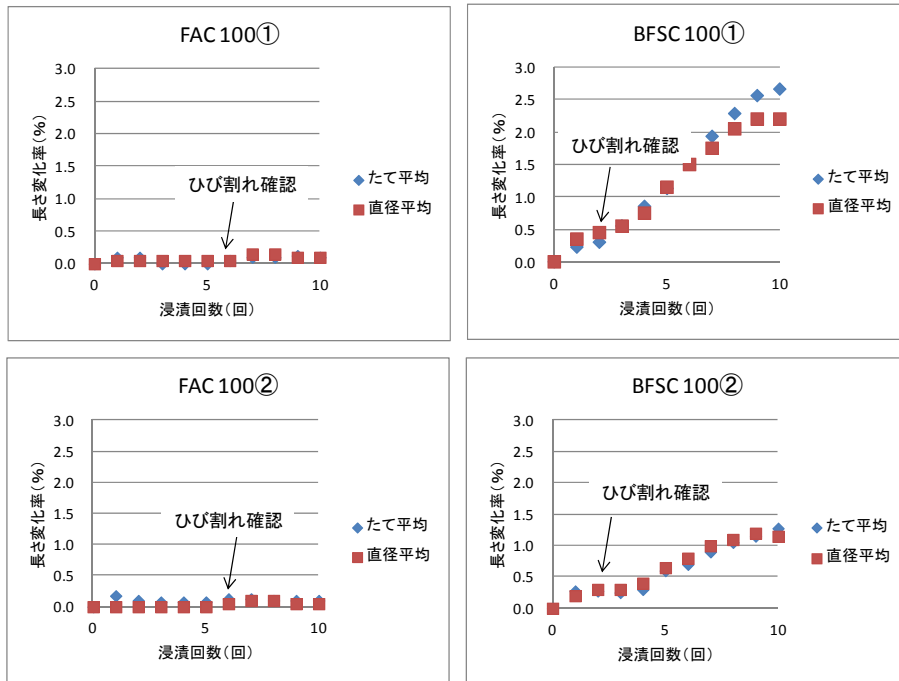
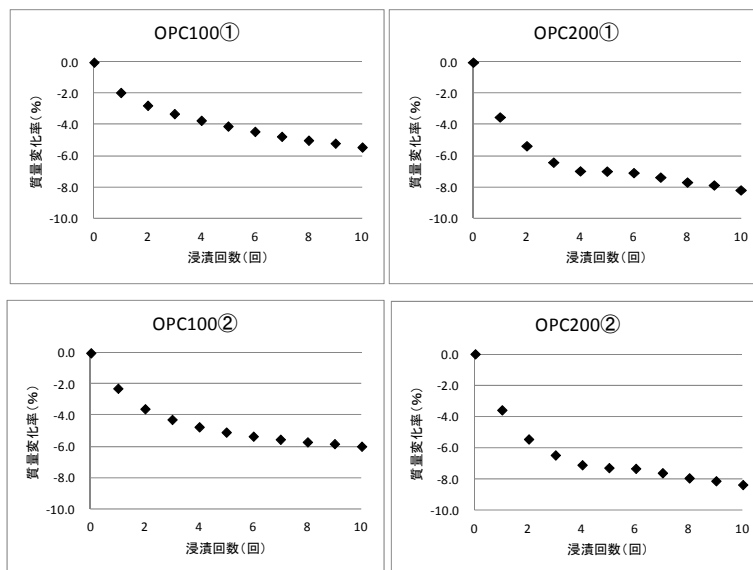


図 1.4-43 無拘束試験体の長さ変化率

b-3) 質量変化

各試験体の質量変化を図 1.4-44 に示す。各試験体の質量は、全ての水準で浸漬回数の増加に伴い減少する傾向を示していた。質量の減少が最も大きかったのは、OPC200 であり約 8%減少していた。次に、OPC 100 と FAC 100 であり、質量は浸漬 10 回目で約 6%減少していた。最も質量減少が小さかったのは、BFSC100 で浸漬 10 回目の質量減少率は約 4%であった。事前に確認した試験体強度の結果を踏まえると、強度の大きい水準で質量減少率は小さく、強度の小さい水準で質量減少率が大きくなっていった。これは、強度の小さい試験体に比べて、強度の大きい試験体の組織は緻密であり、試験体からの各種成分の溶脱が起こりにくかったためと考えられる。



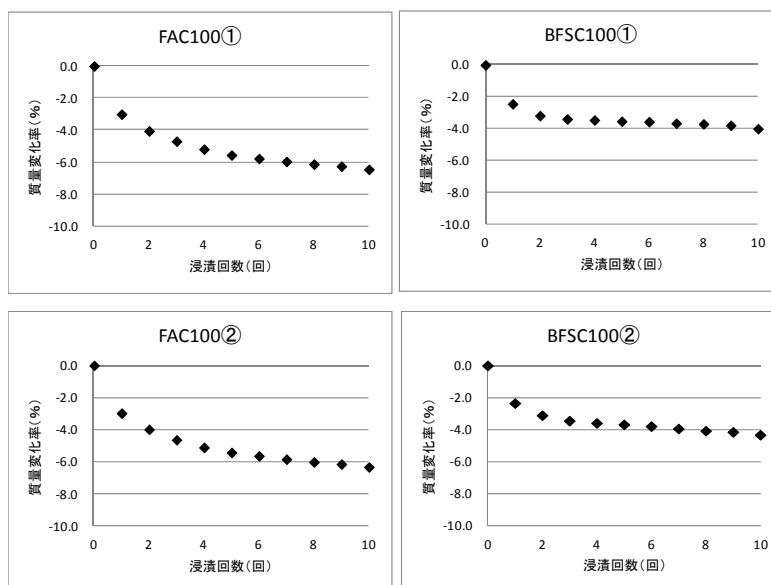


図 1.4-44 無拘束試験体の質量変化率

b-4) 浸漬液の組成

浸漬液の分析結果と1回の浸漬試験で使用したイオン交換水量 15.7L から各成分の溶出量を計算し、溶出量（積算量）を求めた結果を図 1.4-45 に示す。

Ca、Cl の溶出量は、OPC200 で最も大きく、次いで BFSC100 で大きくなっていた。OPC100 と FAC100 では溶出量に大差なかった。Na、K の溶出量は、OPC200 で最も大きく、次いで、BFSC100 で OPC100 と FAC100 よりも僅かに大きかった。SO₄ の溶出量は、OPC200 で最も大きく、次いで OPC100 で大きくなっていた。FAC100 と BFSC100 では大差なかった。なお、OPC200 と BFSC100 の浸漬液中の Ca 濃度は、浸漬 4 回目以降でやや増加していたが、試験体に発生したひび割れが発生したことで試験体内部からの Ca の溶出が影響していると考えられる。

電気伝導率は、浸漬回数の増加に伴い減少しており、試験体からの溶脱量が試験回数の増加に伴い減少していることを示唆するものであった。pH については、全ての水準で 11.5～12.0 の範囲で推移しており、特に大きな変化はなかった。なお、OPC100 と FAC100 の Ca、Cl、Na の浸漬液の濃度および電気伝導率が、試験 9 回目よりも 10 回目でやや増加していたのは、浸漬 9 回目までは浸漬期間が 1 週間であるのに対し、9 回目から 10 回目までの浸漬期間は 2 週間と長くしたことが影響していると考えられる。

なお、浸漬試験前に試験体に含まれていたと推定される Cl 量を試験体作製配合から求めた結果と上記で求めた溶出量から溶出率を求めた結果を表 1.4-14 に示す。溶出率の最も大きいのは OPC200 の 76.8%、次いで、BFSC100 の 75.9%、OPC100 と FAC100 は、それぞれ 63.3% と 66.7% とほぼ同等であった。

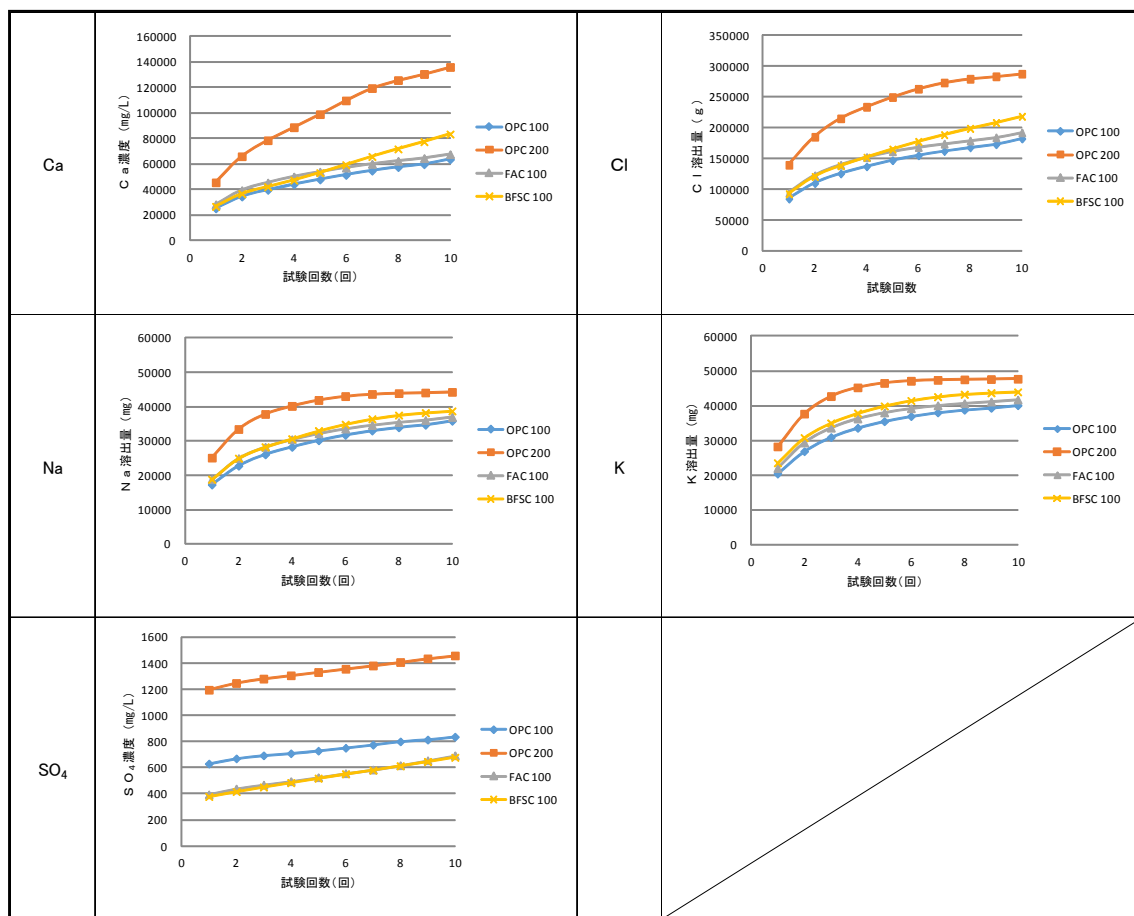


図 1.4-45 無拘束試験体の各成分の溶出量

表 1.4-14 無拘束試験体からの Cl 溶出率

	Cl量 (mg)		溶出率 %
	含有量	溶出量	
OPC 100	288,074	182,434	63.3
OPC 200	374,496	287,624	76.8
FAC 100	288,074	192,168	66.7
BFSC 100	288,074	218,544	75.9

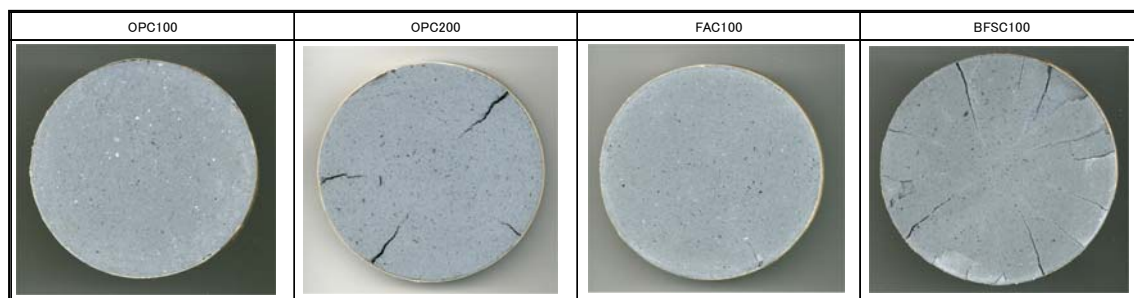


図 1.4-46 試験体中央部切断面

c) 浸漬試験前後の試料の評価

a. 試験体断面の状態確認

浸漬試験終了後、試験体の中心をコンクリートカッターで切断し、切断面の状態を確認した。切断面のスキャナ画像を図 1.4-46 に示す。各試験体のひび割れは、試験体の外側から中心に向かって進展していた。最もひび割れが多く確認されたのは BFSC100 であり、次いで OPC200 であった。OPC100 と FAC100 のひび割れは最も少なかった。

b. アルカリ溶脱の状況確認

浸漬試験により試験体表面からアルカリが溶脱している様子を確認する目的で切断面にフェノールフタレイン溶液を噴霧した。全ての水準で、切断面は薄赤紫色を呈しており、試験体外周部付近でのアルカリが溶脱している状況は確認できなかった。

c. 塩分含有状況の確認

試験体中に含まれる塩分が溶脱している様子を確認する目的で切断面に硝酸銀溶液を噴霧した。噴霧後の断面のスキャナ画像を図 1.4-41 に示す。全ての水準で、切断面は全体的に白色を呈したことから、塩分は一様に含まれていると考えられる。なお、断面に褐色の斑点が見られたが、これは、硝酸銀中に含まれる銀がアルカリと反応し酸化銀を生成したか、あるいは試験体に含まれる硫黄と反応し、硫化銀を生成したためではないかと考えられる。

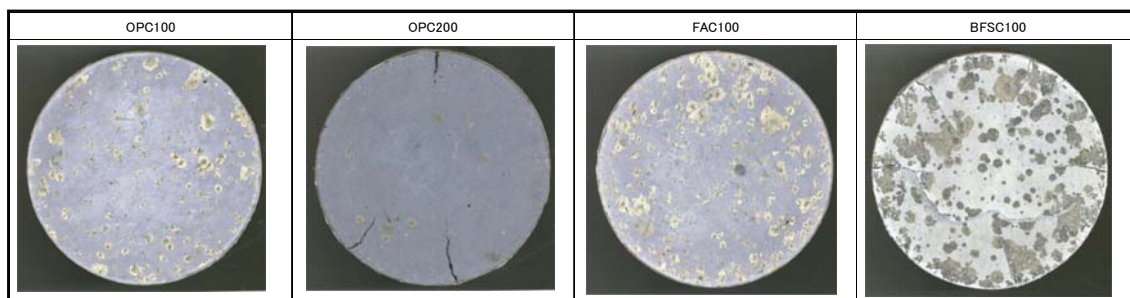


図 1.4-41 硝酸銀噴霧 1 時間後の断面

表 1.4-15 粉末 X 線回折結果

	OPC100	OPC200	FAC100	BFSC100
エーライト	◎	◎	○	○
ビーライト	◎	◎	○	○
カルシウムアルミネート	○	△	△	△
塩化ナトリウム	◎	◎	◎	◎
塩化カリウム	◎	◎	◎	◎
塩化水酸化カルシウム	△	○	△	△
2水せっこう	○	○	○	○
無水せっこう	○	○	○	○
炭酸カルシウム	○	○	○	○
石英	○	○	○	○
フリーデル氏塩	○	○	○	○
ムライト	×	×	△	×
マグネタイト	×	×	△	×

d. 浸漬前と浸漬後の生成物の確認

浸漬試験に用いた試験体と同じ材料、配合で混練し、40℃、14 日間封緘養生したものについて、

粉末 X 線回折装置を用いて生成物を調べた（表 1.4-15）。各試験体からは、未水和セメント（エーライト、ビーライト、カルシウムアルミネート、）2水せっこう、無水せっこう、炭酸カルシウム、モノカーボネート、ヒドロカルマイト、フリーデル氏塩、および飛灰起源の塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化水酸化カルシウムが同定された。

浸漬試験終了後、試験体の中心（直径 5mm 程度の部分）および外側（外から中心に向かって深さ 5mm 程度の部分）から試料を採取し、メノウ乳鉢で粉碎し、粉末 X 線回折装置を用い生成物を調べた。

粉末 X 線回折の結果を表 1.4-16 に示す。各試験体からは、エトリンガイト、ゲーレナイト、フリーデル氏塩、水酸化カルシウム、炭酸カルシウムなどが確認された。エトリンガイトのピークは、OPC200 の外側の試料で他の試料と比べてやや大きく出ていた。これは、浸漬液の分析結果のところで記載したが塩素の溶出率が最も大きかったのが OPC200 であり、多くの塩素が溶出したことにより、エトリンガイトの生成量も多くなったためと考えられる。また、各試験体の外側と中心部で比較すると、外側よりも中心部の試料で水酸化カルシウムとフリーデル氏塩のピーク強度が大きかった。外側の試料でフリーデル氏塩のピーク強度が小さく、エトリンガイトのピーク強度が高かったのは、外側の方は水に接している環境であり溶出が起りやすかったことが影響していると考えられる。

無拘束試験体でひび割れが発生した主な原因は、フリーデル氏塩の一部がエトリンガイトに変化したためと考えられる。また、ひび割れ発生時期が異なるのは、エトリンガイトの生成速度が異なるためと考えられる。

表 1.4-16 浸漬後の粉末 X 線回折結果

	OPC100		OPC200		FAC100		BFSC100	
	中心	外側	中心	外側	中心	外側	中心	外側
エトリンガイト	○	○	○	○	○	○	○	○
ゲーレナイト	△	○	○	○	○	○	△	○
フリーデル氏塩	○	△	○	△	○	△	○	△
石英	×	×	△	×	○	○	△	×
水酸化カルシウム	◎	○	◎	○	△	△	△	△
炭酸カルシウム	○	◎	○	◎	◎	◎	○	◎
2水せっこう	×	×	△	×	×	×	×	×

(2) 拘束試験体の浸漬試験結果

1) 外観観察

a. OPC100

OPC100 では、試験 1 回目から 2 本の試験体で試験体側面の一部で凹状の部分が筋状に形成されていることを確認した。この凹状の部分は、試験体上部のみにあり、試験体製作時にブリーディングなどによる試験体上部の脆弱層が浸漬試験中に崩れ落ちたことで形成されたものと思われる。また、内部試料がパンチングメタルを突きでている様子も確認できた。なお、試験体上下に固定した円板と側面のパンチングメタルとの境界部に大きな隙間は確認されなかった。

b. OPC200

OPC200 では、特に目立った変状を確認できなかった。試験体上下に固定した円板と側面のパ

ンチングメタルとの境界部にも大きな隙間は確認されなかった。

c. FAC100

FAC100でも、OPC200と同様に、特に目立った変状を確認できなかった。試験体上下に固定した円板と側面のパンチングメタルとの境界部にも大きな隙間は確認されなかった。

d. BFSC100

BFSC100の1本の試験体では、試験5回目で試験体下側の円板と側面のパンチングメタルとの境界部の内側に隙間ができているのを確認した。試験8回目では、試験体下側の円板と側面のパンチングメタルとの境界部に隙間ができているのを確認した。この隙間は、試験回数が増すに従い広がっていた。なお、試験8回目では、パンチングメタルを筒状に加工するのに貼り付けた細長い留め板も浮いていることを確認した。

2本目の試験体では、試験3回目で試験体側面のパンチングメタル下側の内側に空隙ができているのを確認した。この空隙は、試験回数が増すに従い大きくなっていった。また、試験6回目で試験体下側の円板と側面のパンチングメタルとの境界部に隙間が確認され、この隙間は試験回数が増すに従い広がっていた。

2) ひずみ測定結果

拘束型枠の縦方向（高さ方向）、円周方向（直径方向）に貼ったひずみゲージで測定した。浸漬1回目、2回目で測定した縦方向（高さ方向）のひずみ量は、大半のもので -10000μ 以上の圧縮方向のひずみを示し、一般的なひずみゲージの最大ひずみ測定範囲（2~4%）を大きく超えていた。これは、ひずみゲージの防水処理が不十分で浸漬中に浸漬水がひずみゲージまで浸透してしまったことが影響していると考えられる。試験終了後、1つの試験体について縦方向（高さ方向）に貼ったひずみゲージの状態を確認したところ、ひずみゲージが下地のSUS板から簡単に剥れてしまう状態にあることを確認した。一方、円周方向（直径方向）のひずみ量（図1.4-48）は、 -800μ （収縮側）~ 200μ （膨張側）の範囲で変化しており、ひずみゲージの最大ひずみ測定範囲（2~4%）内にあったことから、以下、各試験体の膨張特性については、円周方向（直径方向）のひずみ量に着目した。以下、各試験体の膨張特性について記載する。

OPC100①では、2つのひずみゲージで挙動が異なっていた。1つのひずみゲージでは、ひずみは収縮側に増加し最大 200μ 程度変化したのに対して、他方のひずみゲージでは、浸漬4回目まで収縮側に増加していたものが、浸漬5回目から膨張側に転じ、浸漬10回目でのひずみ量は 150μ 程度になっていた。ひずみが収縮側から膨張側に変化した理由としては、試験に用いた拘束型枠の組み立てをスポット溶接で行っており、浸漬試験中にスポット溶接箇所の一部が試験体の膨張圧により外れ、型枠が変形したことが影響している可能性が考えられる。OPC100②では、2つのひずみの挙動は概ね同じとみなせ、浸漬回数の増加に伴い、収縮側にひずみが増加し、試験10回目でのひずみ量は 100μ 程度になっていた。このことから、OPC100の円周方向（直径方向）のひずみは、収縮側で $100\sim 200\mu$ 程度と思われる。

OPC200①②では、浸漬6回目から収縮側にひずみが増加し、浸漬10回目でのひずみ量はOPC200①で 400μ 程度、OPC200②で 200μ 程度になっていた。

FAC100①②では、浸漬8回目から収縮側にひずみが増加し、浸漬10回目でのひずみ量は 70μ 程度になっていた。

BFSC100①②では、浸漬回数の増加に伴い収縮側にひずみが増加していたが、途中から膨張側

に転じていた。BFSC100①では、浸漬 6～7 回目まで収縮側にひずみが 300 μ 程度まで増加していたが、その後、膨張側に変化していた。BFSC100②では、1つのひずみゲージで、浸漬 5 回目まで収縮側にひずみが増加し 200 μ 程度になっていたものが、浸漬 6 回目から膨張側に変化していた。他方のひずみゲージでは、浸漬 8 回目まで収縮側にひずみが増加し 700 μ 程度になっていたものが、浸漬 9 回目から膨張側に変化していた。これは、試験に用いた拘束型枠の組み立てをスポット溶接で行っており、浸漬試験中にスポット溶接箇所の一部が試験体の膨張圧により外れ、型枠が変形したことが影響している可能性が考えられる。なお、BFSC100①では浸漬 8 回目で、BFSC100②では浸漬 6 回目で型枠下の円板がパンチングメタルに密着しておらず、浮いた状態になっていることを確認している。このことから、収縮側に増加していたひずみが膨張側に転じた理由としては、型枠内部の灰固化体が膨張し、その膨張圧により型枠が変形したことが主な原因であると考えられる。

また、OPC100①と BFSC100①②のひずみ量の変化から、今回作製した拘束型枠のスポット溶接は、数百 μ 程度までの変形には耐えられるが、それよりも大きな変形には、耐えられない可能性が考えられる。

円周方向（直径方向）のひずみ量の測定結果から、収縮側のひずみ量は、概ね、BFSC100 > OPC200 > OPC100 > FAC100 の順に大きくなっていった。

両端が閉じた薄肉円筒容器に内圧が作用した場合の円周方向応力 (σ_t) と半径方向の増加量 (ΔR) は、以下の式 (1) で表される。

$$\sigma_t = \frac{pR}{t} \quad , \quad \Delta R = \frac{pR^2}{tE} \cdot \frac{2-\nu}{2} \quad \text{式 (1)}$$

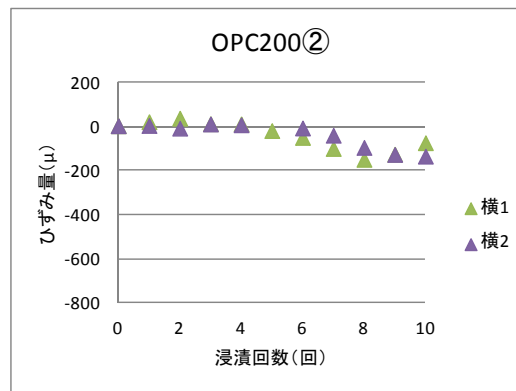
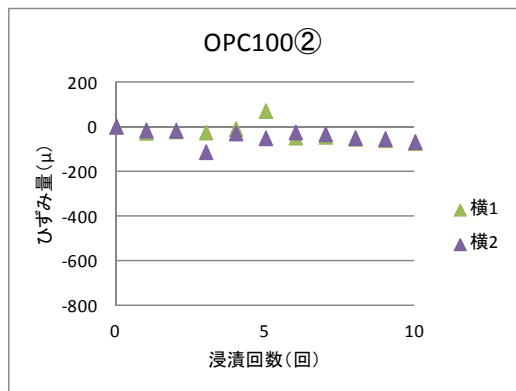
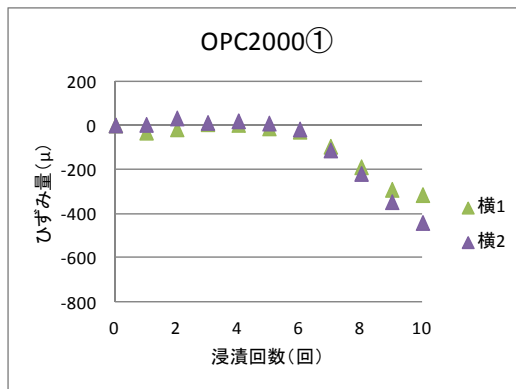
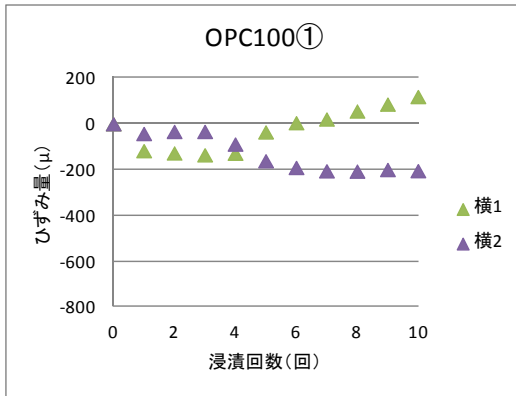
R:半径 (mm)、t:厚み (mm)、p:内圧 (N/mm²)、E:材料のヤング率、ν:ポアソン比

拘束試験体作製に用いた拘束型枠の材料が、厚み 0.4mm の SUS304 であることを踏まえ、内圧が 1～5N/mm² の時の円周方向の増加量を計算した結果を表 1.4-17 に示す。計算では、SUS304 のヤング率とポアソン比をそれぞれ 193,000N/mm²、0.3、半径を 50mm、厚みを 0.4mm として計算した。ただし、拘束型枠の製作に用いたのはパンチングメタルであり、開孔率 32.6% あるが考慮せずに計算した。表 1.4-17 に示すように、円周方向の増加量が数百 μ 程度になる時の内圧は、1～2 N/mm² であり、円周方向の増加量が 500～700 μ 程度になる内圧は 3～4 N/mm² になっている。

図 1.4-48 に示す拘束試験体の円周方向（直径方向の）のひずみ量から、OPC100 と FAC100 の拘束試験体では、1～2 N/mm² 程度、OPC200 と BFSC の拘束試験体では、3～4 N/mm² 程度の内圧がかかっていると推察される。

表 1.4-17 両端が閉じた薄肉円筒容器に内圧が作用したときの円周増加量

内圧 (N/mm ²)	半径増加量 (mm)	円周増加量 (mm)
1	0.028	0.173
2	0.055	0.346
3	0.083	0.519
4	0.110	0.691
5	0.138	0.864



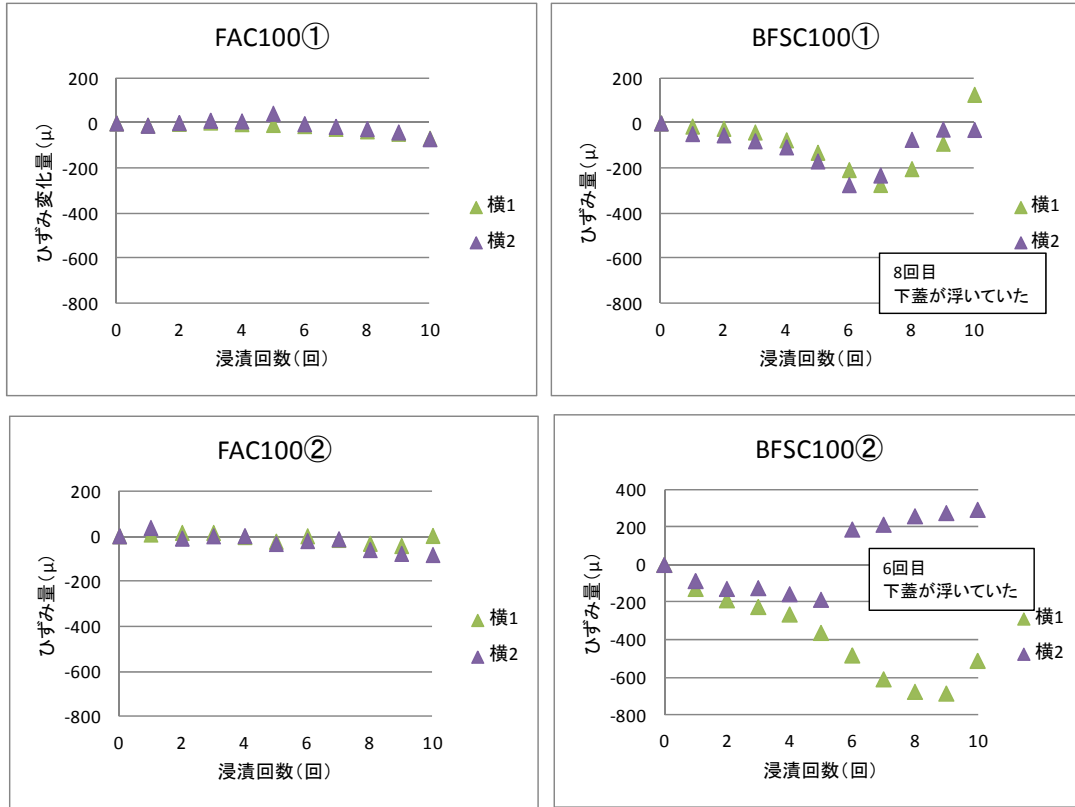
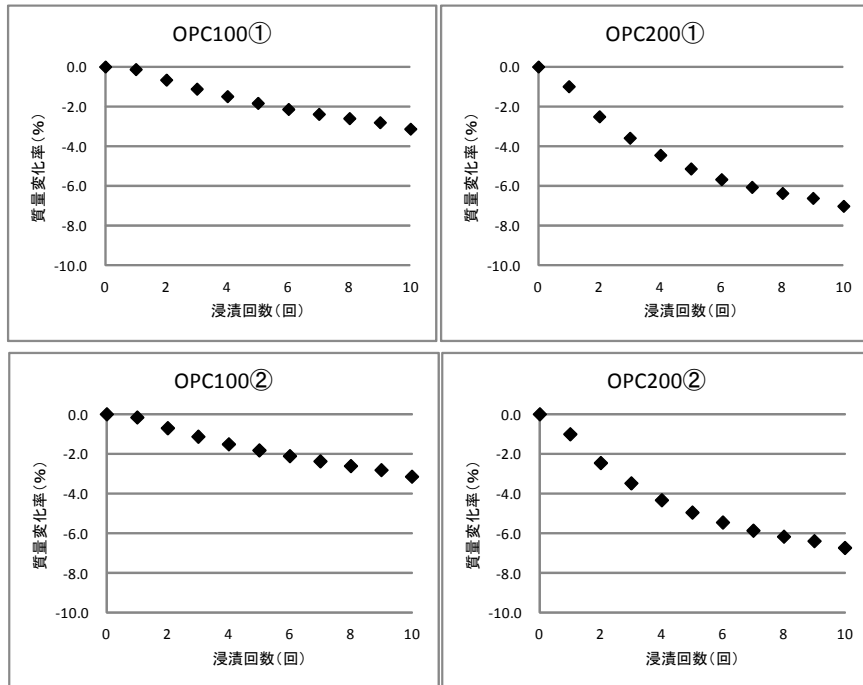


図 1.4-48 円周方向（直径方向）のひずみ



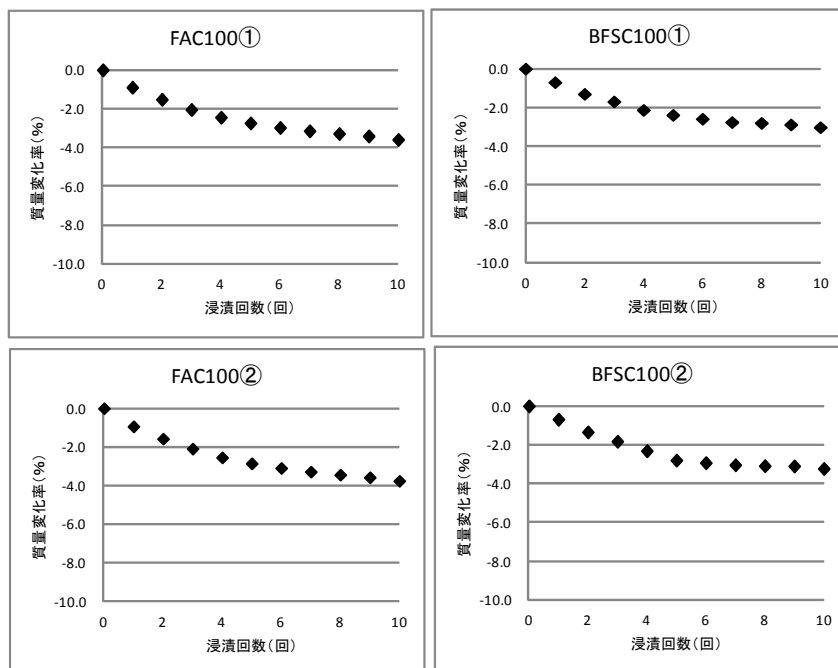


図 1.4-49 質量変化

3) 質量変化

各水準の試験体の質量変化を図 1.4-49 に示す。全ての水準で試験体の質量は浸漬回数の増加に伴い減少していた。質量減少が最も大きかったのは、OPC200 であり約 7%の減少率であった。次に減少率が大きかったのは FAC100 であり、約 4%の減少率であった。OPC100 と BFSC100 の浸漬 10 回目での質量減少率は、約 3%とほぼ同等であったが、OPC100 では、浸漬回数の増加に伴い質量も直線的に減少していた。これに対して、BFSC100 では、質量は浸漬 5 回目までは直線的に減少していたが、浸漬 6 回目以降では緩やかに減少していた。拘束試験体の質量変化は、無拘束試験体と同じように強度が大きい水準で質量減少率は小さく、強度の小さい水準で質量減少率が大きくなっており、拘束試験体においても硬化体組織の緻密さの違いが質量の減少に影響を与えていると考えられる。

なお、拘束試験体での質量減少率は、無拘束試験体での質量減少率に比べて小さくなっているが、これは灰固化体が拘束型枠で拘束されており、浸漬液に晒されている灰固化体の表面積が少なくなっていることが影響していると考えられる。

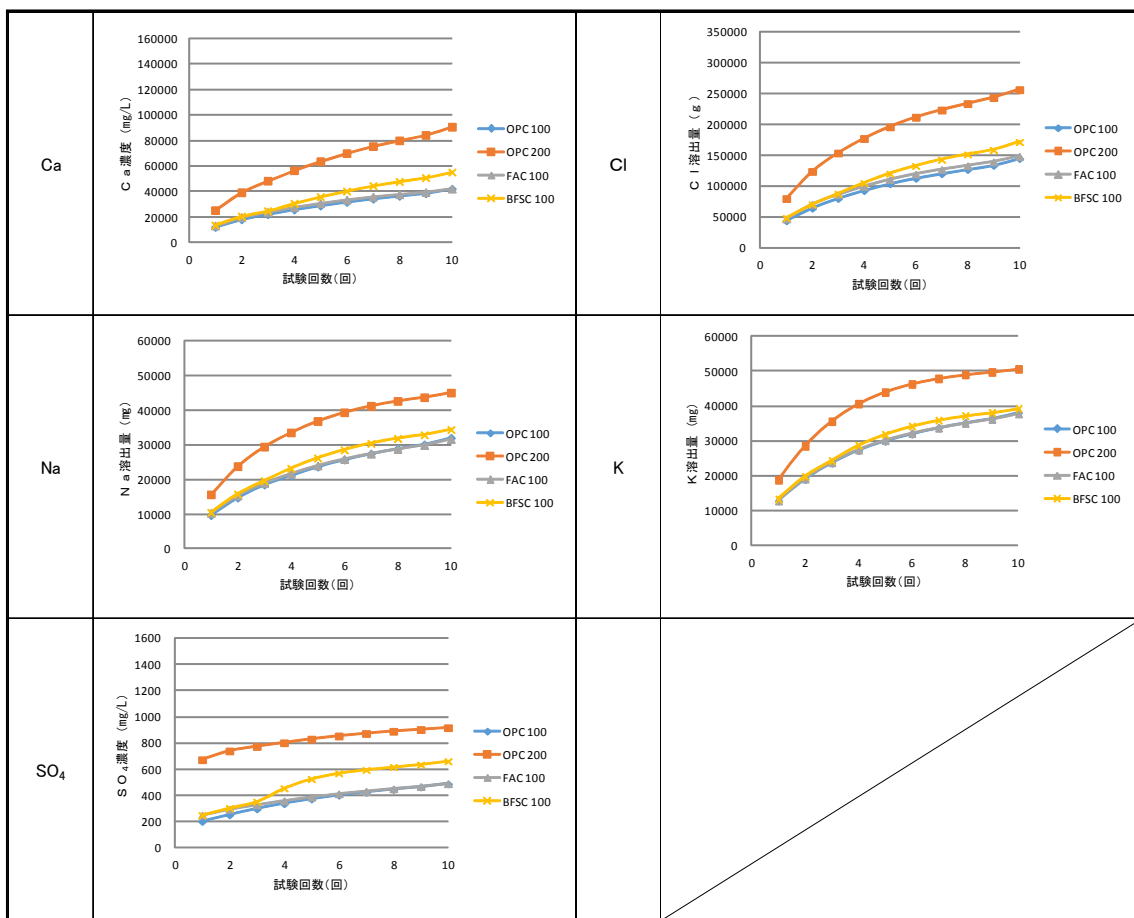


図 1.4-50 拘束試験体の各成分の溶出量

4) 浸漬液の組成

浸漬液の分析結果について、浸漬液の分析結果と 1 回の浸漬試験で使用したイオン交換水量 15.7L から各成分の溶出量を計算し、溶出量（積算量）を求めた結果を図 1.4-50 に示す。Ca、Cl の溶出量は、浸漬回数の増加に伴い増加しており、OPC200 で最も大きく、次いで BFSC100 で大きくなっていった。OPC100 と FAC100 では溶出量に大差なかった。Na、K の溶出量は、OPC200 で最も大きく、次いで、BFSC100 で OPC100 と FAC100 よりも僅かに大きかった。SO₄ の溶出量は、OPC200 で最も大きく、次いで BFSC100 で大きくなっていった。OPC100 と FAC100 とでは大差なかった。電気伝導率は、浸漬回数の増加に伴い減少しており、試験体からの溶脱量が試験回数数の増加に伴い減少していることを示唆するものであった。pH については、全ての水準で 11.0～11.5 の範囲で推移していた。なお、BFSC100 の Ca、Cl、Na、K、SO₄ 浸漬液の濃度および電気伝導率は、浸漬回数 4 回目以降やや増加していた。これは、外観観察で確認できない程度のひび割れが試験体に発生していた可能性が考えられる。

次に、浸漬試験前に試験体に含まれていたと推定される Cl 量を試験体作製配合から計算し、浸漬液の分析結果から求めた溶出量から溶出率を計算した結果を表 1.4-18 に示す。溶出率の最も大きかったのは OPC200 の 68.5% であり、次いで BFSC100 の 59.6%、OPC100 と FAC100 は、それぞれ 50.3% と 51.5% とほぼ同等であった。そして、拘束試験体での塩素の溶出率は無拘束試

験体の 77～89%であった。拘束試験体の円筒部に使用したパンチングメタルの開孔率が 32.6%であること、円筒外周に貼ったひずみゲージの防水処理の目的でテープを複数箇所貼っていることなどから、拘束試験体からの溶出はかなり抑制されると予想していたが、高い溶出率となっていた。無拘束試験体での溶出量を 100%として拘束試験体での他の成分の溶出量を比較すると、Na で 86～102%、K で 89～106%、Ca で 62～67%、SO₄ で 63～98%となっており、拘束試験体での溶出量の 60%以上が溶出していた。

表 1.4-18 拘束試験体からの Cl 溶出率

	Cl量 (mg)		溶出率 %
	含有量	溶出量	
OPC 100	288,074	144,911	50.3
OPC 200	374,496	256,538	68.5
FAC 100	288,074	148,365	51.5
BFSC 100	288,074	171,758	59.6

5) 考察

灰固化体中の膨張に伴うひび割れの発生原因は、灰固化体中に生成していたフリーデル氏塩から塩素が溶出し、溶出した塩素の代わりに灰固化体中に含まれている SO₄ が反応し膨張性物質であるエトリンガイトを生成したためと考えられる。無拘束試験体の OPC200 で早期にひび割れが発生したのは、OPC200 の強度が 4 水準の中で最も小さく、硬化体の組織も緻密でないため塩素の溶出が多くなり、エトリンガイトが初期から生成しやすかったためと考えられる。また、試験体の強度が小さかったため、生成したエトリンガイトの膨張圧でひび割れが入りやすかったことも影響していると考えられる。

次に、BFSC100 で早期にひび割れが発生したのは、強度は 4 水準の中で最も大きかったが、高炉スラグからもたらされるアルミの影響により、OPC100 と FAC100 に比べてフリーデル氏塩の生成量が多く、浸漬中に生成するエトリンガイト量が多くなったことが影響していると考えた。ただし、BFSC100 の浸漬前の灰固化体の粉末 X 線回折の結果を見ると、フリーデル氏塩のピーク強度は、他の水準と比べて大差なかったため、原因については不明である。拘束試験体の BFSC100 で、拘束型枠の変形が他の 3 水準に比べて顕著であったのは、上述したように、他の水準に比べて、エトリンガイトの生成が早い時期から始まり、その生成量が多くなったことが影響していると考えられる。

(2) 飛灰セメント固型化体の安定性に関するモデル解析

本項では、物質移行（拡散モデル）と化学反応（相平衡モデル）を連成させた相平衡物質移行解析コードを使用し、飛灰セメント固型化体の安定性に関する解析として、飛灰セメント固型化体が浸水した際に生じる固型化体の組成変化の計算を行った。拡散モデルは Poisson – Nernst · Planck 式を支配方程式とし、有限要素法を用いた。数値的に支配方程式を解き、物質移行を算定する。なお、物質移行と相平衡の連成解析コードは、太平洋セメント株式会社が開発したオリジナルコードである。

① 連成解析コードの概要

本連成コードの概要を図 1.4-52 に示す。この連成コードは、複数の劣化因子がコンクリート内部に浸透する現象、ならびに浸透した劣化因子がセメント成分に化学的に作用し劣化を引き起こす現象を、有限要素法と熱力学的相平衡を組み合わせることによって計算する。すなわち、時間の経過に伴い変化する硬化体中の液相・固相の組成の定量化、換言すれば、液相中の各種液相化学種の移動や水和物による液相化学種の固定、それら水和物の生成・溶解など、劣化現象に関する多様な化学的因子の挙動を総合的に解析することが可能である。

本連成コードでは、液相化学種は図 1.4-52 のとおり液相中を 1 次元の物質移動モデルに従って移動するものとした。一方、固相中の水和物は、溶解、析出、表面吸着により液相中の液相化学種との間で物質の授受が生じる。その挙動については熱力学的相平衡モデルに従うものとした。

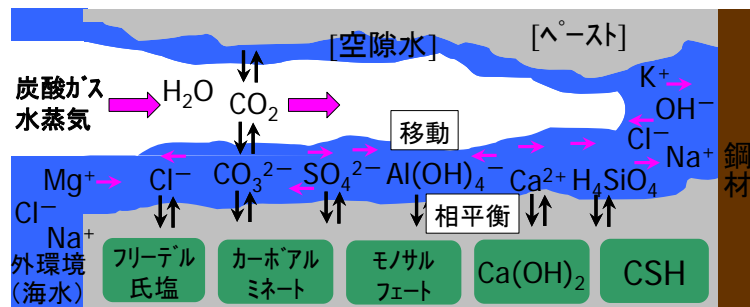


図 1.4-52 セメント硬化体中での物質移動と相平衡の概念図

② 液相の物質移行モデル

物質移動モデルにおける各種液相化学種の液相中での移動は、Nernst-Planck 式に基づく質量保存則の式(1)、ならびに、液相化学種の移動に伴い生じる静電ポテンシャル ϕ に関する Poisson 方程式(2)に従うものとした。

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = \frac{\delta_i D_i^0}{\tau^2} \cdot \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} + \frac{\delta_i B_i^0}{\tau^2} c_i z_i \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + q_i \quad (1)$$

ここに、 i : 液相化学種、 t : 時刻、 x : 深さ、 c_i : 濃度、 D_i^0 : 自己拡散係数、 B_i^0 : 絶対移動度、 τ : 空隙の屈曲度(tortuosity)、 δ_i : 空隙の収斂度、 z_i : 価数、 q_i : 生成・消滅項、

$$\varepsilon_w \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = \varphi \sum_i z_i c_i \quad (2)$$

ここに ε_w : 水の誘電率、 φ : Faraday 定数、である。

表 1.4-19 各水和物の反応式とその熱力学的平衡定数

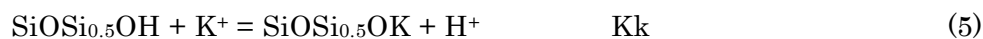
Phase	Reaction equation	log K_{sp}
Portlandite	$\text{Ca}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	22.8 ^a
Calcite	$\text{CaCO}_3 + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.849 ^b
Brucite	$\text{Mg}(\text{OH})_2 + 2\text{H}^+ = \text{Mg}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	16.84 ^b
Ettringite	$\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O} = 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 6\text{Ca}^{2+} + 26\text{H}_2\text{O} + 4\text{OH}^- + 3\text{SO}_4^{2-}$	-45.09 ^b
Monosulfate	$\text{C}_3\text{ACaSO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O} + 12\text{H}^+ = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}^{3+} + \text{SO}_4^{2-} + 18\text{H}_2\text{O}$	71.01 ^c
Friedel's salt	$\text{C}_3\text{ACaCl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 2\text{Cl}^- + 4\text{OH}^-$	-27.1 ^d
C_4AH_{13}	$\text{C}_4\text{A} \cdot 13\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + 6\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-25.56 ^b
Monocarbonate	$\text{C}_3\text{ACaCO}_3 \cdot 11\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al}(\text{OH})_4^- + \text{CO}_3^{2-} + 4\text{OH}^- + 5\text{H}_2\text{O}$	-31.47 ^b
C_4FH_{13}	$\text{C}_4\text{F} \cdot 13\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Fe}(\text{OH})_4^- + 6\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-29.4 ^b
C-S-H particle	$\text{Ca}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_2 + 4\text{H}^+ + \text{H}_2\text{O} = 2\text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_4\text{SiO}_4$	29.6 ^e
C-S-H internal and external surface sites	$-\text{SiOH} = -\text{SiO}^- + \text{H}^+$	-11.8 ^e
	$-\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} = -\text{SiOCa}^+ + \text{H}^+$	-9.0 ^e
	$-\text{SiOH} + -\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} = -\text{SiOCaOSi}^- + 2\text{H}^+$	-20.4 ^e
	$-\text{SiOH} + \text{Ca}^{2+} + \text{H}_2\text{O} = -\text{SiOCaOH} + 2\text{H}^+$	-24.85 ^e
	$-\text{SiOH} + -\text{SiOH} + \text{H}_4\text{SiO}_4 = -\text{SiOSi}(\text{OH})_2\text{OSi}^- + 2\text{H}_2\text{O}$	7.0 ^e

a: WATEQ4F b: Lothenbach et al. c: Reardon d: Birnin-Yauri and Glasser e: Benard et al

③ 相平衡モデル

ここでは、Nonat⁶⁾の C-S-H 溶解平衡モデルを PhreeqC 上に実装し、相平衡論に基づいてセメント硬化体の相組成を計算するモデルを用いた。Nonat らの C-S-H 溶解平衡モデルは、C-S-H 内の層状ケイ酸塩構造を構成するシリケート 2 量体の溶解平衡と、層状ケイ酸塩のシラノール基 $-\text{SiOH}$ の反応に関する複数の反応式で構成され、各反応式に対し熱力学的平衡定数が与えられている。C-S-H 表面はシラノール基の解離によって帯電し EDL を形成する。C-S-H の表面電位 ψ_0 と EDL 内の電荷分布は Poisson – Boltzmann 方程式によって支配され、これを解くことにより EDL の組成が求められる。一方、EDL を除く液相の組成、および生成する固相の種類とその量は相平衡論に基づき算定される。本モデルで用いた水和物の反応式とその $\log K_p$ を表 1.4-19 に示す。これ以外に用いる液相化学種や固相の反応式と平衡定数については、PhreeqC に付属のもの (Wateq4f) と、セメント水和物について整備された Lothenbach ら⁷⁾のものを併用して用いた。

なお、C-S-H による Na, K の収着機構について、2014 年度の検討で構築したモデルを用いた。2014 年度の検討では、シラノール基 $-\text{SiOH}$ と Na, K との反応を下式のように定義し、これらを Nonat らの C-S-H 溶解平衡モデルに加えることでシラノール基と Na, K との反応を PhreeqC 上に実装した。



各反応式の熱力学的平衡定数 Kna, Kk の値を表 1.4-20 に示す。これらは、合成 C-S-H による Na, K の固定実験結果を PhreeqC でフィッティングして求めたものである (このとき、C-S-H 表面上の電気二重層 (EDL) の厚さを決定する比例定数 $\chi = t_s / \kappa^{-1}$ (χ は比例定数、 t_s は EDL の厚さ、 κ^{-1} はデバイ長) は 1.0 とした)。

表 1.4-20 フィッティングによって得られた熱力学的平衡定数 log Kna および log Kk

C-S-H の Ca/Si	Log Kna	Log Kk
0.8	-10.8	-9.9
1.0	-11.4	-10.9
1.2	-12.1	-11.9

表 1.4-21 解析対象とした飛灰固化体

飛灰固化体	セメントに対するスラグ、フライアッシュの置換率	水セメント比	飛灰セメント比	CaSO ₄ 添加量 (g/灰 100g)	CaCl ₂ 添加量 (g/灰 100g)
OPC100		1.0	1.0	18.5	4
OPC200		2.0	2.5	24.05	5.2
BFSC60	0.6	1.0	1.0	18.5	4
FAC30	0.3	1.0	1.0	18.5	4

(3) 純水に浸漬した飛灰固化体中の物質移行解析

1) 条件設定

表 1.4-21 に示す 4 水準の飛灰固化体を解析対象とした。解析条件を以下に示す。

- ・ 飛灰固化体の空隙率と構造因子 (δ/τ^2)

飛灰固化体の空隙率は、セメントの結合水率（すなわちセメントの水和によって消費される水量の単位セメント量に対する質量比）を 25%と仮定し、そこから算出される自由水（すなわち、単位水量とセメントの水和によって消費される水量との差）を全て空隙であるとみなして推定した。

飛灰固化体の構造因子 (δ/τ^2) は、OPC については式(7)に示した Garboczi ら⁸⁾による OPC ペーストの δ/τ^2 の提案式を利用して飛灰固化体の空隙率から算出した。BFSC60、FAC30 については結合材が混合セメントであることを考慮し、混合セメントを用いたコンクリートの電気泳動試験で得られた δ/τ^2 がおおむね OPC の 1/3~1/4 であったことから、式(7)から求まる値の 1/3 を δ/τ^2 とした。算定された各飛灰固化体の空隙率および δ/τ^2 を、各飛灰固化体の単位セメント量と併せて表 1.4-22 に示す。

$$\frac{\delta}{\tau^2} = 0.001 + 0.07\varepsilon_p^2 + 1.8(\varepsilon_p - 0.18)^2 H(\varepsilon_p - 0.18) \quad (7)$$

ここに、 $\frac{\delta}{\tau^2}$: Tortuosity, ε_p : 空隙率, H: Heaviside 関数 ($H(x) = \begin{cases} 0 & x \leq 0 \\ 1 & x > 0 \end{cases}$)

表 1.4-22 各飛灰固化体の単位セメント量、空隙率および構造因子 (δ/τ^2)

飛灰固化体	単位セメント量 (kg/m ³)	空隙率 (%)	構造因子 (δ/τ^2)
OPC100	580	43.46	0.0439
OPC200	300	52.43	0.0937
BFSC60	574	43.05	0.0149
FAC30	568	42.37	0.0132

境界条件は純水とした。解析に必要な初期鉱物組成は、各飛灰固化体の初期固相組成は、使用

材料の鉱物組成、および各構成鉱物の水和率から与えられる。OPC は測定値、フライアッシュの鉱物組成は、Quartz、Mullite、Magnetite、Amorphous を FA 由来の鉱物と仮定して鉱物組成を算出した。高炉スラグはガラス相とした。

飛灰の組成は以下の考え方で設定した。

- ①化学組成は蛍光 X 線分析結果を使用する。
- ②結晶相は XRD で確認できた鉱物のみとする。
- ③Ca(OH)₂、CaCO₃、CaCl(OH)は示差熱重量分析 (TG/DTA) で算出する。
- ④SO₃は全て CaSO₄とする。
- ⑤Na₂O の一部は NaCl であり、NaCl 量は可溶性アルカリ量の試験結果から推定する。残りはガラスに含まれるとする。
- ⑥K₂O の一部は KCl であり、KCl 量は可溶性アルカリ量の試験結果から推定する。残りはガラスに含まれるとする。
- ⑦一般的な灰組成を参考にガラス分を約 30wt%とし、それ以上の重量とならないように、結晶質の CaO 量を定めた。

XRD の結果から結晶相として Portlandite(Ca(OH)₂)、Calcite(CaCO₃)、Hydroxichloride-Ca(CaClOH)、Anhydrite(CaSO₄)、Lime(CaO)、Halite(NaCl)、Sylvite(KCl) が確認された。上記手順により飛灰の鉱物相組成を計算した。

高炉スラグおよびフライアッシュのガラス相の化学組成は、既往文献^{9,10}から解析に関する化学種を抜粋して使用した。

表 1.4-23 OPC の鉱物組成 (mass%)

C ₃ S	C ₂ S	C ₃ A	C ₄ AF	Periclase	Gypsum	Bassanite	Calcite
50.5	26.7	7.9	9.7	0.2	0.5	1.7	2.7

表 1.4-24 フライアッシュの鉱物組成 (mass%)

Mullite	Quartz	Magnetite	Glass
14.81	8.41	0.34	76.43

表 1.4-25 飛灰の鉱物組成 (mass%)

Lime	Anhydrite	Calcite	Portlandite	Halite	Sylvite	CaCl ₂	CaCl(OH)	Glass
9.7	10.3	5.8	5.7	9.0	7.5	15.2	11.6	25.2

表 1.4-26 高炉スラグのガラス相の化学組成 (mass%)

CaO	SiO ₂	MgO	Al ₂ O ₃	S
41.7	33.8	7.4	13.4	0.8

表 1.4-27 フライアッシュのガラス相の化学組成 (mass%)

SiO ₂	Al ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
66.0	18.26	4.24	1.96	0.78	0.75

表 1.4-28 セメント鉱物および高炉スラグ/フライアッシュ中のガラス相の反応率 (%)

飛灰固化体	C ₃ S	C ₂ S	C ₃ A	C ₄ AF	BFSGlass	FAGlass
OPC100, OPC200	90.1	86.5	94.9	57.7		
BFSC60	93.0	81.8	33.3	95.2	80.0	
FAC30	98.1	65.5	91.2	61.1		40.0

以上から得られた, OPC の鉱物組成を表 1.4-23 に, フライアッシュの鉱物組成を表 1.4-24 に, 飛灰の鉱物組成を表 1.4-25 に, 高炉スラグのガラス組成を表 1.4-26 に, フライアッシュ中のガラス相の化学組成を表 1.4-27 にそれぞれ示す。

表 1.4-28 に本計算で用いた各構成相の反応率を示す。反応率は、飛灰中の結晶鉱物(Lime, Anhydrite, Calcite, Portlandite, Halite, Sylvite, Hydroxychloride-Ca)に対して全て 1.0 とした。飛灰中のガラス相の反応率は 0.0 (水和しない) とした。スラグの反応率は 80%とした。フライアッシュの結晶鉱物 (Mulite, Quartz, Magnetite) は水和しないと仮定して、反応率は全て 0.0 とした。フライアッシュ(結晶質+ガラス相)の水和率の実測値は 32.8%である。フライアッシュの結晶質は水和せず、ガラス相のみが水和すると考えられることから、ガラス相の割合からガラス相の水和率は 42.9%と試算された。本研究ではこの値を参考にフライアッシュのガラス相の水和率は約 40%と設定した。

OPC を用いた飛灰固化体中の C-S-H の Ca/Si を 1.2, フライアッシュおよび高炉スラグを用いた飛灰固化体中の C-S-H の Ca/Si を 1.0 と仮定し、各飛灰固化体の解析に用いた Na および K の平衡定数を表 1.4-29 に示した値に設定した。

解析の共通条件を示す。

- ・ 解析対象期間 (時間領域) : 7 日、35 日、77 日まで
- ・ 解析のタイムステップ dt : 6 時間
- ・ 解析対象空間領域 : 10cm
- ・ 空間分割数 : 41(0.25cm 刻み)
- ・ 解析対象とした化学種の種類とその拡散係数 D^0 (m^2/s) : 表 1.4-30 に記載のとおり

表 1.4-29 各飛灰固化体の解析に用いた Na および K の平衡定数

	OPC100	OPC200	BFSC60	FAC30
SiO-Na	-12.1	-12.1	-11.4	-11.4
SiO-K	-11.9	-11.9	-10.9	-10.9

表 1.4-30 化学種の拡散係数 ($m/s \times 10^{-9}$)¹²⁾

Cl ⁻	Na ⁺	Ca ²⁺	CaOH ⁺	SO ₄ ²⁻	K ⁺	OH ⁻
2.03	1.33	0.791	0.791	1.07	1.96	5.27

表 1.4-31 各図に示された略号

- | |
|---|
| <ul style="list-style-type: none"> ・ (A)固相組成の分布 ・ Fr:フリーデル氏塩 Mc:モノカーボネート Gyp:二水石膏 ・ OH-hyd:ハイドロタルサイト Ett:エトリンサイト CC:カルサイト ・ CH:ポルトランドイト CSH:C-S-H 水和物 Bru:ブルサイト ・ UnreactFA:未水和の FA UnreactBFS:未水和の BFS ・ UnreactASH:未水和の飛灰 UnreactOPC 未水和のセメント |
| <ul style="list-style-type: none"> ・ (B)各元素の総量の分布 ・ Tot_X: 硬化体中の各相 (液相、固相、電気二重層) に存在する化学種 X の総量 |

2) 解析結果

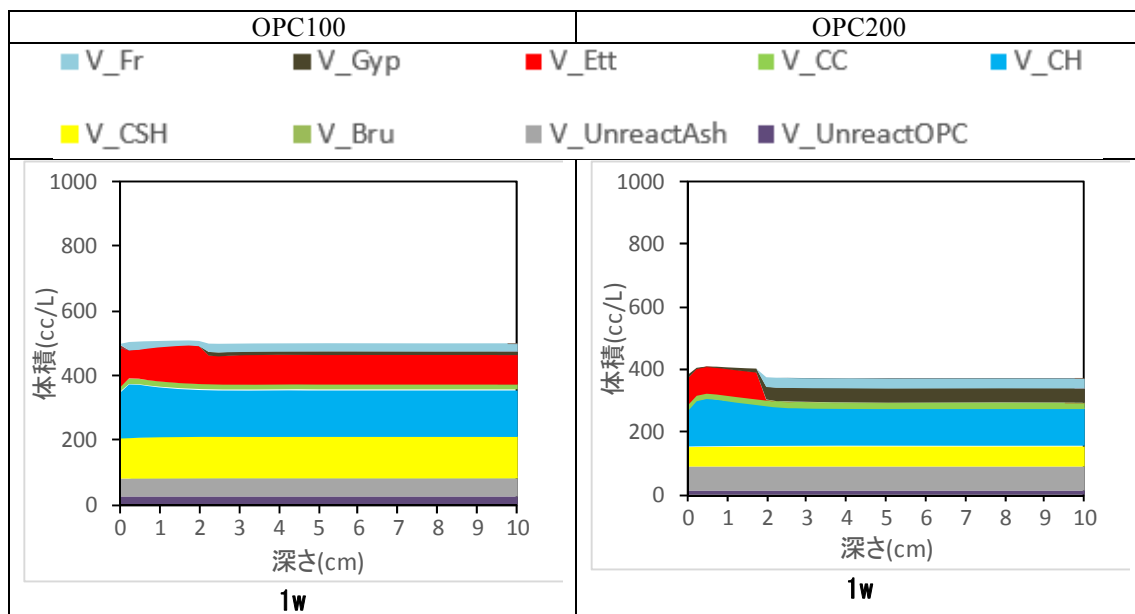
全水準の移行解析結果について、固相組成の分布を図 1.4-52 と図 1.4-53、元素の総量の分布を図 1.4-54 と図 1.4-55 に示す。各図に示された略号の意味を表 1.4-31 に示す。

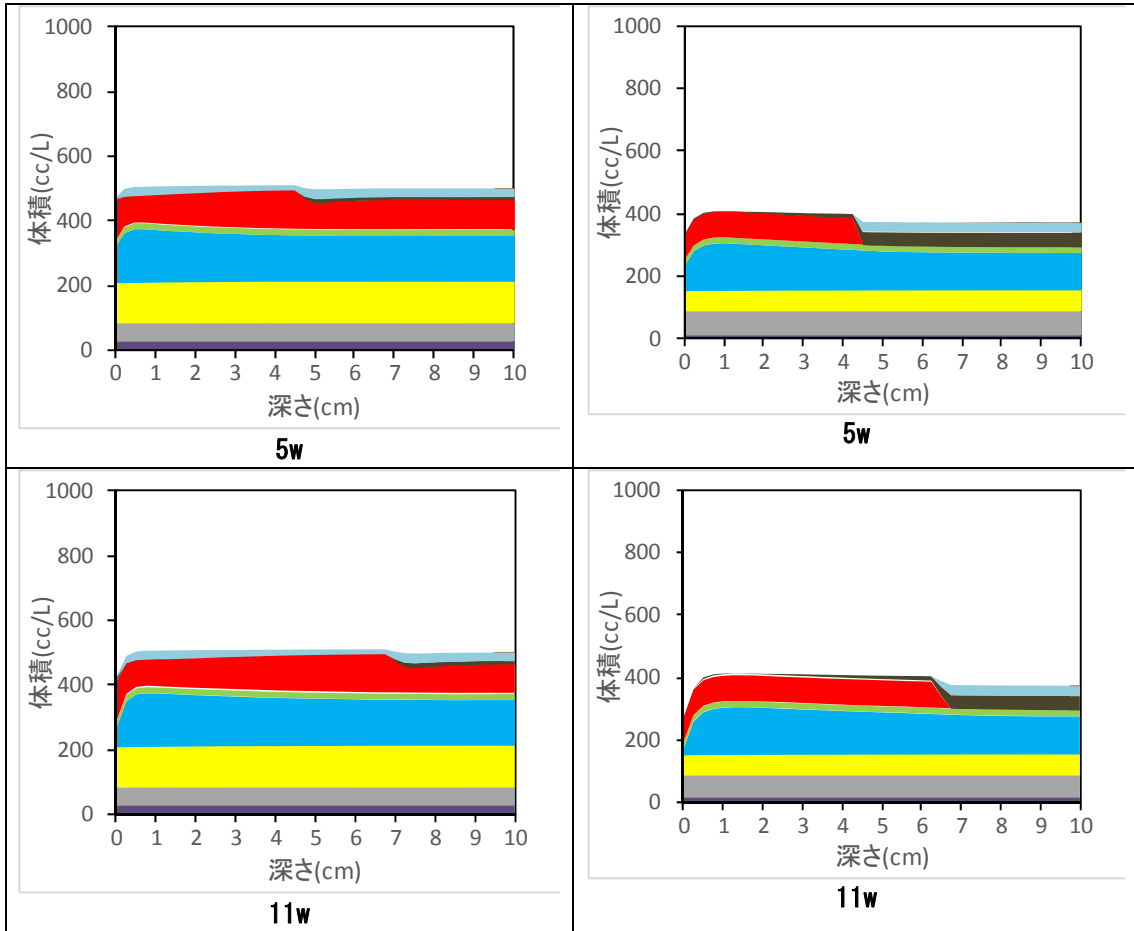
a) 固相の分布の解析結果

浸水による飛灰固化体中の固相の変質は、解析結果の 77 日目（11 週目）の時点で、OPC100 および OPC200 では 8cm 程度、BFSC60 および FAC30 はブロードだが 4cm 程度まで進む結果が得られた。このうち OPC100 および OPC200 の飛灰固化体では、エトリンガイトが生成することによる固相体積の増加、すなわち膨張が見られた。特に、OPC200 では、浸水前の飛灰固化体内にはエトリンガイトが生成していない状況であったのに対し、浸水後では、二水石膏およびフリーデル氏塩が消失し、エトリンガイトが多量に生成したことが特徴的である。BFSC60、FAC30 ではエトリンガイトの生成による固相の膨張は認められなかった。一方、表層付近では、ポルトランドイト及び/又はフリーデル氏塩の溶脱に起因した体積減少が何れの飛灰固化体に認められた。特に、エトリンガイトの生成による体積膨張が著しい OPC200 において、表層の溶脱による体積減少が最も大きい結果となった。

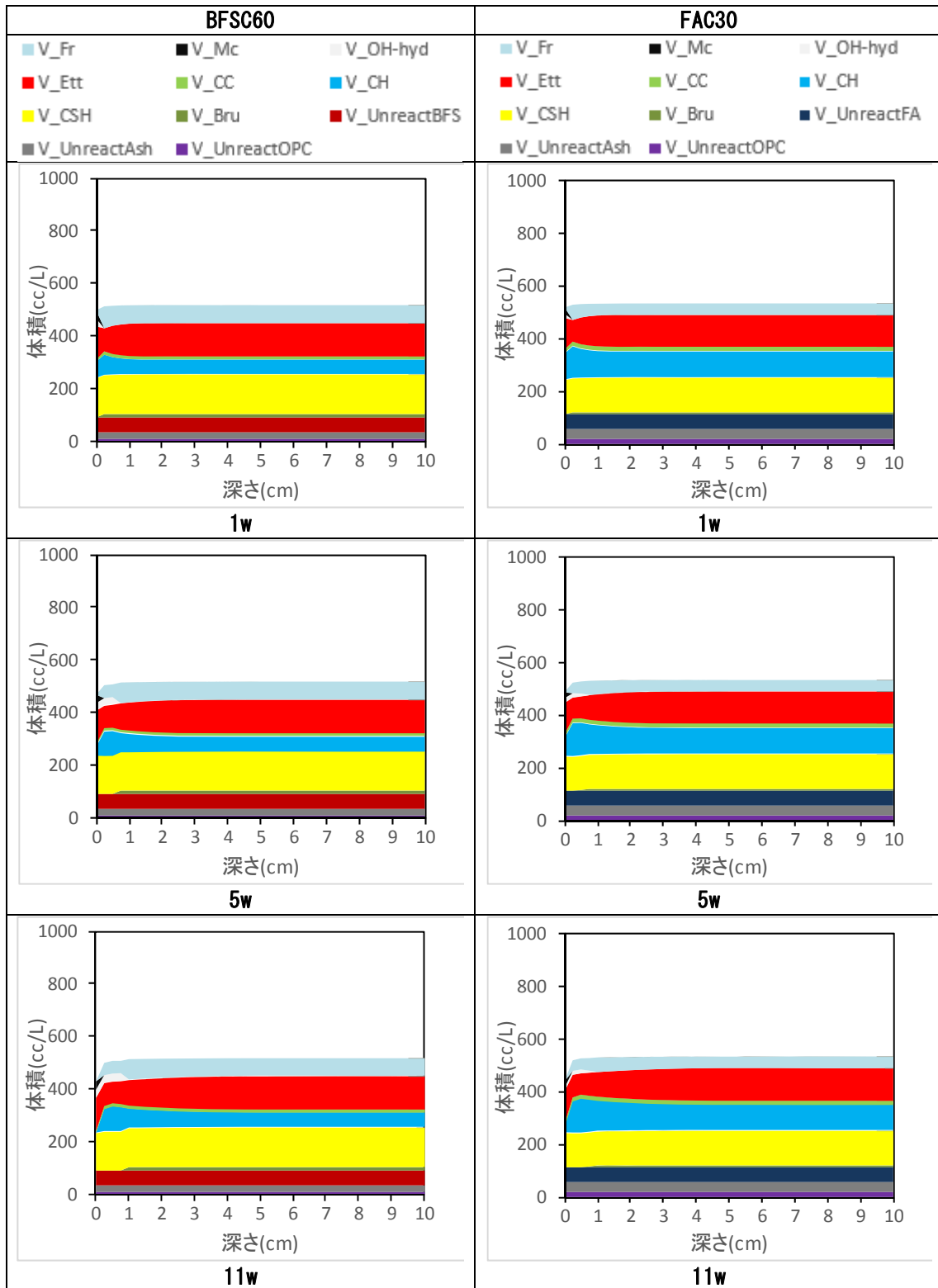
また、表層の溶脱による固相の変質については、BFSC60 および FAC30 において、新たな鉱物の生成としてモノカーボネートとハイドロタルサイトが認められた。これらの鉱物は、フリーデル氏塩の溶脱によってリリースされたアルミン酸イオンをソースとして生成されたものである。上述したエトリンガイトの生成に伴う固相の膨張について、各浸水期間後における固相の膨張の程度を式(8)に基づき定量化した。結果を表 1.4-32 に示す。

$$\text{固相の膨張の程度}(\%) = \frac{\text{変質後の非溶脱部から深さ 10cm までの固相体積}}{\text{変質しなかった場合の非溶脱部から深さ 10cm までの固相体積}} \times 100 \quad (8)$$

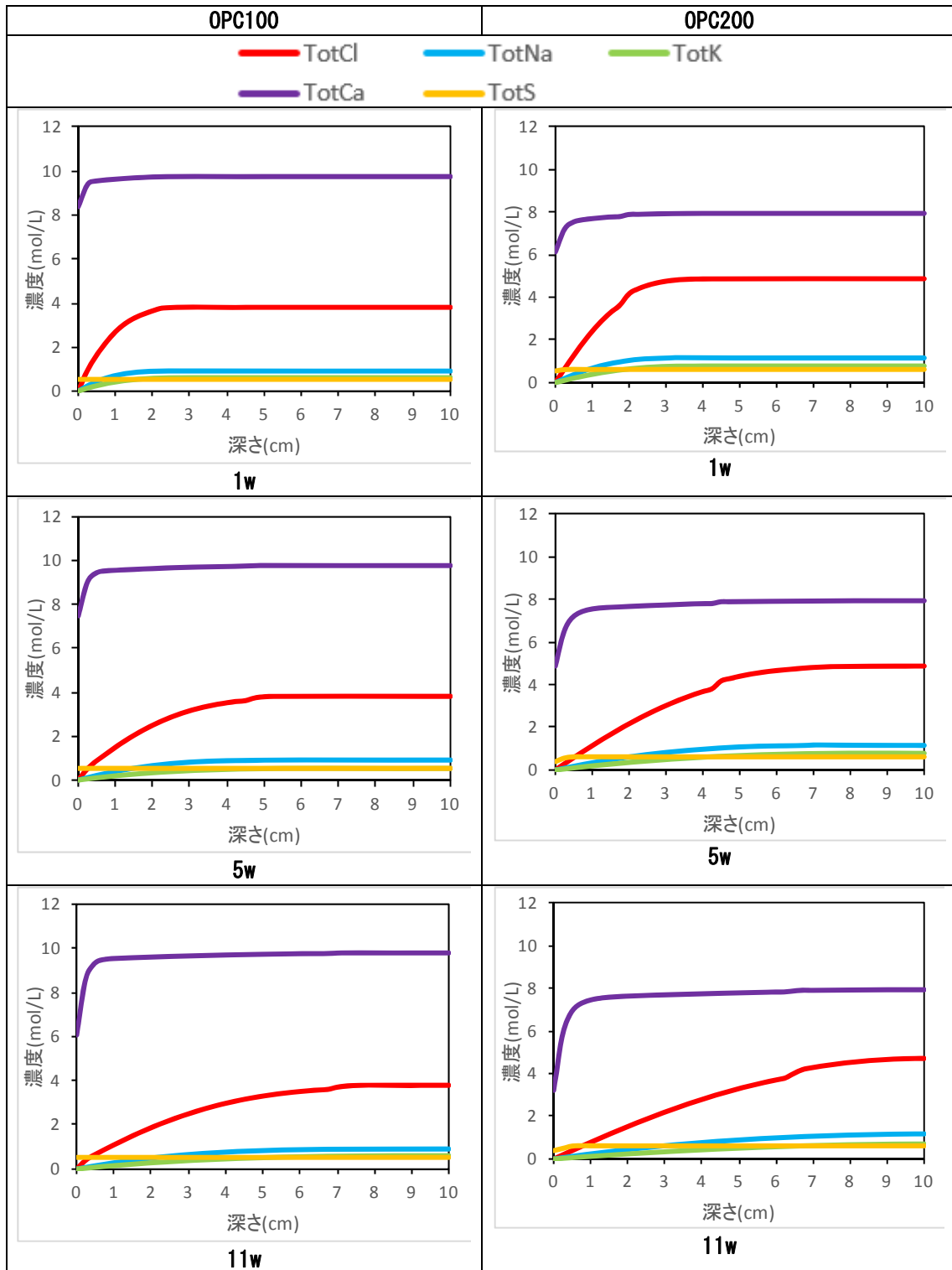




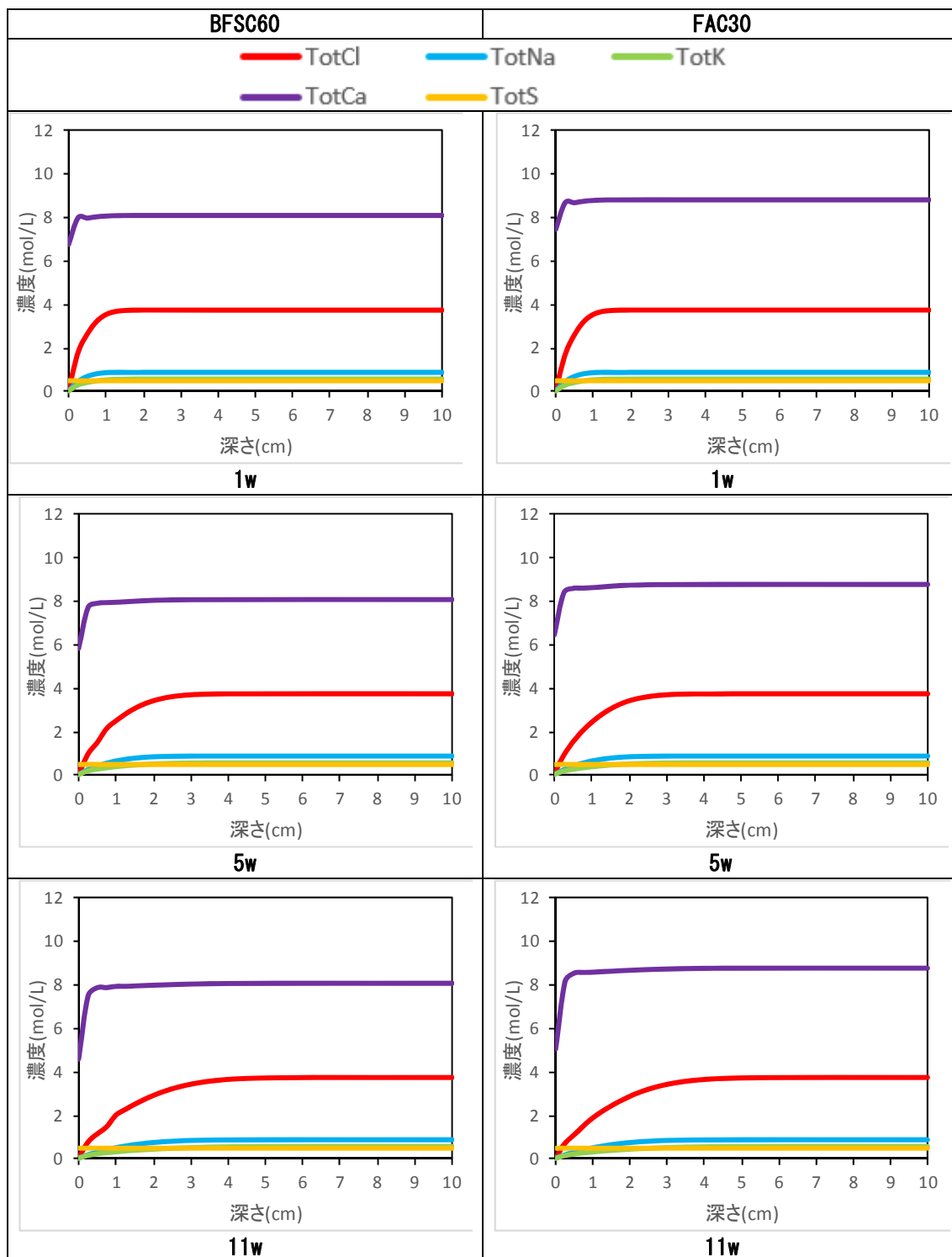
・ 図 1.4-52 OPC100、OPC200 の固相組成の分布



・ 図 1.4-53 BFSC60、FAC30 の固相組成の分布



・ 図 1.4-54 OPC100、OPC200 の固相・液相中の元素の総量の分布



・ 図 1.4-55 BFSC60、FAC30 の固相・液相中の全元素

表 1.4-32 固相の膨張の程度(%)

飛灰固化体	1w	5w	11w
OPC100	0.3	0.6	1.0
OPC200	1.6	3.7	5.6
BFSC60	0.0	0.0	0.0
FAC30	0.0	0.0	0.0

固相の膨張量を定量化した結果、OPC200 の固相の膨張の程度が OPC100 より大きくなってい

ることが認められた。これは先述の通り、OPC200では変質部において二水石膏とフリーデル氏塩が消失し、代わりにエトリンガイトが多量に生成することに起因している。一方、BFSC60およびFAC30については、変質による固相の膨張は式(8)による評価でも確認されなかった。

b) 元素の総量の分布の解析結果

元素の総量の分布から、何れの飛灰固化体においても、Na, K, ClおよびCaの溶脱が顕著となる解析結果が得られた。これらの元素の溶脱深さは、浸水期間が長くなるほど深くなっている。

Caの溶脱深さは、Na, K, Clの溶脱深さに比較して、いずれの飛灰硬化体においても浅いことが認められた。Caの溶脱はフリーデル氏塩の溶解でも生じるが、ポルトランタイトの溶解の影響が最も大きく、ポルトランタイトが著しく減少する表層付近でのCaの溶脱が顕著となる。

4水準の飛灰固化体の中ではOPC200の飛灰固化体の溶脱深さが最も深くなった。これは、OPC200の構造因子が最も大きいことに起因している。前項で述べたとおり、解析結果の固相の分布から77日浸水後のOPC200の変質深さを8cmと判断したが、77日浸水後のNa, K, Clの溶脱深さもほぼ8cmであることが認められ、固相の変質の深さと、全元素の溶脱の深さとが一致している。

全元素の総量によるOPC100とOPC200の溶脱挙動は、CaおよびClの濃度そのものは異なるものの、浸水期間の経過に伴う溶脱深さの変化など、ほぼ同様な傾向を示した。しかし、固相の分布で述べたとおり、浸水による水和物の消失や新たな水和物の生成という点では、両者の挙動は大きく異なっている。この相違は、各飛灰固化体の鉱物組成の相違に起因している。

OPC200では、SO₃を多く含む飛灰の比率がOPC100より高いため、Alに対してSO₃が過剰となり、浸水前のOPC200の飛灰固化体内ではエトリンガイトが生成せず二水石膏とフリーデル氏塩が生成しやすい組成であることが相平衡計算により示されている。この固化体への浸水により、表層側からフリーデル氏塩が溶解し、リリースされたアルミン酸イオンが二水石膏と即座に反応してエトリンガイトを生成する。一方、OPC100では浸水前から固化体内にエトリンガイトが生成し、かつ二水石膏の生成量はOPC200よりも少ないため、浸水によってフリーデル氏塩が溶解しても二水石膏の量が少ないため、増加するエトリンガイトの量もOPC200の場合よりも少ない。BFSC60およびFAC30においても、飛灰セメント比がOPC100と同一であり、浸水前の二水石膏がほとんど存在しないため、浸水によるエトリンガイトの増加は認められない。すなわち、浸水後のエトリンガイトの生成およびその量は、浸水前に存在している二水石膏の生むおよびその量に依存していると言える。

以上のように、浸水を受ける飛灰固化体の安定性は、セメント、混合材および飛灰のそれぞれの化学組成とそれぞれの混合割合によって相違することが、本解析によって示唆される結果となった。

c) 実験結果との比較

表1.4-18の飛灰固化体を実際に浸水させた実験において、固化体の変質部と未変質部のXRD分析を行っている。得られたXRDの測定結果から、エトリンガイト、ポルトランタイト、フリーデル氏塩および二水石膏のピーク強度(cps)を、それぞれの飛灰固化体について取りまとめると表1.4-33のとおりとなった。未変質部は浸水前の飛灰固化体の固相とみなせるので、各水和物のピーク強度についての未変質部と変質部の差は、浸水による水和物量の変化とみることができる。先述の解析結果と比較すると、OPC200の飛灰固化体においても浸水前にエトリンガイトが生成

しているなど、厳密には解析結果と整合しない点も認められるが、浸水によってエトリンガイトが増加し、ポルトランダイト、二水石膏およびフリーデル氏塩が減少するという傾向については解析結果と一致する。そこで、浸水によって存在量が増加する水和物と減少する水和物のピーク強度の比を算出し、浸水前後のそれぞれのピーク強度の差を求め、各水和物の増減を評価することを試みた。ピーク強度の差を表 1.4-34 に示す。浸水前後の Ett/CH の差から、浸水前に固化体内に二水石膏が存在した OPC200 では、浸水によるエトリンガイトの増加ならびにポルトランダイトの減少といった挙動が、他の水準に比べ極めて顕著であることが認められる。

前項において、浸水によるエトリンガイトの増加は浸水前の二水石膏の存在量に依存しており、浸水前に二水石膏の存在量が多い OPC200 で、浸水後のエトリンガイトの増加量が顕著であったことを解析結果として述べた。このように、本項で示した浸水試験による結果は、固相の変質という点で解析結果と定性的に整合しており、本解析結果の妥当性を示すものと言える。

表 1.4-33 飛灰固化体中の未変質部および変質部の各鉱物の XRD ピーク強度(cps)

鉱物	2θ (deg)	OPC100		OPC200		BFSC60		FAC30	
		未変質部	変質部	未変質部	変質部	未変質部	変質部	未変質部	変質部
Ett	9.0	782	915	1051	1988	789	1158	677	1020
Fr	11.2	1112	1049	1052	425	1215	1013	912	1003
CH	34.1	1694	525	3824	50	205	77	174	143
Gyp	29.1	—	—	1176	551	—	—	—	—

表 1.4-34 浸水前後における各水和物の XRD ピーク強度比の差

ピーク強度比	OPC100	OPC200	BFSC60	FAC30
Ett/CH	1.28	39.48	11.19	3.24
Fr/Ett	-0.276	-0.787	-0.665	-0.364
Gyp/Ett	—	-0.842	—	—

謝辞：本項は太平洋セメント(株)中央研究所細川佳史博士の協力を得て実施した。

参考文献

- 1) A. Nonat: The structure and stoichiometry of C-S-H, Cement and concrete research, 34, pp.1521-1528(2004)
- 2) B. Lothenbach et al.: Thermodynamic modeling of the effect of temperature on the hydration and porosity of Portland Cement, Cement and concrete research. 38(1), pp.1-18 (2008)
- 3) E.J. Garboczi and D. P. Bentz: Computer simulation of the diffusivity of cement-based materials, Journal of Materials Science, 27, (8), pp.2083-2092 (1992)
- 4) 新日鉄住金 HP <http://www.nssmc.com/product/slag/nsslagers.html>
- 5) 須田裕哉, C-S-H の組成と物理的性質の関係に基づいたセメント硬化体の性能評価に関する研究、新潟大学学位論文(2013)
- 6) Y. Hosokawa, K. Yamada, B. Johannesson, L.-O. Nilsson: Development of a multi-species mass transport model for concrete with account to thermodynamic phase equilibriums, Materials and Structures, Vol.44, No.9, pp.1577-1592(2011)

(4) 分子修飾によるフェロシアン化ニッケルの耐アルカリ性への影響評価概要

1) はじめに

塩化ニッケルの濃厚水溶液とフェロシアン化カリウムの濃厚水溶液の界面で生じるフェロシアン化ニッケル（界面合成 NiFeCN）は、セシウムイオン（Cs⁺）に対して特異的に強いイオン交換能を持つだけでなく、アルカリ雰囲気下での分解も通常の混合法で作成した NiFeCN よりもはるかに遅いため、アルカリ雰囲気下での放射性 Cs 吸着剤として使用可能である。しかしながら界面合成 NiFeCN はアルカリ性雰囲気下でゆっくりと分解するため、より耐アルカリ性の高い NiFeCN の作成が期待されていた。

本研究では、放射性 Cs 吸着後の界面合成 NiFeCN にさらに安定 Cs を追加吸着させることにより、この課題を達成した。フェロシアン化ニッケルに対する吸着 Cs のモル比を 1:1 にすると、3mol/L の濃厚水酸化ナトリウム溶液中に 40℃で 1 か月以上浸漬しても分解しない界面合成 NiFeCN を作成することができた。よってこれをセメント固化すれば、放射性 Cs を安定的に廃棄処分することも可能となる。

2) アルカリ耐性とセシウム含有量

化学反応はすべて自由エネルギーが減少する方向に進むから、NiFeCN をより安定化させ、その自由エネルギーを減少させれば、NiFeCN のアルカリ耐性が高まるはずである。NiFeCN の Cs 吸着反応もまた自由エネルギーの減少を伴うから、NiFeCN に Cs を吸着させると、そのアルカリ耐性が高まるはずである。これを確かめるため、2 章と同じ手法で作成した 1.2mmol の界面合成 NiFeCN に水 100mL 及び Ca(OH)₂ 約 200mg を加えて攪拌後 40℃恒温槽中に保管し、一定時間ごとに溶液 10mL を取り出して、アルカリ分解で生じる Fe(CN)₆⁴⁻イオンの濃度を酸化還元滴定により決定した。その結果を図 1.4-56 に示す。

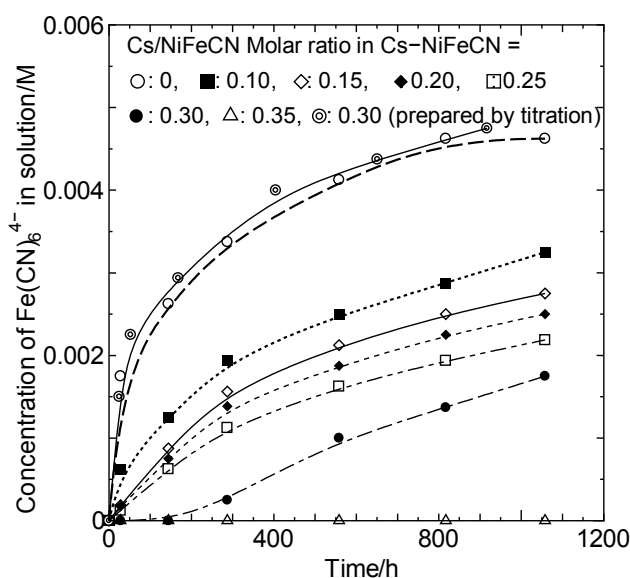


図 1.4-56 40℃飽和 Ca(OH)₂ 溶液中での NiFeCN のアルカリ分解で生じた Fe(CN)₆⁴⁻の生成速度に及ぼす吸着 Cs 量の効果

NiFeCN に対する吸着 Cs のモル比 (Cs/NiFeCN) が増加するほどアルカリ分解速度は低下することが分かる。Cs/NiFeCN=0.35 では分解が実質上停止する。図の◎は滴定法で作成した Cs/NiFeCN=0.3 の NiFeCN のアルカリ分解曲線だが、これを●で示す、界面合成法で作成した Cs/NiFeCN=0.3 の NiFeCN のアルカリ分解曲線と比べると分かるように、同じ Cs 吸着量でも滴定法で作成した NiFeCN のアルカリ分解は界面合成法で作成したものよりはるかに速い。以上より、NiFeCN のアルカリ分解の抑制には、界面合成法と Cs 吸着量の増加が共に効果的であることが結論される。

飽和 Ca(OH)₂ 水溶液の OH⁻イオン濃度 (40°C で 0.038M) 以外での Cs 吸着 NiFeCN の耐アルカリ性を知るため、1.2mmol の Cs 吸着界面合成 NiFeCN を様々な濃度の水酸化ナトリウム (NaOH) 溶液 100mL に加えて 40°C 恒温槽中で 1 か月間放置し、アルカリ分解で生じる Fe(CN)₆⁴⁻イオンの有無を過マンガン酸カリウム滴定で調べた。その結果を表 1.4-35 に示す。Cs/NiFeCN 比が 0.75 以上になると、1M の NaOH 中でも分解しないだけの耐アルカリ性を持つことが分かる。放射性 Cs 吸着後の NiFeCN にさらに安定 Cs を吸着させ、Cs/NiFeCN 比を 1 程度とすれば、セメント固化処理しても劣化しない、廃棄処分に適した NiFeCN となることが結論される。

表 1.4-35 40°C の NaOH 溶液中に 1 ヶ月保存時の Cs 吸着 NiFeCN の耐アルカリ性

Cs/NiFeCN モル比	分解が認められない NaOH 濃度 / M	分解が認められた NaOH 濃度 / M
0.15	0.0025	0.05
0.30	0.10	0.20
0.50	0.40	1.0
0.75	1.0	2.0
1.00	3.0	4.0

3) セシウム吸着フェロシアン化ニッケルのセシウム吸着能

飽和 Ca(OH)₂ 溶液中でも分解しない Cs 吸着 NiFeCN の Cs/NiFeCN モル比は 0.35 なので、あらかじめ Cs/NiFeCN=0.35 となるように Cs を吸着させた NiFeCN と Ca(OH)₂ 粉末を CaCl₂=1M、NaCl=1M、KCl=1M、Cs-137 を含む CsCl=10⁻⁴M の組成を持つ水溶液に加え、室温で 2 週間攪拌した後の Cs 吸着 NiFeCN による溶液からの Cs 除去率を、溶液の Cs-137 γ 線線量測定によって調べた。その結果を図 1.4-57 に示す。Cs 吸着 NiFeCN のモル数が溶液中の Cs の 50 倍程度あれば、溶液中のほとんどの Cs を除去できることが分かる。1kg の焼却飛灰中の Cs のモル数を 10⁻⁴モルとすると、これを吸着するのに必要な Cs 吸着 NiFeCN のモル数は 5mmol、重量にして 1.9g 程度となる。組成式 Cs_{0.35}K_{1.65}NiFe(CN)₆ を有する Cs 吸着 NiFeCN を、飛灰 1 トンに対して約 2kg 程度添加すれば、焼却飛灰からの放射性 Cs の流出が阻止できる。なお、NiFeCN の Cs 吸着速度は吸着 Cs の量が多くなるほど低下するので、飛灰に必要量の Cs を添加してから Cs を含まない NiFeCN を添加した方が、飛灰からの Cs 吸着が速やかに進行することになる。

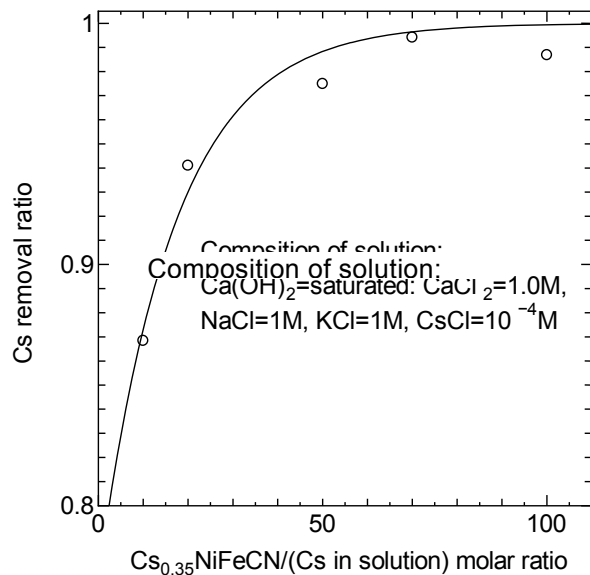


図 1.4-57 あらかじめ Cs を 35mol%吸着させた NiFeCN の、溶液からの Cs 除去能

謝辞：本項は市川恒樹北海道大学名誉教授(国立環境研究所客員研究員)の協力によった。

(5) フェロシアン化物の分子軌道法による構造計算

1) はじめに

セシウムイオンとフェロシアン化ニッケル(NiFeCN)結晶格子との相互作用に関して、密度汎関数理論計算によるアプローチを実施した。ここでは、密度汎関数計算により、セシウムイオン(Cs⁺)およびカリウムイオン(K⁺)とフェロシアン化ニッケル結晶格子(BOX)の相互作用を理論的に研究した。

2) 計算方法

全ての量子化学計算は、Gaussian09 プログラム¹⁾に内蔵された密度汎関数(DFT)法を用いて行った。計算方法は、クーロン相互作用を考慮した CAM-B3LYP 法²⁾を用い、有効内殻ポテンシャルを考慮した LanL2DZ³⁾を基底関数として採用した (計算レベルは、CAM-B3LYP/LanL2DZ)。

ユニットセルの格子サイズは、実測値 10Åを用い、ユニットセルの 1/8 の格子 (図 1.4-58 参照、ここでは、BOX と呼ぶ) をフェロシアン化ニッケル結晶格子モデルとした。CN の位置は、CAM-B3LYP/LanL2DZ 法により最適化した。

Cs⁺および K⁺の結合エネルギー (E_{bind}) は、(たとえば、Cs⁺の場合)、

$$-E_{\text{bind}} = E([\text{Cs}^+-\text{BOX}]) - (E(\text{Cs}^+)+E(\text{BOX})) \quad (1)$$

で計算した。ここで、[Cs⁺-BOX]は、BOX 内に Cs⁺が内包した状態を表し、E([Cs⁺-BOX])は、そのトータルエネルギーを示す。E(Cs⁺)および E(BOX)は、それぞれ、のトータルエネルギー、および、BOX 単体のトータルエネルギーを示す。

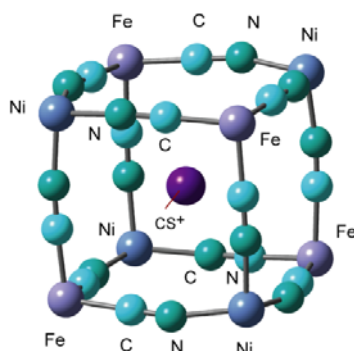


図 1.4-58 Cs⁺を含有するフェロシアン化ニッケルのモデル格子の構造最適化

3) 計算結果

a) NiFeCN のモデル格子中での Cs⁺と K⁺の結合構造と架橋エネルギー

まず、Cs⁺を内包した NiFeCN 格子の最適化構造を CAM-B3LYP/LanL2DZ レベルで計算した。得られた構造を図 1.4-58 に示す。次に、NiFeCN 格子 (BOX) を単独で、さらに、Cs⁺のトータルエネルギーを計算し、(1)式により、Cs⁺の結合エネルギーを求めた。CAM-B3LYP/LanL2DZ レベルの計算で求めた結合エネルギーとして、32.8 kcal/mol が得られた。同様の計算を、K⁺についても行い、結合エネルギーとして、36.6 kcal/mol が得られた。

b) 6 個の水分子による Cs⁺と K⁺の水和構造

Cs⁺および K⁺の水和構造を CAM-B3LYP/LanL2DZ レベルの計算で求めた。得られた構造を図 1.4-59 に示す。Cs⁺と水分子の酸素原子までの距離として、3.142 Å、K⁺の場合は、2.707 Å が得られた。水和エネルギーは、Cs⁺の場合 83.6 kcal/mol、K⁺の場合、107.6 kcal/mol となり、K⁺の方が水和エネルギーが 24 kcal/mol 大きかった。

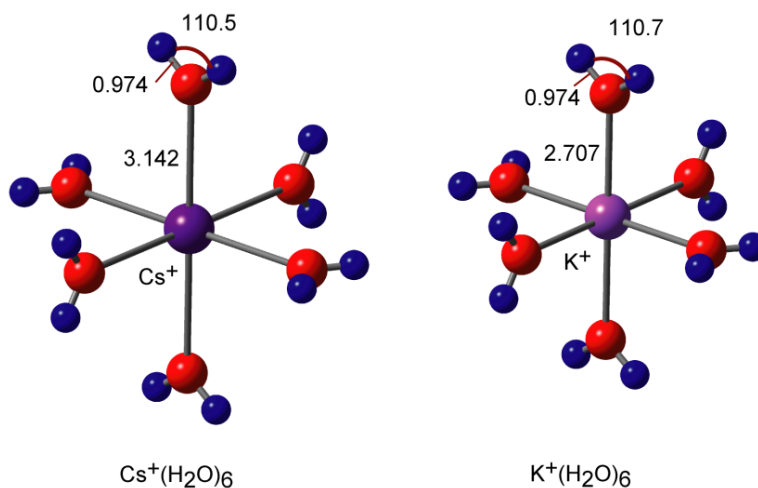


図 1.4-59 Cs⁺(H₂O)₆ と K⁺(H₂O)₆ 錯体の最適水和構造

c) NiFeCN モデル格子中での Cs⁺と K⁺の交換エネルギー

水和エネルギーを考慮した結合エネルギーを計算した結果を表 1.4-36 に示す。水和エネルギーを考慮すると、K⁺よりも Cs⁺の方が、NiFeCN 格子 (BOX) と強く結合する結果が得られた。エネルギー差は、20.2 kcal/mol であった。水和した Cs⁺は、K⁺より強く NiFeCN へ結合する結果が

得られ、これが NiFeCN に Cs⁺ が特異吸着する原因と考えられる。

表 1.4-36 系の全エネルギー（任意単位）と相対エネルギー（ kcal/mol）

System	Total energy (in a.u)
[Cs ⁺ - BOX] + K ⁺ (H ₂ O) ₆	-2789.85557
[K ⁺ - BOX] + Cs ⁺ (H ₂ O) ₆	-2789.82343
ΔE (in kcal/mol)	20.2 (NiFeCN 中で Cs ⁺ の方が安定)

謝辞：本項は北海道大学大学院田地川浩人助教の協力により実施した。

参考文献

- 1) Gaussian 09: Ab initio calculation program
- 2) CAM-B3LYP 法: Handy and coworkers' long range corrected version of B3LYP using the Coulomb-attenuating method T.
- 3) Yanai, D. Tew, and N. Handy, "A new hybrid exchange-correlation functional using the Coulomb-attenuating method (CAM-B3LYP)," Chem. Phys. Lett., 393 (2004) 51-57.

1.4.5 コンクリートの焼却飛灰へのアルカリ骨材反応の診断と長期予測

(1) 骨材のアルカリ反応性の適切な評価方法

1) はじめに

指定廃棄物処分には鉄筋コンクリート製の遮断型相当の最終処分場が用いられる。このコンクリートの耐久性確保において、アルカリ骨材反応(ASR)によるひび割れの防止は重要な課題である。しかし、各種の骨材のアルカリ反応性試験には限界があり、確実な ASR の防止にはさらに慎重な対応が必要である¹⁾。これはコンクリートの膨張が骨材単体での試験の特性だけでは決まらず、骨材の混合割合や粒径に依存するためである。より確実にコンクリートのアルカリシリカ反応(ASR)のリスクを評価するには、コンクリートプリズム試験(CPT)が適する。CPT は骨材の反応性判定だけでなく、たとえば JASS5N T603 のように ASR 膨張の限界アルカリ濃度を求める性能試験としても用いられる。

CPT では、合理的な期間内に結果が得られるように、温度を高め、アルカリ濃度を増加して、膨張を促進する。この際、特に北米や RILEM の CPT の規準類では、試験中のアルカリ溶脱と不十分な水分供給の可能性があり、試験の信頼性に課題がある。これを解決するために、空隙水と同じアルカリ性を有する溶液を含浸させた不織布で試験体を梱包するアルカリラッピング(AW)を施した CPT(AW-CPT)を提案し²⁾、種々の骨材について、温度とアルカリ濃度の膨張に及ぼす影響を評価した³⁾。

ここでは、これらの研究を引用し、AW-CPT により得られた膨張を起こした反応機構、評価結果の解釈、将来予測への応用について考察する。

表 1.4-37 使用骨材

特徴と試験方法	骨材種類
---------	------

	急速膨張性			遅延膨張性				不明	非反応性
	OT	IS	NT	IW	EH	KG	OD	TY	LS
産地	北海道	北陸	東北	関東	四国	九州	中部	中部	九州
岩種	安山岩	安山岩	安山岩	砂岩	ホルンフェルス	緑色片岩	ホルンフェルス	チャート	石灰岩
反応性鉱物	trid, gl	crist., gl	opal, crist., gl	crypt-qz	crypt-qz	crypt-qz	crypt-qz	chalc. crypt-qz	no
劣化例	有	有	有	有	有	有	有	有	無
JIS 化学法	有害	有害	有害	有害	無害	無害	無害	有害	無害
JIS モルタルバー法	有害	有害	有害	無害	無害	無害	無害	有害	無害
RILEM AAR-2	有害	有害	有害	有害	有害	有害	不明確	無害	無害
RILEM AAR-3 AW	有害	有害	有害	有害	有害	無害	—	有害	—
RILEM AAR-4 AW	有害	有害	有害	有害	有害	有害	有害	有害	無害
RILEM AAR-4	有害	—	有害	有害	—	—	無害	—	—

crist.: クリスタバライト、trid: トリディマイト、gl: 火山ガラス、crypt-qz: 隠微晶質石英、chalc.: カルセドニー

2) 実験条件

使用骨材を表 1.4-37 に示す。3 種類の急速膨張性の安山岩砕石骨材(OT、IS、NT)、1 種類のチャートの砂利(TO)、4 種類の遅延膨張性の砕石骨材(砂岩 IW、2 種類のホルンフェルス EH、OD、緑色片岩 EH)、非反応性骨材として石灰石を用いた。安山岩は石灰岩と組み合わせ 30% のペシマム条件とし、遅延膨張性骨材は 100% とした。細骨材は石灰岩単体、セメントは普通ポルトランドセメントとした。アルカリ濃度の調整範囲は 2.0~5.5 kg/m³ とし、NaOH を練混ぜ水に溶解して添加した。配合は、単位水量 160kg/m³、水セメント比 0.50、空気量 4.5±1.5% とした。

試験体は、75×75×250mm の角柱を打設し、打設後 24 時間で脱型後、30 分間水中に浸漬し長さや質量を測定し、アルカリ総量に対応した濃度のアルカリ溶液を 50g 含ませた不織布 1 枚と食品用プラスチックフィルムで梱包し、底部に水を入れた密閉ステンレス製角型容器に入れ、容器ごと高温恒湿槽(20、40、60℃)に保管した。膨張はダイヤルゲージで測定し、測定ごとに不織布の質量減少分だけ純水を添加し、同じ不織布を巻きつけた。

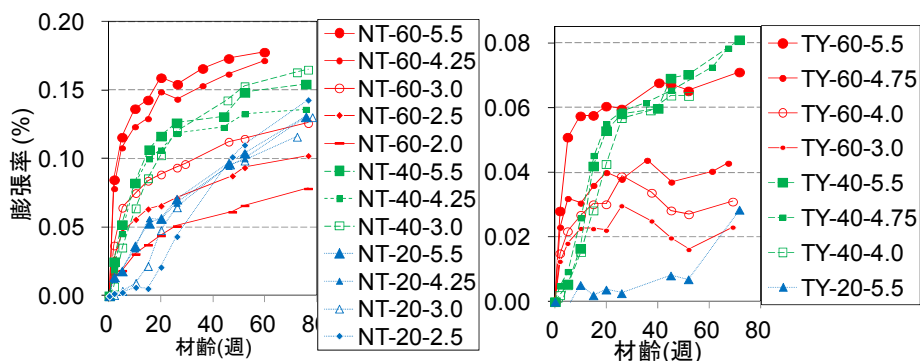


図 1.4-60 温度・アルカリ濃度が異なる場合の膨張挙動

3) 結果と考察

NT、TY の膨張挙動を図 1.4-60 に示す。凡例は、骨材種類・温度(℃)・アルカリ濃度(kg/m³)を示す。高温、高アルカリ濃度では、初期から急速に膨張が始まり比較的早期に速度は低下する。より低温、低アルカリ濃度では、膨張開始までに時間を要するが、長期にわたり膨張を継続し、促進条件がより厳しいものを追い越す傾向にある。この結果から、評価する材齢が異なると膨張傾向に異なる判定を下すことになる。骨材のアルカリ反応性の判定試験として用いるならば、ある

条件を定め、実被害との比較を行うことで CPT を使用できる。北米やオーストラリアでは、このように基準値が決められている。

しかし、膨張予測では、促進条件と評価材齢に依存し異なる判断となる。実構造物や大型暴露試験体の長期的膨張は CPT よりも何倍も大きいことが指摘されている。この傾向はこの試験結果からも理解できる。長期予測を行う場合には、これらの結果をもとに、ある膨張挙動を定式化し、その式のパラメータの温度・アルカリ濃度依存性をフィッティングにより求め、現実のアルカリ濃度と温度履歴を与えることで再現できる⁴⁾。ASR は水分供給にも強い影響を受けるので、CPT から暴露条件での挙動を推定するには降雨の影響も考慮する必要がある⁴⁾。

AW は十分に水分供給でき、アルカリの溶脱を防止できる。しかし、ASR により生じたアルカリシリカゲル(ASG)の一部が不織布に移る。表 1.4-38 に文献データ²⁾から移行成分の温度依存性を示す。高温でより多くの ASG が移行する。高アルカリ濃度でも ASG はより多く移行し、NT-60-5.5 の場合、NT-60-3.0 に比較し、シリカは 4 倍となった。試験体断面に観察される ASG 量と膨張は比例関係にあるが⁵⁾、より強い促進条件では急速に ASG は生成するものの、一定量が膨張に寄与することなく試験体外に移行すると考えられる。

表 1.4-38 NT-温度-3.0 の不織布に溶出した成分 (mmol)

温度(°C)	Si	Ca	アルカリ	ASG*
60	37.0	25	19	6.3
40	25.5	11	27	4.5
20	15.4	9	19	3.0

*)ASG は含水率 50%と仮定(g/不織布)

従来、CPT では 40°C で膨張が最大となる温度ペシマム現象が報告されている⁶⁾。NT の結果³⁾を図 1.4-61 に示す。アルカリ濃度と材齢により温度ペシマムは変化する。TY 骨材には多くの条件で温度ペシマムは認められたがその他の骨材では認められておらず、骨材種類にも依存する。

ASR 膨張の限界アルカリ濃度は、IW で求めることができたが、他の場合には試験の範囲で、アルカリ濃度依存性が明確ではなかった。NT と TY では、60°C のみでアルカリ濃度依存性は明瞭であった。

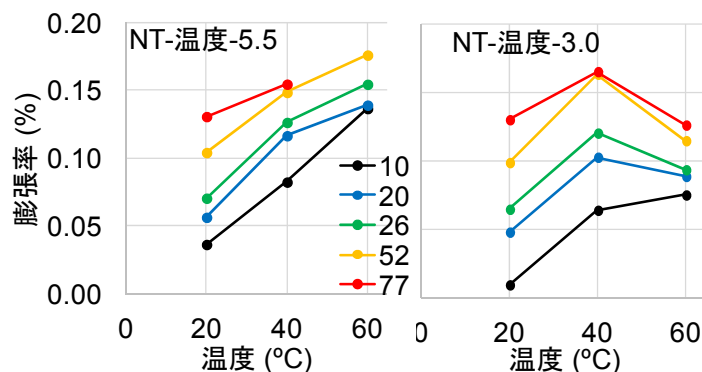


図 1.4-61 膨張の温度依存性

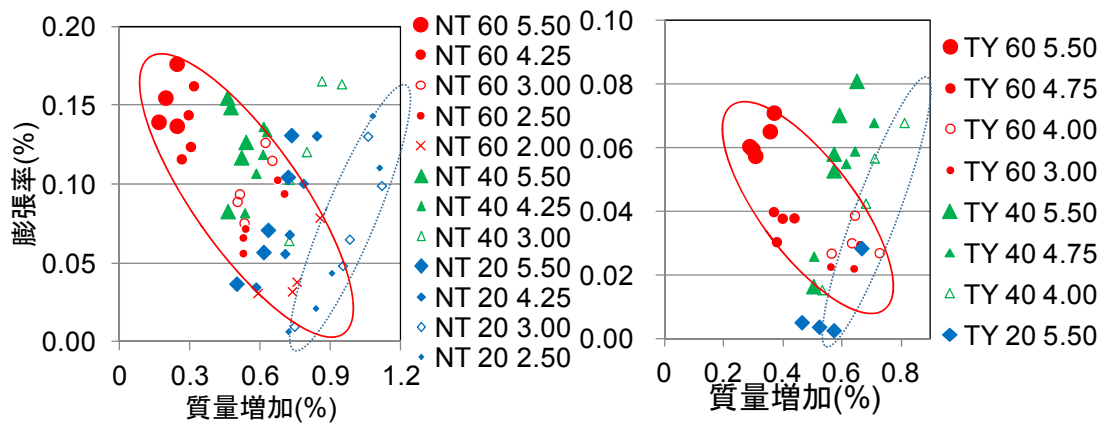


図 1.4-62 質量増加と膨張率の関係

図 1.4-62 に質量増加と膨張率の関係を示す。60℃でアルカリ濃度が変化すると、負の相関を示す。高アルカリ濃度では質量増加が小さいが高膨張率となる。弱い促進条件では、NT-20-2.50 のように膨張開始までの質量増加が大きく、その後、質量増加とともに膨張率が急に増加する。強い促進条件ではより多くの ASG が生成しているはずだが、質量増加が少ない。これは ASG が系外に失われ、膨張に寄与しないことを示唆する。他の骨材でも同様で、高反応性骨材を強い促進条件におくと、質量増加が少ないにもかかわらず膨張率は高くなった。

実構造物ではこのような ASG の流失は少ないと想定でき、骨材の反応性により適切な促進条件を設定し、反応性が高い場合には緩やかにする必要がある。例えば、促進 1 年で膨張率 0.1% となるような促進条件の設定が望ましいかもしれない。過度の促進は ASG の存在状態を変え、力学的特性にも影響している可能性がある。

参考文献

- 1) 山田一夫ほか：原子力施設におけるアルカリ骨材反応の一考察、セメント・コンクリート論文集、Vol.68、pp. 457-464, 2014
- 2) K. Yamada, et al.: Importance of alkali-wrapping in concrete prism tests, 15th Int. Conf. on Alkali Aggregate Reaction(投稿中)
- 3) K. Yamada, et al.: The exact effects of temperature increase and alkali boosting in CPT with alkali-wrapping, ibid (投稿中)
- 4) Y. Kawabata, et al.: Correlation between laboratory expansion and field expansion of concrete: prediction based on modified concrete expansion test, ibid (投稿中)
- 5) G. Igarashi, et al.: Image analysis of alkali-aggregate gel in concrete prism test with alkali-wrapping, ibid (投稿中)
- 6) アルカリ骨材反応被害構造物（土木）の補修・補強指針（案）、コンクリートの耐久性向上技術の開発（土木構造物に関する研究成果）、建設省総合技術開発プロジェクト報告書、(財)土木研究センター、pp.221-289, 1989

謝辞：本項は九州大学佐川康貴准教授との共同研究によるものである。

(2) 環境条件を考慮したコンクリートのアルカリシリカ反応の定量予測

1) はじめに

前項で述べたコンクリートの ASR に関する試験は性能評価の可能性を開くものである。ここでは、AW-CPT を用い、曝露試験体の膨張予測を行う。CPT では、十分な水分を供給し、アルカリ量と温度を増加することで、ASR を促進する。したがって、これらの因子を現実の使用環境に修正することが求められる。ここでは、AW-CPT の結果をもとに同様のコンクリートの 5 年間にわたる暴露試験の膨張挙動について、環境条件を考慮することで再現する。

2) 従来の CPT と AW-CPT の膨張の差

図 1.4-63 に従来の CPT によるコンクリート試験体(75×75×250 mm)の膨張試験結果を示す。アルカリ総量は 3.1kg/m³ である。このコンクリートは底部に水を含むステンレス製の密閉容器に保管され、湿潤雰囲気は保たれている。膨張は一定期間以降飽和に達している。同じ試験体を、AW-CPT により養生した結果を図 1.4-64 に示す。膨張は飽和に達することなく、従来の CPT とは全く異なる挙動を示す。この差が、試験中におけるアルカリの溶脱と湿分供給の影響である。ここでは、AW-CPT の結果をもとに、曝露試験の膨張挙動の再現を試みる。

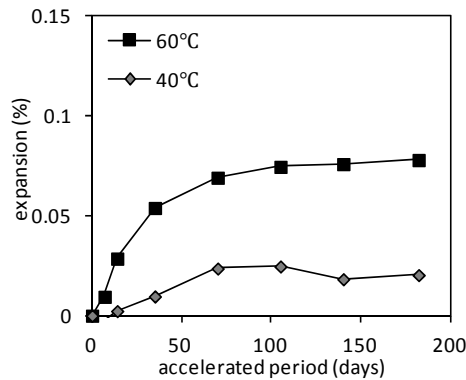


図 1.4-63 従来のラッピングのない CPT によるコンクリートの膨張

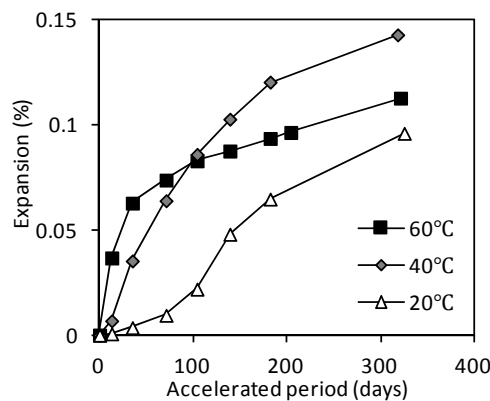


図 1.4-64 AW-CPT によるコンクリートの膨張

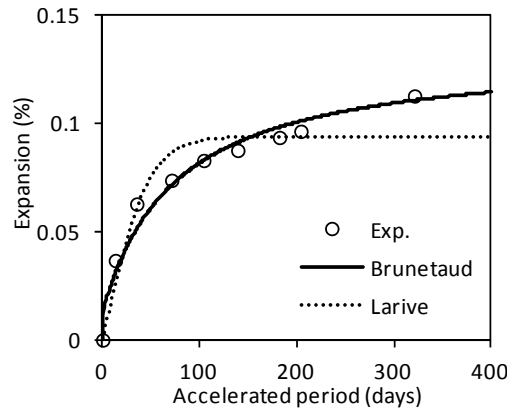


図 1.4-65 式(1)と(2)による ASR 膨張のフィッティング

3) ASR 膨張の温度依存性のモデル化

AW-CPT では温度ごとに複雑な挙動を示す。この挙動を再現するために、式(1)¹⁾、(2)²⁾によるフィッティングを試みる。

$$\varepsilon_t = \varepsilon_\infty \frac{1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_C}\right)}{1 + \exp\left\{-\frac{(t - \tau_L)}{\tau_C}\right\}} \quad (1)$$

$$\varepsilon_t = \varepsilon_\infty \frac{1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_C}\right)}{1 + \exp\left\{-\frac{(t - \tau_L)}{\tau_C}\right\}} \left(1 + \frac{\phi}{t + \delta}\right) \quad (2)$$

ここに、 t : 時間(日)、 ε_t : 時間 t における膨張(%), ε_∞ : 終局膨張(%), τ_C : 特性時間(日), τ_L : 遅延時間、および ϕ , δ : 経験定数(日)である。

図 1.4-65 にフィッティング結果を示す。式(1)では膨張を過小評価しているが、式(2)では長期にわたり良好な結果が得られている。

式(2)に含まれる各パラメータのフィッティング結果を、絶対温度の逆数に対して示したものを図 1.4-66 に示す。各パラメータの対数は、絶対温度の逆数と性の相関を示す。したがって、各パラメータはアレニウス則に従うとみなせる。

$$\frac{X(T_1)}{X(T_2)} = \exp\left[\frac{U_X}{R} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)\right] \quad (3)$$

ここで、 X と U_X はそれぞれ各パラメータと活性化エネルギー、 R は気体定数 $8.314 \text{ [J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}]$ 、 T_1 は対象環境の絶対温度[K]、 T_2 は実験の絶対温度[K]。各活性化エネルギーは以下のとおり。 $U_{\varepsilon_\infty} = 24.0 \text{ [kJ mol}^{-1}]$, $U_C = 82.6 \text{ [kJ mol}^{-1}]$, $U_L = 191.8 \text{ [kJ mol}^{-1}]$, $U_\delta = 63.6 \text{ [kJ mol}^{-1}]$, $U_\phi = 63.5 \text{ [kJ mol}^{-1}]$ 。

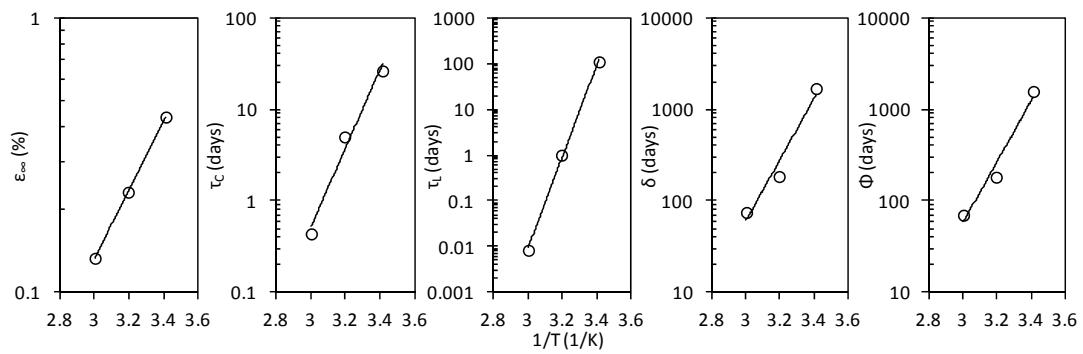
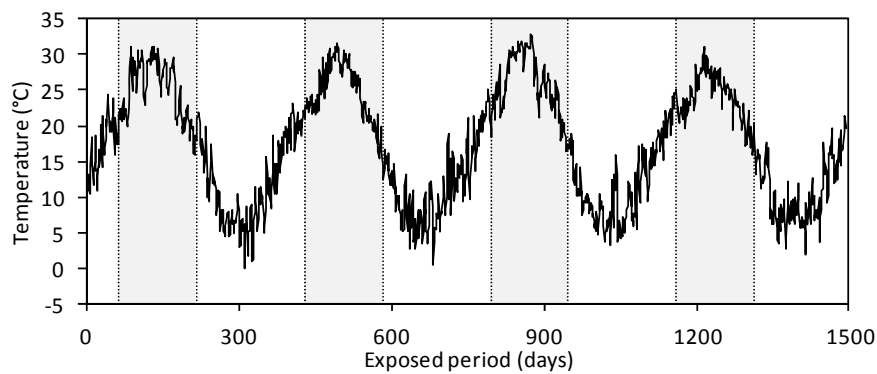
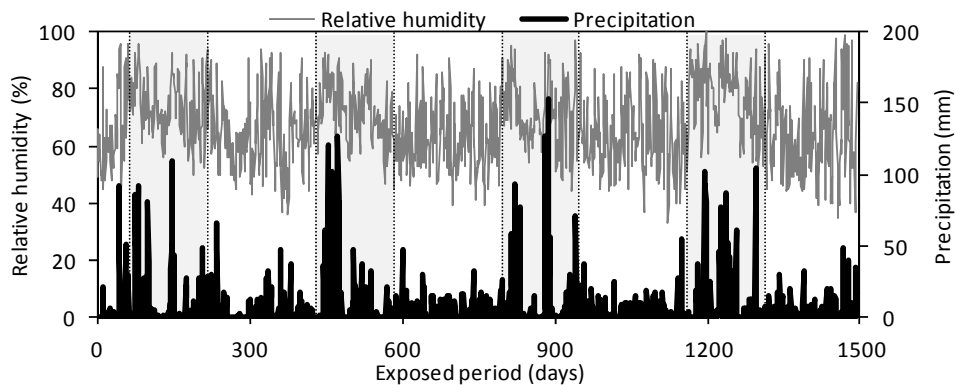


図 1.4-66 式 (2) の各パラメータの温度依存性



(a) 気温



(b) 相対湿度と降水量

図 1.4-67 暴露地の気象条件

4) 曝露コンクリートブロック

AW-CPTと同じ骨材を用いたアルカリ総量 3.0kg/m^3 のコンクリートブロックの膨張試験を九州大学にて実施している。試験体の寸法は $400\times 400\times 600\text{mm}$ である。図 1.4-67 に近辺の気象庁による気象データを示す。福岡の年平均気温は 17°C 、降水量は 1612.3mm である。灰色で示した夏季は高温多湿で ASR が進行しやすい。膨張挙動を図 1.4-68 に示す。300 日までの促進試験では 0.15% に届かないが、3 年で 0.2% を超えており、ここでも室内試験よりも屋外暴露が ASR 膨張が大きくなる傾向が確認できる。

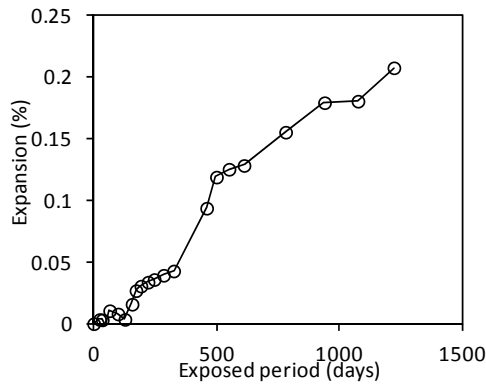


図 1.4-68 暴露コンクリートブロックの膨張挙動

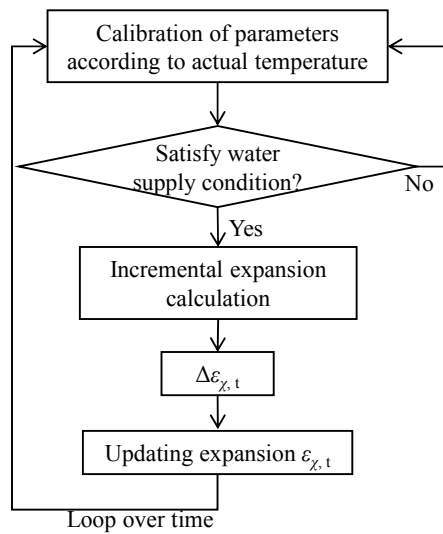


図 1.4-69 計算手順のフロー

5) 計算条件

膨張予測計算では以下の仮定を置いた。

- ・コンクリートの温度は環境温度と同一
- ・乾燥収縮は無視
- ・コンクリートブロック中の湿分は均一
- ・アルカリの環境とのやり取りは無

水分供給については後述する複数のモデルにより行う。計算は1500日まで、時間間隔(Δt)1日で行った。計算手順を図1.4-69に示す。時間ステップごとに実際の温度となるようにアレニウス則に従い各パラメータを補正し計算する。

ASRは相対湿度に敏感な反応である。図1.4-70に相対湿度依存性を示す。図から膨張が強く相対湿度に影響されていることは分かるが、研究者により相当に異なる結果が示されており、定量化することは難しい。さらに、相対湿度のみでなく、降水の影響が相対的にどう影響するかの情報はない。従来のCPTとAW-CPTの差は、降水の有無の差ともいえるが、両者の挙動は全く異なり、水分供給の差異をモデル化するのは容易ではない。

そこでここでは、AW-CPTの膨張挙動を降水により以下のようにモデル化した。

- Calc.(1)：毎日膨張（悲観的ケース）
- Calc.(2)：3mm以上の降水時に膨張（楽観的ケース）
- Calc.(3)：すべての降水があった日に膨張
- Calc.(4)：すべての降水とその翌日に膨張
- CPT Calc(1)：従来のCPTによる膨張を用い毎日膨張

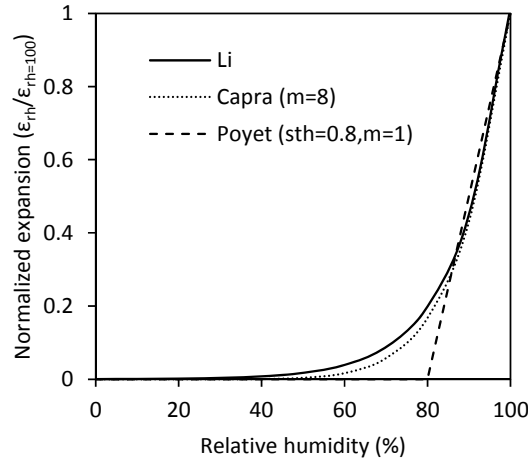
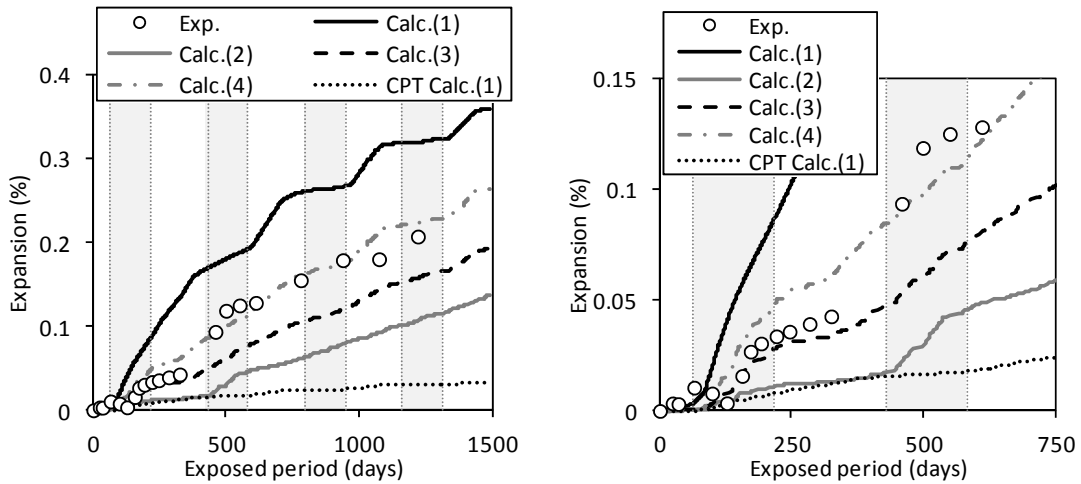


図 1.4-70 相対湿度と規準化した膨張



(a) 全体結果 (0-1500 日)

(b) 750 日までの拡大

図 1.4-71 ASR 膨張の再現計算結果

6) 計算結果

計算結果を実験結果とともに図 1.4-71 に示す。従来の CPT の膨張データを用いると毎日膨張するとしても極めて過小評価しかできないことが分かる。従来、室内試験と現場の膨張に差があるとしてきた一つの理由は、室内試験における湿分供給の不足であると考えられる。

Calc.(1)は、1200 日で実験の 1.5 倍の膨張となる。これは乾燥影響があることを示唆している。一方、Calc.(2)は、実験の半分である。降水日だけを考えることは不足である。Calc.(3)は 350 日まで整合的で、その後 1200 日までは Calc.(4)がフィットした。この差は、膨張率が 0.05%程度で起きている。この膨張率はコンクリートにひび割れが発生する限界値であり、ひび割れが発生し

た後は、試験体内部に水分が染み込みやすく、降雨の影響をより長い空いた受けたことがこの差を生じたものと推定できる。

このように AW-CPT は試験条件として安定で、性能試験として ASR 膨張の長期予測に適用できるものであることが分かった。より長期にわたる試験を継続する必要がある、また、異なる材料、配合、暴露条件での挙動確認がモデルのさらなる高精度化に必要である。

謝辞：本項は、海上・港湾・航空技術研究所川端雄一郎博士の協力の元に実施した。

参考文献

- 1) Larive, C.: Apports Combinés de l'Experimentation et de la Modelisation à la Comprehension de l'Alcali Reaction et de ses Effets Mecaniques, Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (in French) (1998)
- 2) Brunetaud, X., Divet, L., and Damidot, D.: Delayed ettringite formation: Suggestion of a global mechanism in order to link previous hypotheses. In SP-222, A. I., editor, 7th CANMET/ACI International Conference on Recent Advances in Concrete Technology, pp. 63-76, 2004

(3) 蛍光発色によるアルカリシリカ反応の定量的検出

1) はじめに

ASR の試験、試験による膨張予測について述べてきたが、維持管理上は、ASR の発生ともし ASR が認められるならばその進展状況の理解が重要である。ASR の診断には研磨薄片による偏光顕微鏡観察やアルカリシリカゲル(ASG)の SEM/EDS 分析が必要である。しかし、これらは一定の労力と分析技能を要するうえに、定量的情報を得にくい。一方、簡易に ASG の存在を検出できる方法として、ある蛍光試薬を用いた紫外光による観察が提案されている^{1,2)}。

ここではこの手法を高度化し、観察のための前処理条件を最適化し、画像解析を用いることで ASG の定量分析を試みる。さらに AW-CPT の膨張試験結果との相関を調べる。

2) 前処理条件の最適化

ASG はコンクリート中の骨材内部に蓄積されている。コンクリートを切断すると、水では ASG は洗い流されるが、膨張圧を持って骨材内部に蓄積されているため、一定時間後に切断表面に現れてくる。このプロセスの時間を適正化することで、ASG の定量評価が可能となった。また、観察目的により前処理プロセスと変化させることが可能となった。表 1.4-39 に前処理プロセスと観察内容の関係を示す。

3) 画像解析条件

前処理条件を統一し 254nm の紫外光下で撮影した画像は、色度と明度により ASG、セメントペースト、骨材に判別できる。図 1.4-72 に条件設定の概念図を示す。また、図 1.4-73 に条件設定により判別した例を示す。

図 1.4-74 には湿式切断後、湿潤条件下に保管した期間と ASG 滲出率との関係を示す。一定期間後に飽和することが分かる。この際の進出状況の詳細を図 1.4-75 に示す。研磨直後に蛍光発色はなく、ASG が洗い流されたことが分かる。一定期間経過後、蛍光は骨材内部から発生するようになり、ASG の発生個所が骨材内部であることが分かる。

表 1.4-39 蛍光観察資料の前処理条件と観察される内容

切断	研磨	保管	観察内容
破断	無	直後	ゲルの分布
乾式	有・無	直後	ゲルの分布
		湿気箱・水ラップ	骨材内のゲル量
油式	有・無	直後	ゲルの分布
		湿気箱・水ラップ	骨材内のゲル量
水式	有・無	湿気箱・水ラップ	骨材内のゲル量

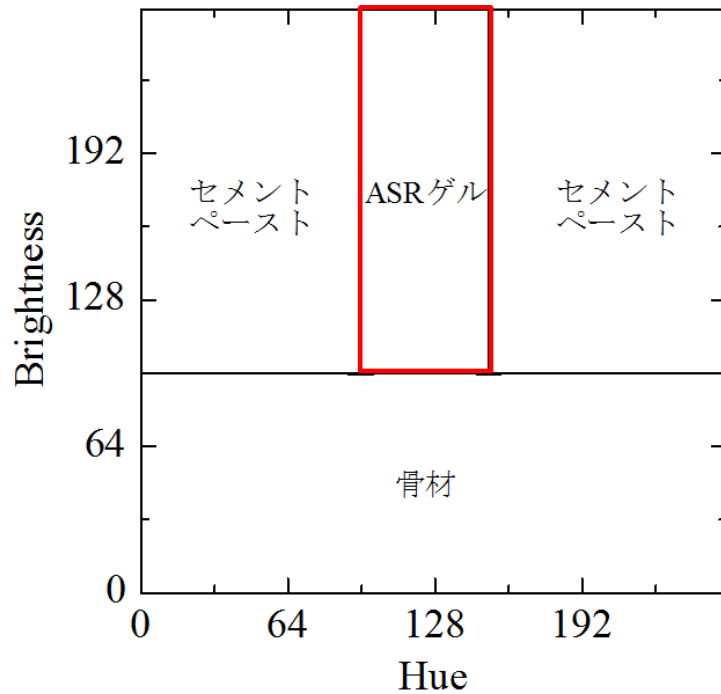
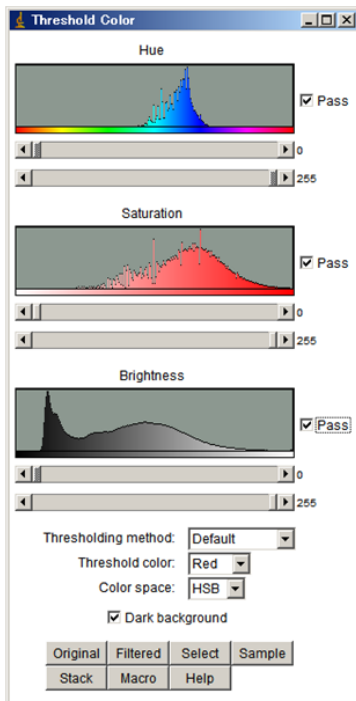


図 1.4-72 画像解析条件

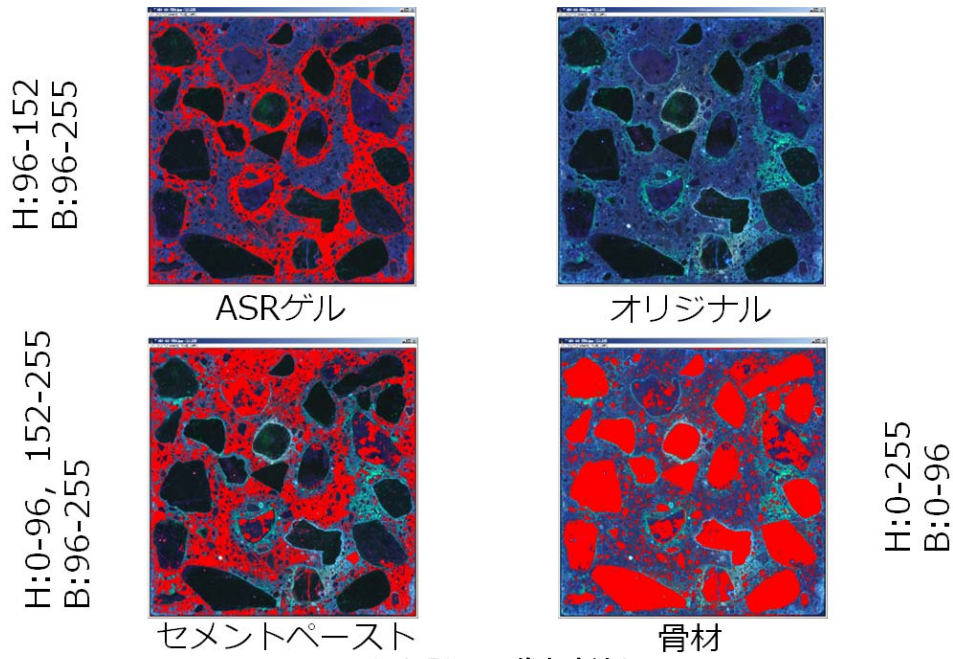


図 1.4-73 画像解析例

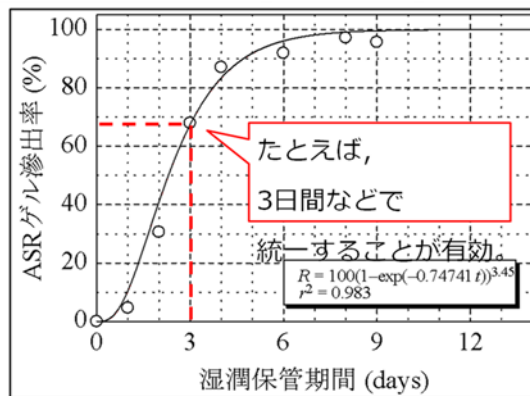
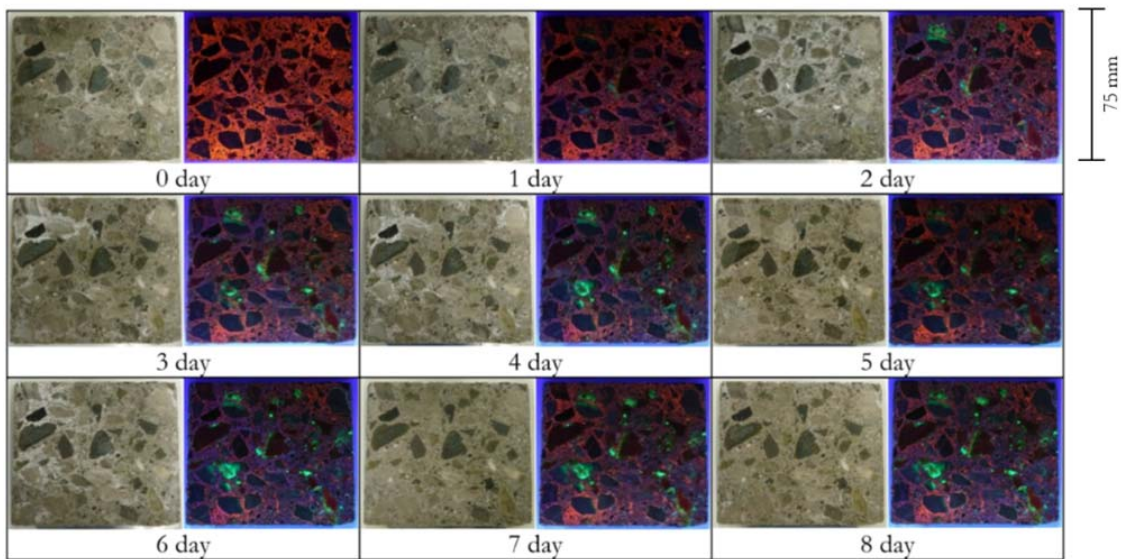
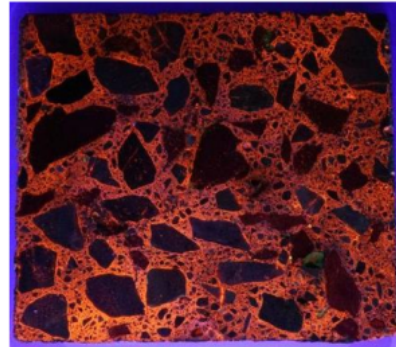


図 1.4-74 湿潤保管期間と ASG 滲出率

研磨直後（0日目）



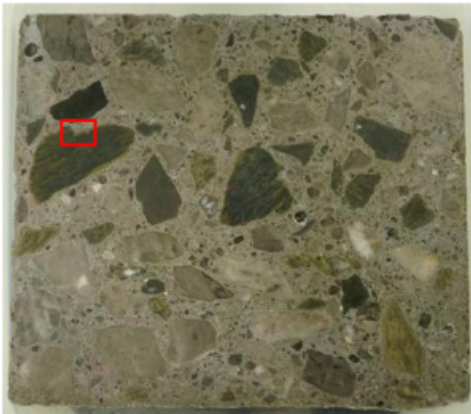
可視光源



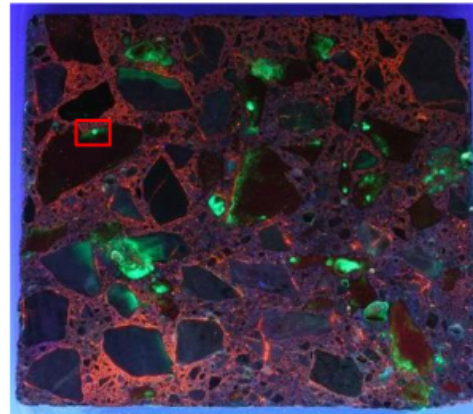
UV光源

湿式工程により研磨面のASRゲルはすべて脱落。

湿気箱保管（7日目）



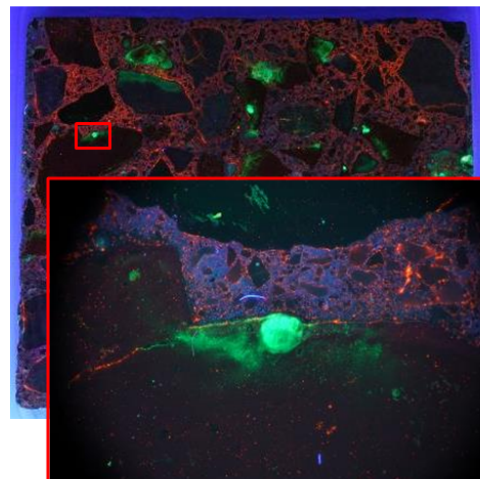
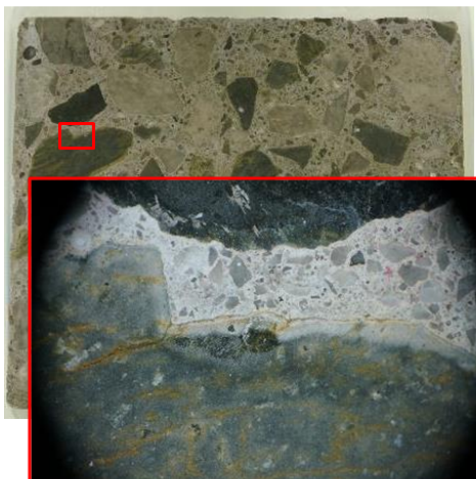
可視光源



UV光源

反応性骨材からASRゲルが滲出。

湿気箱保管（7日目）



反応性骨材からASRゲルが滲出。

図 1. 4-75 ASG の滲出

4) 膨張率との関連

図 1.4-60 の試験体を材齢 45 週で促進試験を中断し、ASG 分析を実施した。骨材 TY に関する ASG の観察結果の例を図 1.4-76 に示す。画像のイメージで ASG の量の違いは認識できる。図 1.4-77 に蛍光面積と膨張率の関係を示す。図 1.4-60 は温度とアルカリ総量の違いにより複雑な膨張挙動を示していたが、膨張率は ASG の量におおよそ支配されていることが分かる。このことは、実構造物からのコンクリートコアにおける ASG 量の評価から、そのコンクリートがどの程度膨張したかを推定できる可能性があることを示している。一般に、構造物の ASR は、ひび割れの有無でまずは検出され、ASR ゲルの存在が偏光顕微鏡観察などで確認される。しかし、ASR で分かったとしてもその構造物がどの程度の膨張を示したのかを推定する手法は主にはひび割れ密度による方法のみであったが、蛍光観察による ASG 定量化が膨張率推定に役立つ可能性があることが分かった。

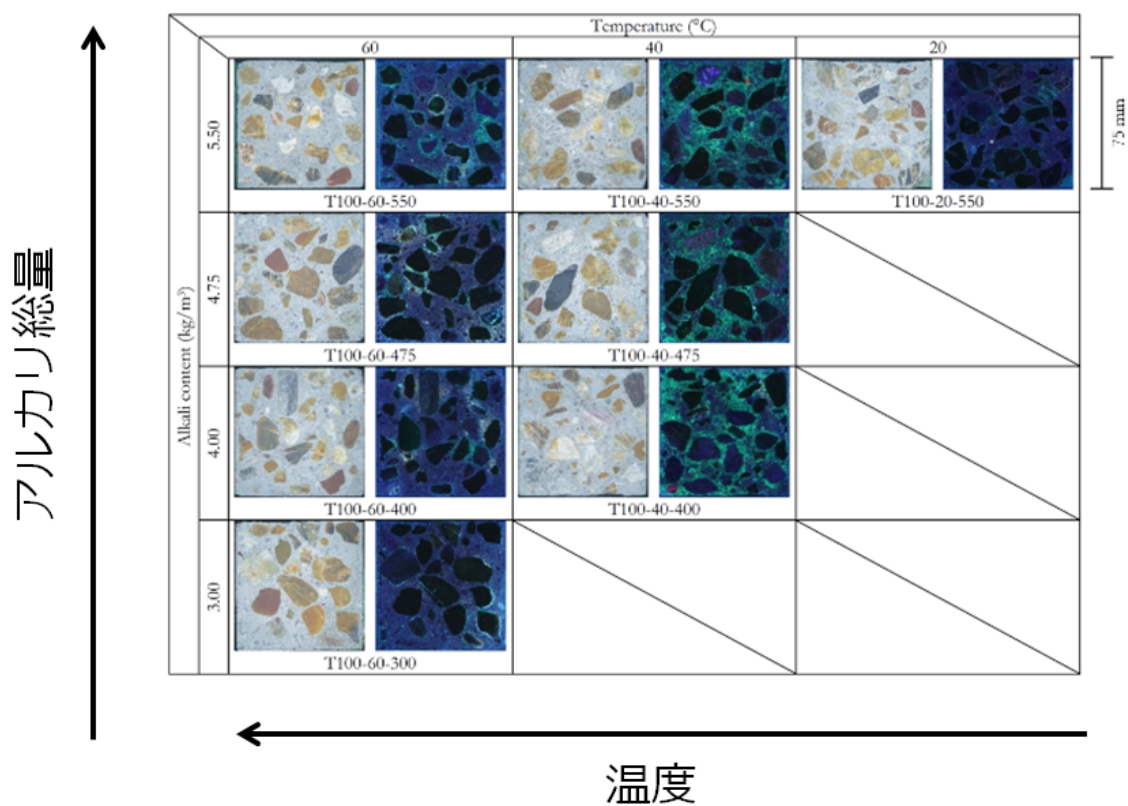


図 1.4-76 アルカリ総量と温度が異なる CPT 後の ASG 観察例

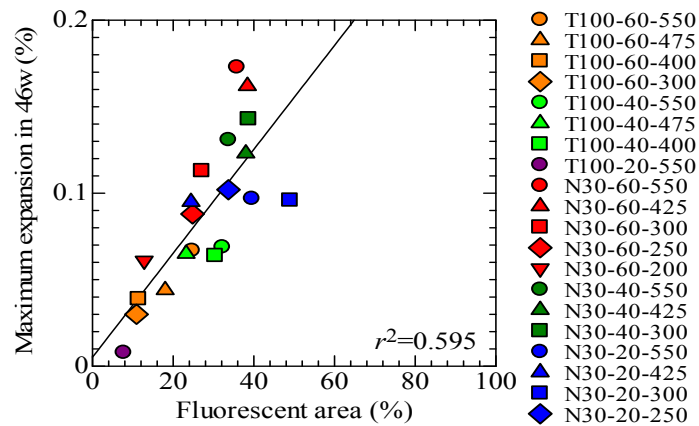


図 1.4-77 蛍光面積と膨張率の関係

謝辞：本項は、東北大学大学院五十嵐豪助教の協力の元を実施した。

参考文献

- 1) K. Natesaiyer and K. Hover: Insitu identification of ASR products in concrete, Cement and Concrete Research, Vol.18, No.3, pp.455-463 (1988)
- 2) C. Sanno et al: Development of simple method of ASR diagnosis by gel fluorescence method, Proc. Annual Conf. of JCI, Vol.35, No.1, pp.973-978 (2013)

1.4.6 コンクリート技術適用のまとめ

放射性 Cs により汚染された廃棄物の処理・処分にコンクリート技術を応用するための各種の基礎研究を実施した。

(1) コンクリートへの Cs の移動予測

コンクリート施設へ廃棄物を処分する際には、主な処分対象物である焼却飛灰とコンクリートの相互作用を理解する必要がある。Cs の移動は健全な状態のコンクリートがあることが大前提で、まずは、そのために、焼却飛灰とコンクリートとの相互作用を考え、その後、Cs の浸透予測を行った。

焼却飛灰には、高濃度の CaCl₂ と石膏が含有され、焼却飛灰とコンクリートが直接接すると、膨張性の鉱物が生成し、コンクリートが膨張破壊することを示された。この対策として、石炭火力発電所から排出される石炭灰を適切に使用することが良い。この現象をさらに熱力学的相平衡モデルを活用し、鉱物相の深さ方向の変化を再現した。この際、コンクリートの主要結像層であるケイ酸カルシウム水和物(C-S-H)にアルミニウムが固溶する現象をモデル化し、かつ、Al 固溶型の C-S-H とアルカリイオンとの相互作用も定量評価できるようにした。

コンクリートへの元素の浸透解析には、イオンが移動する液相と移動を抑制する固相との相互作用に加えて、コンクリートの空隙構造の情報が必要である。本来は拡散試験により評価するが時間短縮のために電場を作用させた電気泳動法が適用されることが多い。そこで、電気泳動法をコンクリートに適用した場合に起きている電気化学的現象について基礎検討を加えた。その結果、

イオン電導だけではなく、セメント水和物がイオン交換網として作用することによるイオン電導の影響が強く、電気泳動法の試験結果の解釈には難しいものがあり、やはりコンクリートの構造評価には拡散試験によることが妥当であるという結論を得た。

Cs の浸透抑制には石炭灰の利用が有効であるが、この分野での研究を改めて整理した。

(2) 焼却飛灰とコンクリートの相互作用

焼却飛灰とコンクリートの相互作用を理解するうえで、まずは、問題となる CaCl_2 の存在形態について検討を加えた。焼却中に発生しているのが、 CaCl_2 なのか、 CaClOH なのか、事後の分析では CaClOH のみが検出されるが、それが飛灰を分析するまでの処理条件による影響である可能性もあり、基本的な CaCl_2 と CaClOH の生成条件について理解を深めた。結論として、吸湿や液相組成への影響を考えると両者には何ら違いはない。

CaCl_2 によるコンクリートの乾燥による収縮を飛灰へ、スライスし、積み重ねたコンクリート円盤の試験体を暴露することで検討した。定量的データを得られたので、今後はこの情報をコンクリート構造物の乾燥収縮による変形へ活用することが重要である。

CaCl_2 が吸湿すると最終的には濃厚 CaCl 溶液の液相が発生する。この際、コンクリートに発生する現象を模擬溶液への浸漬試験により調べた。試験は普通セメントコンクリートと石炭灰を利用した対策コンクリートで実施し、対策コンクリートが有効な抑制策となることを示した。普通セメントコンクリートでは、表面近傍数mmに表面と平行なひび割れが膨張性鉱物の生成により発生したが、対策コンクリートではこの現象は認められなかった。

(3) 焼却飛灰のセメント固型化

福島県内の指定廃棄物はセメント固型化されるが、長期的安定性の検討が重要である。管理型処分場は、可溶性塩を流失させた後に廃止される。放射性 Cs の溶出速度を抑制するために、汚染廃棄物処分においては水の通過を遅延させるキャッピングなどが施される。試験では、 CaCl_2 などの可溶性成分が流失した後の、石膏とセメントの反応による膨張性鉱物の生成が問題となることを想定し、焼却飛灰のセメント固型化体の溶出試験に合わせて、膨張測定を行った。この際、膨張圧を計測するために穴あきの拘束体を用いた試験も実施した。

可溶性成分の流失とともに、膨張挙動が確認された。膨張は、低強度の普通セメントと高炉セメントによる固型化体で顕著であり、強度を高め、かつフライアッシュを添加することで抑制できることが示された。膨張圧は数 MPa に達すると予想され、対策を施さない限り、数 10 年後かもしれないが、長期的には埋設処分した地盤が隆起する可能性がある。

この膨張現象も基本的な相平衡モデルで予測できる。計算の結果、固相の膨張率が定量評価できた。今後はこの結果をより長期に適用し、膨張試験結果とも整合化するのか検証が必要である。

セメント固型化体は、焼却飛灰を水が通過する速度を劇的に減少させることが目的であり、セメント固型化が Cs を固定化する作用はほとんどない。しかし、何らかの Cs 固定化剤を添加すれば、流水速度の低下だけではなく、Cs の移動そのものを制限できる。セメント固型化体は高アルカリ雰囲気となるので、アルカリ耐性がないプルシアンブルーは使用できないが、フェロシアン化鉄の鉄をニッケル置換することで耐アルカリ性は飛躍的に高まることが分かっている。ここではさらにフェロシアン化ニッケルの耐アルカリ性を高める手法を開発した。フェロシアン化ニッケルは Cs を吸着することで安定化し、耐アルカリ性が高まる。Cs 吸着と耐アルカリ性は矛盾する機構であるが、部分的な Cs 吸着で実用性のある耐アルカリ性のフェロシアン化物は合成でき

ることが分かった。さらにこのフェロシアン化ニッケルの Cs による構造安定化を量子力学計算でも実証した。

(4)コンクリートのアルカリシリカ反応の抑制

アルカリシリカ反応の抑制は JIS の方法では限界があるため、より慎重な対応が求められる放射性廃棄物処分施設の建設や長期保管容器の作成を念頭に ASR の試験方法の最適化とその結果による膨張予測を実施した。

ASR 膨張の試験と現場曝露には大きな差があることが従来の研究で指摘されてきたが、この差をアルカリ溶出と水分供給不足に帰結できる可能性があることを指摘し、これを克服する方法としてアルカリ溶液で湿らせた布で試験体を梱包するアルカリラッピング法を提案し、その影響を定量評価した。さらにこの結果をある膨張モデル式にフィッティングさせ、温湿度、及び降雨の環境影響を考慮し、1500 日までの曝露試験での膨張を再現できた。この結果、降水の影響を適切に評価することが重要であることが分かった。

ASR の関する維持管理を考えると ASR により生じるアルカリシリカゲルの定量評価が望まれる。蛍光物質を用いた観察手法について、観察して鑄物が何であるかの検討を深め、試料の前処理条件を最適化することで、ASG の定量が可能となった。ASG の発生量が膨張率とも一定の相関を示し、構造物の劣化診断へ適用できる可能性を示した。

1.5 保管・貯蔵・最終処分技術

1.5.1 埋立等の設計に向けた条件パラメータの設定に関する研究

(1)はじめに

放射性物質に汚染された廃棄物の焼却灰は、その濃度によって埋立処分の方法が異なるものの、放射性物質の拡散防止対策としての土壌吸着層の設置が義務付けられており、その性能評価は重要である。処分場内の環境を想定し、放射性セシウムに対する土壌や吸着剤等の吸着特性を把握するため、実際に放射性セシウム（Cs）に汚染された焼却飛灰から作製した浸出水4種類を供与液として、約20種類の試料（標準砂・粘性土・現地土壌・ゼオライト・焼却灰・津波堆積物等）について分配係数を示すとともに、その分配係数に及ぼす共存イオンの影響を調査した。なお、共存イオンについては総合的な判断として電気伝導率を用いて表現した。

(2)実験方法

東日本にある4種類の焼却施設から焼却飛灰を採取し、液固比5の条件で飛灰溶出液を作製した。作製した4つの溶出液を便宜上A、B、C、Dと命名し、それぞれについて適宜希釈または濃縮を行い、異なる濃度レベルの液体を作製しそれらを吸着試験用の供与液として用いた。表1.5-1に飛灰溶出液の化学組成を示す。また、写真1.5-1は埋立層の間隙水を模擬するために溶出液を液固比0.5相当にまで濃縮した液体である。

吸着試験に用いた試料は標準砂、ゼオライト、粘性土、廃棄物埋立地から採取した覆土材、焼却主灰、津波堆積物等である。使用した試料の物性一覧を表1.5-2に示す。また、鉍物組成については、PANalytical社製のX'Pert PROを用いてX線回折法に基づいて同定した結果を表1.5-3に示す。所定質量の試料を500 mL容のポリスチレン容器に入れ、作製した供与液300 mLを加えた。その後、24時間の120 rpm水平振とうを行った後、容器内に入れた供与液を孔径0.45 μmのメンブランフィルタで濾過し、その濃度を放射性セシウムではゲルマニウム半導体検出器、安定セシウムではICP-MSを用いて測定した。

表 1.5-1 液固比5で作製した飛灰溶出液の化学組成

	単位	溶出液 A	溶出液 B	溶出液 C	溶出液 D
pH		12.1	12.8	11.1	11.3
電気伝導率	mS/m	4,200	10,000	6,840	3,100
放射性 Cs134	Bq/L	712	610	1,200	90
放射性 Cs137	Bq/L	814	730	2,100	140
安定 Cs	mg/L	0.3	0.52	0.77	0.33
安定 Sr	mg/L	(未測定)	6.78	3.22	4.34
Na	mg/L	3,040	8,430	9,250	4,240
K	mg/L	5,500	9,590	13,100	5,100
Mg	mg/L	<0.5	<0.05	0.58	<1.0
Ca	mg/L	2,500	5,280	900	510



(a) 溶出液 B



(b) 溶出液 C



(c) 溶出液 D

写真 1.5-1 液固比 0.5 まで濃縮した飛灰溶出液

表 1.5-2 吸着試験に使用した試料の物性一覧

試料名	土粒子 密度 (kg/m ³)	含水比 (%)	強熱 減量 (%)	粒度分布				比表面積 (m ² /g)	CEC (cmol/kg)
				礫分 (%)	砂分 (%)	シルト分 (%)	粘土分 (%)		
珪砂 5 号	2,670	0.00	0.24	0.0	100.0	0.0	0.0	1.5	0.7
真砂土	2,640	0.01	1.34	53.0	39.8	—	—	2.9	4.1
川砂	2,610	11.45	—	22.8	65.2	—	—	15.7	9.1
山砂	2,770	2.84	2.52	40.0	49.2	8.1	2.7	—	8.3
処分場覆土 ST	2,620	0.11	1.68	41.0	38.9	—	—	6.1	6.3
処分場覆土 MY	2,630	22.22	1.98	1.9	96.1	—	—	18.1	13.2
処分場覆土 OS	2,670	0.90	2.96	66.1	25.6	—	—	—	9
処分場覆土 SN	2,680	14.37	5.02	20.0	51.1	21.8	7.1	—	11.1
カオリナイト	2,690	0.23	3.25	0.0	0.0	66.9	33.1	7.2	3.2
関東ローム	2,510	120.82	19.39	0.0	6.3	82.1	11.6	360.9	30.9
ベントナイト	2,900	6.98	5.03	0.0	19.4	67.1	13.6	42.6	58.2
建設発生土 TA	2,580	74.63	9.09	17.6	64.9	—	—	—	49.8
建設発生土 TB	2,630	69.98	8.47	0.4	92.5	—	—	—	21.4
建設発生土 TC	2,580	53.78	9.80	26.4	57.7	—	—	—	37.2
津波堆積物 IW	2,550	33.80	19.15	25.8	37.4	27.4	9.4	—	9.6
津波堆積物 SN	2,570	29.91	20.19	17.7	52.2	22.6	7.5	8.8	5.48
焼却主灰 JS	2,650	34.63	—	69.9	19.6	8.3	2.2	4.1	19.7
焼却主灰 KW	2,690	40.55	18.75	26.0	53.0	15.0	6.0	4.7	20.8
鉄鋼スラグ	3,270	9.88	4.17	76.0	23.4	—	—	—	8.2
クリノプチロライト	2,440	3.14	3.12	9.9	65.5	18.5	6.1	4.7	67.9
顆粒モルデナイト	2,310	0.05	1.11	100.0	0.0	0.0	0.0	159.3	140
粉末モルデナイト	2,380	0.06	1.57	0.0	20.3	62.5	17.2	104.1	130

表中の—は未測定を示す。また、CEC は陽イオン交換容量のこと。

表 1.5-3 X線回折法によって同定された鉱物

試料名	検出された鉱物
珪砂 5 号	石英
真砂土	石英、曹長石、灰長石、正長石
川砂	石英、灰長石、方解石
山砂	石英、曹長石、灰長石、正長石
処分場覆土 ST	石英、曹長石、灰長石、正長石
処分場覆土 MY	石英、曹長石、灰長石
処分場覆土 OS	石英、曹長石、灰長石、正長石
処分場覆土 SN	(未測定)
カオリナイト	白雲母、石英
関東ローム	石英、磁鉄鉱
ベントナイト	モンモリロナイト、方珪石
建設発生土 TA	石英、曹長石、灰長石、正長石
建設発生土 TB	石英、ハロイサイト
建設発生土 TC	石英、曹長石、灰長石、方解石
津波堆積物 IW	石英、曹長石、灰長石、方解石
津波堆積物 SN	(未測定)
焼却主灰 JS	(未測定)
焼却主灰 KW	(未測定)
鉄鋼スラグ	(未測定)
クリノプチロライト	石英、曹長石、灰長石、正長石、クリノプチロライト
顆粒モルデナイト	灰長石、正長石、モルデナイト
粉末モルデナイト	(未測定)

吸着試験の様子を写真 1.5-2 に示す。吸着前後での濃度変化から次式により吸着量を算出した。

$$S = (c_0 - c_{eq}) \frac{V}{m} \quad (1)$$

S：吸着量（Bq/kg または mg/kg）、 c_0 ：初期濃度（Bq/L または mg/L）、 c_{eq} ：平衡濃度（Bq/L または mg/L）、V：供与液の液量（= 0.3 L）、m：投入した試料の乾燥質量（kg）を表わす。また投入量は、試料の吸着性を考慮してベントナイトやゼオライトの場合で 1-4 g、その他の試料の場合で 30-120 g とし、各試料で 3 水準の投入量で実験を行った。なお、一般的な吸着試験では、試料量を一定にして供与液の濃度レベルを希釈等で変化させて吸着等温線を描き、その傾きから分配係数を算出するが、本検討では、供与液の条件は一定として、吸着材の投入量を変化させる方法を採用した。これは、放射性セシウムの土壌等への吸着性は共存イオン濃度に大きく左右されるためであり、試料量を一定にして供与液の濃度レベルを変化させると、各水準間で共存イオンによる吸着阻害の影響が異なるので、同じ電気伝導率に対する分配係数が算定できなくなるためである。

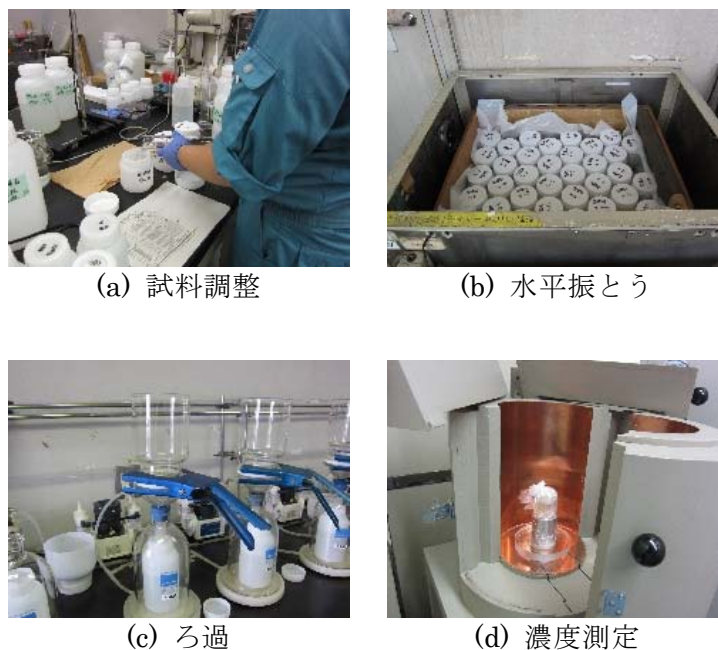


写真 1.5-2 吸着試験の様子

(3) 実験結果

図 1.5-1 に放射性セシウムに対する分配係数の値を示す。供与液には溶出液 A を用いた。珪砂や真砂土、川砂、山砂等の土壌試料の分配係数は $1\sim 20\text{ mL/g}$ であり、またカオリナイト、ローム、ベントナイトの粘性土については $3\sim 30\text{ mL/g}$ であり、砂質系よりも粘性土系試料の方が分配係数は大きくなった。また、吸着材に関しては、鹿沼産ゼオライトはクリノプチロライトを主要鉱物とし、仙台産ゼオライトはモルデナイトを主要鉱物となっている。放射性セシウムに対する吸着能はモルデナイトの方が高く、これは日本原子力学会バックエンド部会が公開している「福島第一原子力発電所内汚染水処理技術のための基礎データ」の知見¹⁾と一致していた。津波堆積物とは東日本大震災時に発生した津波堆積物を 20 mm アンダーに粒度調整したものであり、土壌吸着層の資材としての有効利用の可能性を検討するために吸着性能を把握した。その結果、放射性セシウムに対する分配係数は一般的な土壌とほぼ同程度の値を示した。焼却主灰もまた、土壌とほぼ同程度の分配係数を発揮でき、埋立地内では放射性セシウムの移動を抑制する効果が期待できることがわかった。しかし、津波堆積物や焼却主灰には有機物が多く含まれるため、放射性セシウムが有機物態に吸着されていた場合には、有機物の分解とともに放射性セシウムの再溶出の恐れがある。放射性セシウムを吸着した試料等について逐次抽出試験を行い、放射性セシウムの存在形態を明らかにし、再溶出の可能性を検討することが、今後に必要な研究課題と考えられる。なお、鉄鋼スラグは放射性セシウムに対して吸着性をほとんど示さなかった。

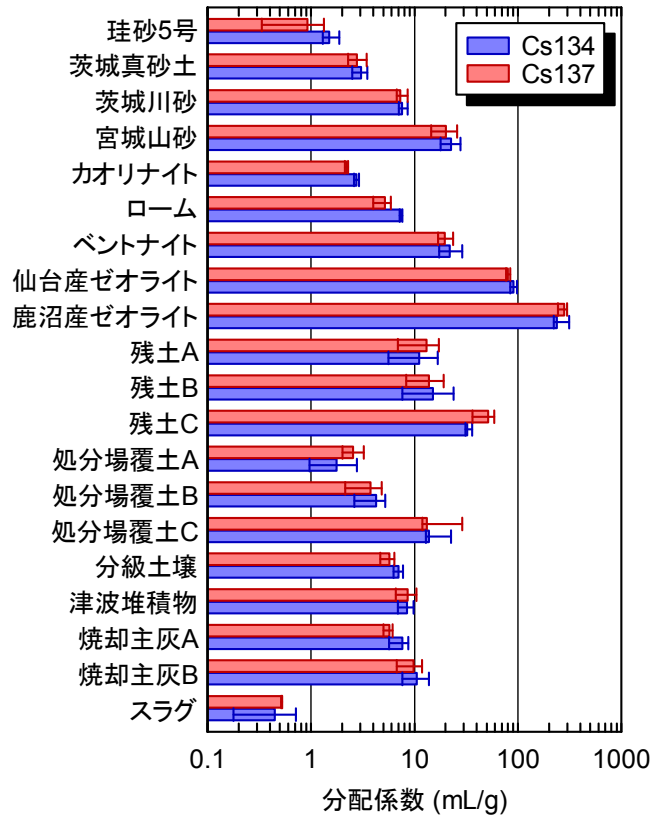


図 1.5-1 電気伝導率 4, 200 mS/m の溶出液 A に含まれる放射性セシウムに対する分配係数

図 1.5-2 は、分配係数に及ぼす供与液の電気伝導率の関係である。茨城真砂土、仙台産ゼオライト、ベントナイトの 3 種類を対象に、溶出液 A-D の希釈物または濃縮物を供与液として、分配係数に及ぼす共存イオン濃度の影響を調べた。共存イオンの濃度を電気伝導率としてみた場合、その増加に伴い分配係数は減少した。飛灰溶出液に関して言えば、電気伝導率が 1 オーダー増加すると分配係数は 1 オーダー低下する影響度であることがわかる。飛灰埋立層（液固比 0.5 相当）を通過した液体の電気伝導率は数万 mS/m にも及ぶと考えられるため、飛灰埋立層直下に敷設された土壤吸着層は、共存イオンの少ない地表面付近の土壤と比較すると、放射性セシウムの吸着・保持を過度に期待できない。埋立地内における放射性セシウムの拡散を抑制するためには、土壤吸着層のみならず、焼却灰への雨水浸透を抑制するための隔離層や溶出を抑制するためのセメント固型化等の技術の組み合わせが重要である。

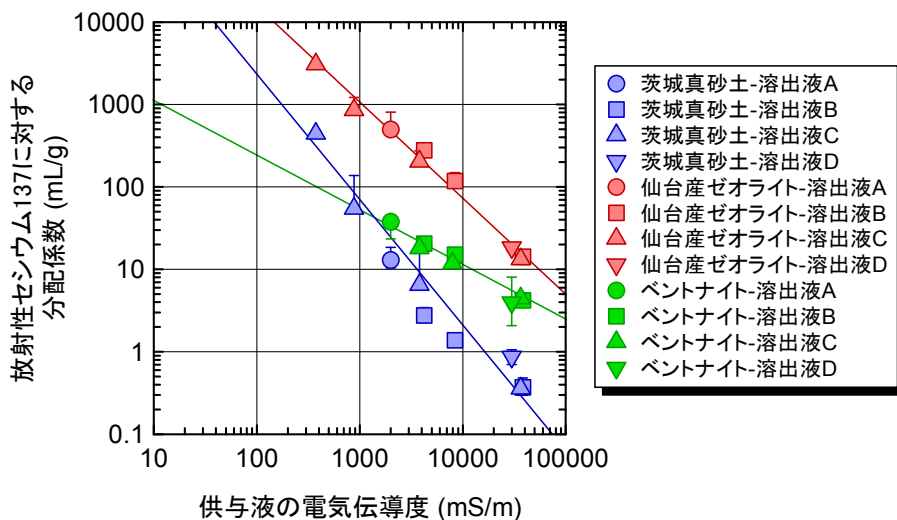


図 1.5-2 放射性セシウム 137 に対する分配係数に及ぼす共存イオン濃度の影響

(4) 結論

本研究では、放射性セシウムに対する土壌等の分配係数に関する知見を拡充するとともに、処分場環境条件下における分配係数に及ぼす共存イオンの影響を調べた。その結果、以下の結論を得た。

- 標準砂、現地土壌、粘性土、ゼオライト、廃棄物埋立地から採取した覆土、焼却主灰、津波堆積物等の約 20 試料の分配係数を把握したところ、砂質系試料 < 粘性土系試料 < 吸着材の順に分配係数は約 1 オーダーずつ高くなった。現地において土壌吸着層に適した試料選定が行えるように、土壌等の吸着性能支配因子を特定するために、今後は分配係数に及ぼす粒度や比表面積、陽イオン交換容量、土壌鉱物組成等との相関を検討する必要がある。
- 焼却主灰や津波堆積物の吸着性能は一般の土壌試料とほぼ同等に期待できるものの、これらの試料には有機物量が多く含まれているため、有機物の分解にともない放射性セシウムが溶出する恐れがある。焼却主灰や津波堆積物への放射性セシウムの吸着形態を明らかにすることも今後の検討課題のひとつである。
- 放射性セシウムに対する土壌等の吸着性能は供与液中の共存イオンによって吸着阻害を受ける。茨城真砂土、仙台産ゼオライト、およびベントナイトでは、供与液に飛灰溶出液を用いた場合、共存イオン濃度が電気伝導率として 1 オーダー増加すると、放射性セシウムに対する分配係数が概ね 1 オーダー低下することがわかった。そのため埋立地内の土壌吸着層の性能評価では、そこに流入する共存イオン濃度を考慮した上で、期待できる吸着量を算出することが重要である。

参考文献

- 1) 日本原子力学会バックエンド部会 (2011)：福島第一原子力発電所内汚染水処理技術のための基礎データ収集, <http://www.nuce-aesj.org/doku.php?id=projects:clwt:start>

1.5.2 除染廃棄物や汚染土壌の保管・仮置技術システム

(1)はじめに

除染で取り除いた土壌等の管理、いわゆる仮置き保管では、その設置場所は限定されており、その範囲や容積を容易に拡大することはできない。その状況下において除染廃棄物の増加が見込まれた場合の対応策の一つとして、廃棄物を圧縮し、その容量を減じた後、保管を行う方法も想定される。一方、除染廃棄物は表土をすきとる場合が多く、土壌以外にも草木類が混在している状況が一般的である。草木類は有機物を多く含む腐敗性物質であり、圧縮保管を行う場合に、発酵や酸化による発熱が懸念され、蓄熱が過度に及ぶと燃焼状況に陥ることが懸念される。そこで、圧縮した除染物の仮置保管を実規模で模擬した実証試験を行い、腐敗性除染廃棄物の圧縮保管による安全性評価を実施した。

(2)試験方法

1)対象とする保管方法

- ①枝チップ圧縮物を通気性防水シートで被覆したもの（以下、「圧縮・通気」と記す。）
- ②枝チップ非圧縮物を通気性防水シートで被覆したもの（以下、「バラ・通気」と記す。）
- ③枝チップ圧縮物を遮水シートで被覆したもの（以下、「圧縮・遮水」と記す。）

2)試験体の作製

試験体の作製概要を以下に示す。



① 剪定枝準備とチップ化

福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの汚染を受けていない剪定枝等を千葉県中部の汚染状況充填調査地域以外より約 30 m³ 採取し、写真 1.5-3 のとおり降雨にさらされない場所で一時保管した。その後、保管場所にて写真 1.5-4 に示す木材破砕機を用いて剪定枝をチップ化した。



写真 1.5-3 保管状況



写真 1.5-4 木材破砕機



写真 1.5-5 剪定枝の破砕物



写真 1.5-6 フレコン作製状況

破砕された剪定枝の状況を写真 1.5-5 に示す。作製したチップは保管用フレコンに以下の要領で詰めた。作製・計量状況を写真 1.5-6 に示す。

圧縮用：0.5 m³ 程度をフレコンに投入（φ1100×H1100 mm 程度の丸型フレコン）

平均比重 0.25 kg/L

非圧縮用：1 m³ 程度をフレコンに投入（φ1100×H1100 mm 程度の丸型フレコン）

平均比重 0.25 kg/L

② チップ圧縮

フレコンに入れたチップを写真 1.5-7 に示した圧縮機械で整形した。圧縮機械の仕様は表 1.5-4 に示すとおりであり、圧縮は H1000×W750 mm で行われる。作業は、まず、圧縮用フレコン 3 袋を H1000×W750×D1000 mm に圧縮成型し、その後、圧縮用フレコン 1 袋を H1000×W250×D1000 mm に圧縮成型させ、それら 2 体を結束し H1000×W1000×D1000 mm の試験体を作製した後、写真 1.5-8 に示すとおり再度フレコンで梱包した。

表 1.5-4
圧縮装置の仕様

機械高さ	2,490 mm
機械幅	1,600 mm
機械長さ	6,270 mm
投入口高さ	1,450 mm
機械重量	7,500 kg
ペールサイズ(L×W×H)	1,200×750×1,100 mm
ペール重量	~450 kg
モーターパワー	18.5 kW
圧縮力	750 kN
圧密度	98 N/cm ³
サイクルタイム	46 秒
処理量（理論値）	40~50 m ³ /h
処理量（対象物により変化する）	最大 2 トン/h



写真 1.5-7 圧縮機械



写真 1.5-8 圧縮材の梱包状況

③ 試験体保管

作製したフレコンの発熱状態を確認するため、周囲への放熱は避ける必要があった。そこで、本試験においてはその周囲を保温材で囲うこととした。具体的には、合板（厚さ 12 mm）、内側から断熱材（スタイロエースⅡ、厚さ 50 mm、放熱防止）で 6 面（上部は開、繋ぎ目は全て内側からシーリング）を覆い、角材で周囲を補強した箱体を製作した（写真 1.5-9、図 1.5-3）。通気性を考慮し、断熱材、合板には側面の下部（半分より下）に中心から等間隔で 3 箇所／面、10mm のドリルで 穴を開けた（3 箇所×4 面＝12 箇所）。天板面には同様のドリルにて等間隔に 3 列 3 箇所にて計 9 箇所の穴を開けた。なお、試験体保管は、周囲の気温等の気象条件を実際の仮置場と同様にするため、福島県内の仮置場内で実施した。



写真 1.5.9 保温材貼り付け状態

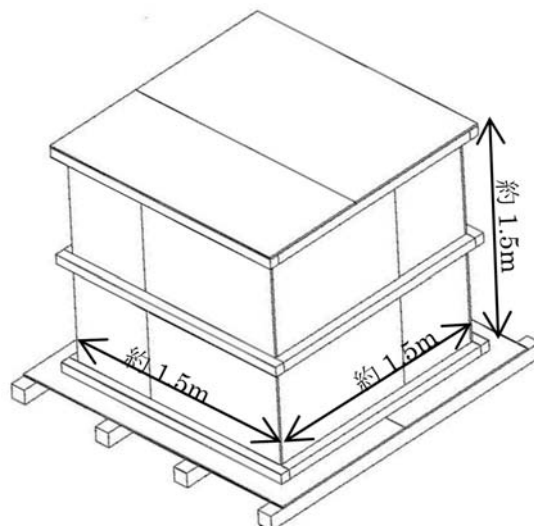


図 1.5-3 試験装置外観・寸法図

設置に当たっては、圧縮試料 2 体および、バラ試料 1 体をそれぞれ保管用断熱木箱に収納し、温度センサー、ガス吸引用チューブを設置した。温度センサーは、下から 250 mm、500 mm、

750 mm でそれぞれセンサーを中心部まで差し込んだ（以降、それぞれ「下」「中」「上」と称する）。また箱内空気温度測定のための温度センサーを箱内上部に設置した（「箱内」と称する）。さらに箱近傍外部の気温として箱の下部と地面の間に温度センサーを設置した（「外部」と称する）。設置場所を代表する外気温測定用に太陽電池下部に温度センサーを設置した（「外気温」と称する）。ガス吸引用チューブは、下から 500 mm の中心部に差し込んだ（温度「中」と同じ位置）。また箱内ガス濃度測定用のチューブを箱内上部に設置した。次に、上部をスタイロフォームで塞ぎ外部からシールで密閉、合板で蓋をした後、それぞれ 6 m×6 m の大きさで圧着加工した通気性防水シート（「ボランス CRE500」東洋紡製、厚さ 3 mm）、遮水シート（軟質塩化ビニル製「Gシート R」ジューエル化学工業製、厚さ 15 mm）にて保管用断熱木箱を覆った。固定は、ロープで上から 2 箇所補強角材の間で締め、下部を角材の釘打ちにより密着させた。このように作成した試験体は木杭にて地面に固定した。（写真 1.5-10～1.5-14）



写真 1.5-10 資材搬入



写真 1.5-11 設置作業状



写真 1.5-12 設置作業状況



写真 1.5-13 設置作業完了



写真 1.5-14 試験設備全景

(3) 試験結果（温度、各種ガス濃度の変化）

1) 全体状況

温度、ガス濃度の変化を図 1.5-4 に示した。通気区は遮水区に比べて夏期の温度上昇が少なかった。これは、内部の乾燥が進んだことによるものと考えられる。

遮水区は、初年度夏期よりは二年目夏期の温度上昇は少ないものの、通気区よりは高く高温期は 50°C 前後で推移した。遮水区は初年度 9 月に下部を開放し空気の流通が可能となり好気発酵が進んだものの、上部は閉鎖されているため水蒸気の外部放出は進まず箱内部で結露して試験体を湿潤させていたものと思われる。このことは、解体時に内部確認した際に、遮水区は水分の染み出したあとや、内壁の汚れが見られることに対して、通気区の 2 区はそのような状況になっていないことから確認できた（写真 1.5-15 参照）。

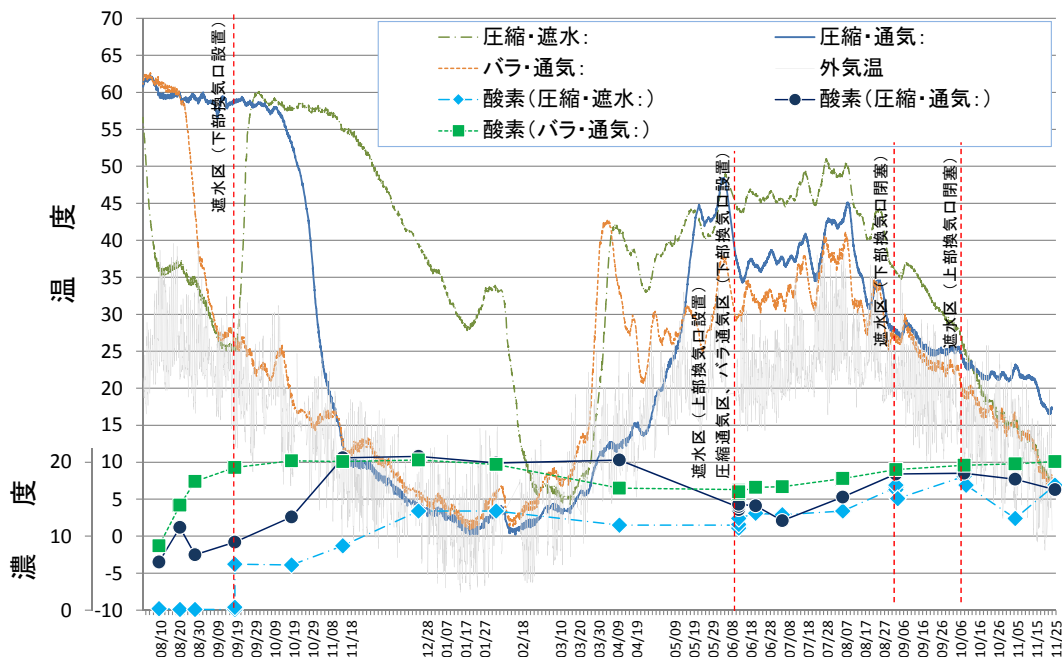


図 1.5-4 ガス濃度等の変化



写真 1.5-15 解体時の状況

2) 通気状態の変化が保管試料に与える影響（その1：圧縮・遮水区の上部通気孔設置）

6月初旬に圧縮・遮水区に上部通気孔を設置した結果、図 1.5-5 に示したように、箱内空気の酸素濃度上昇が見られ、試験体内部の酸素濃度も2時間程度の遅れをもって上昇に転じた。温度は図 1.5-4 からみると数日後から上昇に転じている。

3) 通気状態の変化が保管試料に与える影響（その2：圧縮・遮水区の上部閉鎖）

10月初旬に圧縮・遮水区の上部通気孔を撤去し閉鎖した。この結果、酸素濃度の微細な減少が確認された（図 1.5-6）。温度についてはその後低下しているが、気温も低下しているので、閉鎖によって酸素濃度が減少し、好気発酵が抑制されて温度が低下したという判断はできない。これは既に試験体温度が30℃を下回った状態での処置であったため、試験体設置直後に見られたような閉鎖によって酸素が消費され嫌気状態になるような状況には至らなかったためと考えられる。

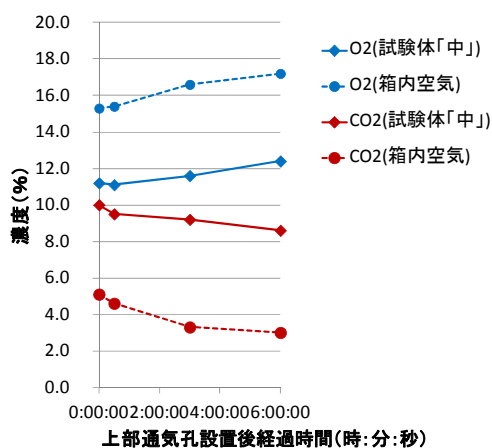


図 1.5-5 通気口設置後のガス濃度変化

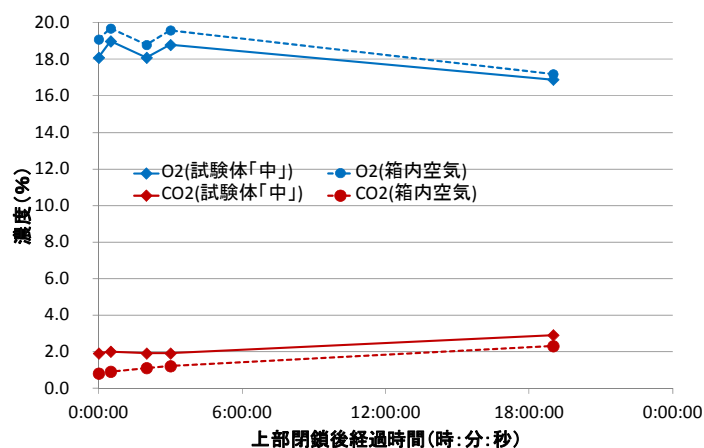


図 1.5-6 通気口閉塞後のガス濃度変化

(4) さいごに

本試験結果からは、通気または密閉という酸素供給状態が仮置物の温度およびガス濃度へ与える影響は大きくなく、発火現象が生じる様な状態にはならなかった。このことから、圧縮成形により仮置場面積を減らし、腐敗性可燃除染廃棄物の不同沈下も無い仮置場管理が可能となることが示唆された。

1.5.3 汚染廃棄物の埋立処分技術システム構築と評価

(1)はじめに

放射性物質で汚染された廃棄物のうち、溶出性の高い飛灰等を埋立処分する場合には、雨水浸透を抑制するための上部隔離層や放射性物質の移動を遅延させる下部土壌吸着層の併設が義務付けられている。さらに、放射性セシウム 137 の溶出量が 150 Bq/L を超過する飛灰等の特定廃棄物（平成 24 年 1 月 13 日環境省告示 3 号）については、セメント固型化を行うことで溶出量の抑制が必要とされており、環境省告示 14 号（平成 24 年 2 月 24 日）によってセメント添加量と固型化物の一軸圧縮強さに関して規定されている。

本研究では、セメント固型化した汚染飛灰からの放射性セシウムの長期溶出挙動に及ぼすセメント添加量や溶出抑制剤、一軸圧縮強さとの関係を示すとともに、実際の現場において 1 m³ 相当の実物規模のセメント固型化を行った場合に期待される溶出抑制効果について評価した。

表 1.5-5 本研究に用いたセメント固型化飛灰

	低圧縮セメント固型化物	高圧縮セメント固型化物	フェロ固型化物
供試体			
大きさ d	125x125x125mm	φ110xh215mm	φ110xh215mm
密度	1,430 kg/m ³	2,400 kg/m ³	1,740 kg/m ³
飛灰：セメント：水	15,000:1,000:2,000	1,000:1,000:400	2,000:1,000:800:2.6 ¹⁾
セメント添加量	80	100	458
¹³⁷ Cs 含有量	4,450 Bq/kg	3,590 Bq/kg	8,110 Bq/kg
一軸圧縮強さ	7.74 MPa	29.3 MPa	14.5～18.8 MPa

1) フェロシアン化ニッケルを 2.6 g/kg 添加

(2)実験方法

実験に使用した供試体 3 種を表 1.5-5 に示す。

低圧縮固型化物は、一般廃棄物焼却飛灰 150 kg に対してセメント 10 kg と水 20 kg で混ぜ合わせ 18 分間養生し、13 cm 角の型枠に入れて 20 t で加圧圧縮した固型化物である。この固型化物は一般廃棄物焼却炉で平常時より実施されている固型化であり、事故対応として実施していたものではない。溶出試験に用いた試料重量は 2.787 kg、容積は 0.00195 m³、表面積は 0.0938 m² である。一軸圧縮強さは 7.7 MPa であった。

高圧縮固型化物は一般廃棄物焼却飛灰とセメントを 1 対 1 で攪拌混合して 25 t/m² で加圧圧縮養生した固型化物である。平常時から実施している固型化物埋立方法を汚染飛灰に対して適用したものであり、一軸圧縮強さは 29.3 MPa であった。試料重量は 4.897 kg、容積は 0.00204 m³、表面

積は 0.0933 m²。

フェロシアン化ニッケル添加セメント固型化物（以下、フェロ固型化物とする）は、一般廃棄物焼却飛灰とセメントを 2 対 1 で攪拌混合し、さらに不溶化剤（フェロシアン化ニッケル）を 2.6 g/kg で添加した固型化物である。一軸圧縮強さは 14.5～18.8 MPa であった。試料重量は 3.556 kg、容積は 0.00204 m³、表面積は 0.0933 m²。



写真 1.5-16 長期溶出試験の様子

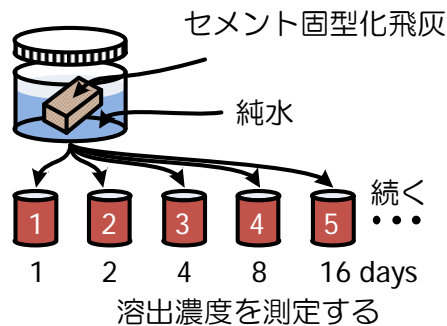


図 1.5-7 長期溶出試験の方法

3 種類のセメント固型化飛灰からの放射性セシウムの長期溶出挙動を調べるために、供試体を有姿のまま長期溶出試験に供した。その様子を写真 1.5-16 に示す。長期溶出試験の方法は、JIS K 0058-1 を基本（液固比 10、溶媒は水、上澄みを 200 rpm プロペラ攪拌）として、図 1.5-7 のように試験開始から 6 時間、24 時間、1 週間、2 週間、4 週間、8 週間、16 週間、32 週間経過した時点で容器から溶媒の一部を採水した。採水した溶媒は 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いて固液分離し、その濾液を検液としてその放射性セシウム濃度等を測定することで溶出濃度を求め、その時間変化から溶出率および放射性セシウムの溶出フラックスを評価した。なお本試験法では液体を採水するたびに液固比が少なくなるが、作製したセメント固型化物を有姿のまま用いているため溶媒量は 25～35 L にもなり、分析のために採水した溶媒の減少量は、液固比に対して無視できる変化量であると考えられる。各溶出試験時間において採取した液体の放射性セシウム濃度

から、次式により溶出フラックスを評価した。

$$j_i = \frac{c_i - c_{i-1}}{t_i - t_{i-1}} \frac{V}{A} \quad (1)$$

ここで、 i ：分画番号を表わすインデックス、 j_i ：放射性セシウムの溶出フラックス (Bq/m²/d)、 c_i ：放射性セシウム濃度 (Bq/m³)、 t_i ：経過時間 (d)、 V ：溶媒量 (m³)、 A ：セメント固型化物の表面積 (m²) を表わす。

(3) 実験結果

長期溶出試験結果として、各セメント固型化物からの放射性セシウム 137 の溶出率を図 1.5-8 に示す。セメント固型化しない汚染飛灰を同様の溶出試験に供すると、数日で溶出率が 100% 近くまで上昇するが、本試験結果により、セメント固型化することで、汚染飛灰からの放射性セシウムの溶出速度を遅延させ、溶出抑制効果があることが確認できる。

低圧縮セメント固型化物の場合では、溶出試験時間 4 週間目において溶出率 75% (溶出試験時間 32 週間目の試験終了時では 85%) になった。一方、高圧縮セメント固型化物では、時間とともに溶出率の増加が認められるものの、試験終了時での溶出率は 13% となり、不溶化剤入りのフェロ固型化物では 23% となった。4 週間目の溶出率はいずれも数% に収まっている。高圧縮セメント固型化物に比較して、フェロ固型化物の溶出率が期間中に逆転している点については、フェロ固型化物が溶出期間中に崩壊し、表面積が増加したことが原因と考えられる。

セメント固型化は溶出速度の低下に有効であるものの、溶出率は供試体の比表面積 (サイズ) に影響を受けるため、表面積の異なる 3 種のセメント固型化物の溶出特性をこのままでは評価することができない。この点は、種々の文献から溶出率を評価する場合も同様であり、溶出濃度は液固比に依存し、溶出率は供試体の表面積に依存することから、どの固型化処理が有効であるかは、これらの依存を無くすために正規化した値で評価しなければならない。

正規化して評価するための一つの手法として、固型化物の単位表面積当たりの溶出フラックスを計算して比較する方法がある。図 1.5-9 に単位表面積当たりの溶出フラックスを用いて、放射性セシウムの放出量を計算した結果を示す。フラックスをみると、圧縮セメント固型化物やフェロ固型化物では、低圧縮セメント固型化物よりも溶出フラックスが 2 オーダー程度低くなっていることが確認できる。また、微少な違いではあるものの、高圧縮セメント固型化物よりもフェロ固型化物の方が溶出フラックスが小さくなっていることもわかる。正規化する手法としては、これ以外にも、固相である固型化物から液相へと溶出する拡散係数として表現する手法もある。

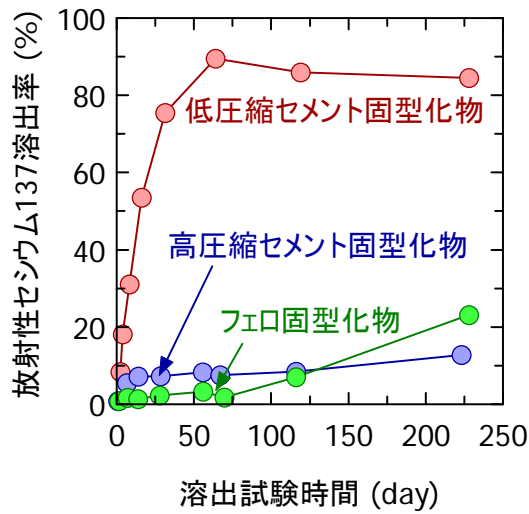


図 1.5-8 セメント固型化物からの放射性セシウム 137 の溶出率

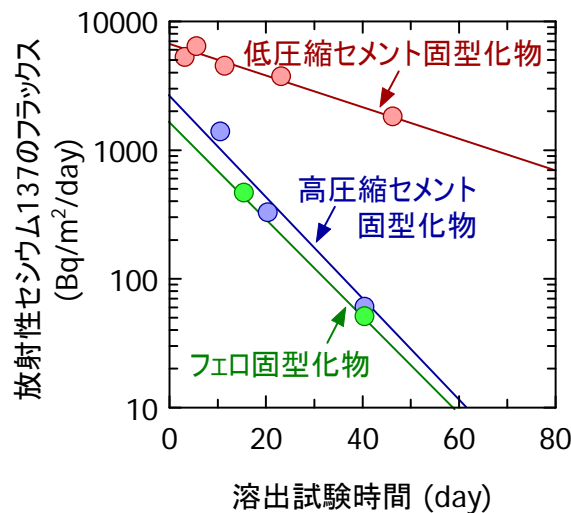


図 1.5-9 単位表面積あたりの放射性セシウム 137 の溶出フラックス

(4) 実物規模のセメント固型化物の溶出抑制効果

セメント固型化に関する規定は、特定廃棄物の問題が生じる以前より存在しており、「金属等を含む廃棄物の固型化に関する基準」(昭和 52 年 3 月 14 日環境庁告示 5 号)に規定されている。セメント等の結合材の添加量や一軸圧縮強さの規定は、特定廃棄物の固型化基準と同じであるが、告示 5 号には大きさの規定が入っており、最小寸法が 5 cm 以上であることや、体積と表面積の比が 1 以上であることなどが規定されている。特定廃棄物については、実務上、1 辺が 1 m の立方体で作成することが主流となることから、告示 5 号で想定される固型化物よりも相当に大きい固

型化物となる予定である。そこで、本検討では、容積 1 m^3 となる実規模のセメント固型化物を想定した評価を行った。当然ながら、表面積は室内実験規模での供試体よりも大きくなるので、単位重量あたりの溶出量は少なくなることが推測される。ここでは、室内実験から得られた溶出フラックスを用いて実物規模のセメント固型化物の溶出率を推定する手法を提案する。単位濃度・単位表面積あたりの溶出フラックスが、実物規模と室内実験規模で同じと仮定すると、図 1.5-10 のように

$$\frac{j_p}{c_{in,p}^* \rho_{d,p}} = \frac{j_m}{c_{in,m}^* \rho_{d,m}} \quad (2)$$

が成り立つ。ここで、 j_p ：実物規模のセメント固型化物表面からの溶出フラックス ($\text{Bq/m}^2/\text{d}$)、 j_m ：室内実験規模でのセメント固型化物供試体表面からの溶出フラックス ($\text{Bq/m}^2/\text{d}$)、 $c_{in,p}^*$ ：実物規模のセメント固型化物の固体濃度 (Bq/kg)、 $c_{in,m}^*$ ：室内実験規模でのセメント固型化物供試体の固体濃度 (Bq/kg)、 $\rho_{d,p}^*$ ：実物規模のセメント固型化物の密度 (kg/m^3)、および $\rho_{d,m}^*$ ：室内実験規模でのセメント固型化物供試体の密度 (kg/m^3) を表わす。したがって、実物規模のセメント固型化物からの累積溶出量は次式で求めることができる。

$$J_p(t) = \frac{c_{in,p}^* \rho_{d,p}}{c_{in,m}^* \rho_{d,m}} \int_0^t \int j_m(\tau) dA d\tau \quad (3)$$

ここで、 J_p ：実物規模のセメント固型化物からの累積溶出量 (Bq) である。以上がセメント固型化物の溶出率に対するスケール効果の考え方である。

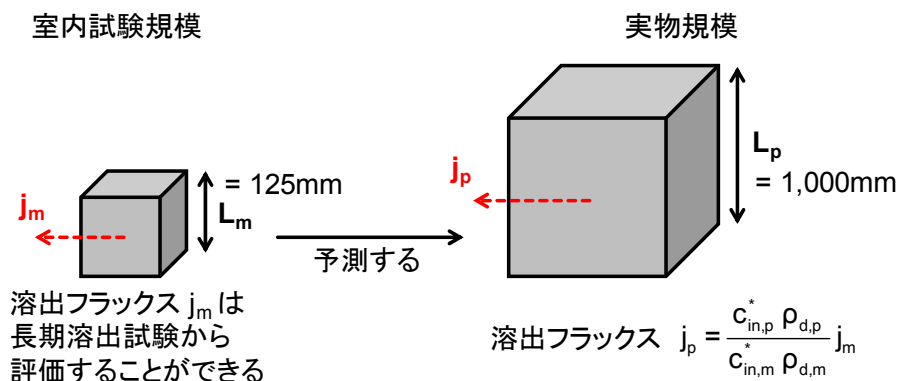


図 1.5-10 室内試験規模と実物規模での溶出フラックスの関係

室内試験で得られた低圧縮セメント固型化物、高圧縮セメント固型化物、およびフェロ固型化物の溶出フラックスをもとに、それぞれの実規模において期待できる溶出率を計算した。実規模の容積 1 m^3 、表面積 6 m^2 を計算条件として計算を行い、その結果を図 1.5-11 に示す。

低圧縮セメント固型化物に着目すると、室内試験規模では溶出率 85%であったものが、実規模での計算では溶出率が減少し 10 年後でも 11.3%で頭打ちになることがわかった。単位表面積当たりの溶出フラックスでは、低圧縮と高圧縮セメント固型化物に 2 オーダー程度の違いがあったものの、実規模での計算では比較的近い溶出率となっていることが分かる。一方で、溶出フラックスの値が似通っていた高圧縮セメント固型化物とフェロ固型化物の実規模スケールでの溶出率の違いが大きくなっている。この結果は、恐らく、初期の溶出フラックスの大きさに依存していることと推定され、初期溶出量を抑制することは、将来的な溶出抑制に影響することと考えられる。また、いずれの固型化物においても、実規模スケールでは、主要な溶出が 1 年以内に終了する計算結果となっており、重量当たりの表面積を小さくすることで、溶出抑制効果を発揮するスケール効果の影響が大きいことが確認された。

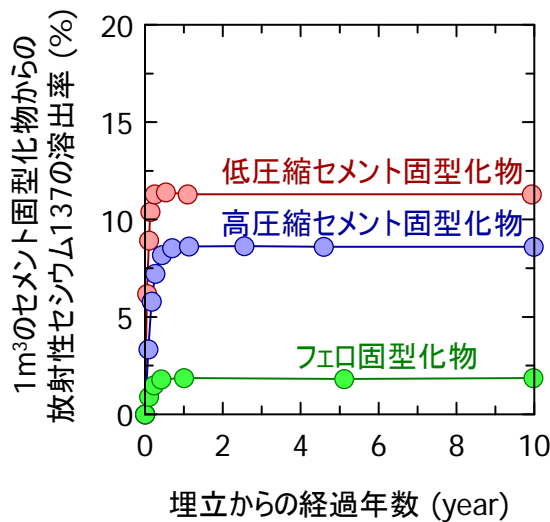


図 1.5-11 実規模を想定した放射性セシウム 137 の溶出率

(5) 結論

低圧縮セメント固型化は、容積 1 m³ の実物模を考えた場合、その溶出率は 11.3%程度で頭打ちとなることがわかった。また、溶出率 11.3%に到達する溶出時間は 1 年未満であることも計算された。室内試験では数十日で溶出率が 80%程度になっていたが、スケール効果によって、表面積対体積の比率が変化したため、溶出率が大きく低下することとなった。本計算結果は、実験値から求められたフラックスを用いて計算しているため、放射性セシウム以外の易溶解性化合物等も同時に溶出しており、徐々に空隙が大きくなっている条件下での溶出挙動を反映した計算結果であるといえる。フェロシアン化ニッケルを添加した実規模の固型化物の溶出率は 1.9%であり、セメント添加量、一軸圧縮強さ共に大きな高圧縮セメント固型化物の場合は、8.7%と計算された。本試験結果は、一般廃棄物焼却飛灰を対象にした固型化物であることから、今後は除染廃棄物飛灰等を用いた試験を実施し、同様の溶出挙動であるかどうか確認、検証していく必要がある。

2. 処理施設の長期管理等技術の確立

2.1 焼却施設等の長期的な維持管理・廃止撤去手法の確立

2.1.1 実焼却等施設における放射性Cs及び安定Csの蓄積実態調査

(1) はじめに

2011年3月に発生した東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故により、放射性セシウム(Cs)等の放射性物質が環境中に放出され、福島県を中心に東日本一帯に及ぶ広域な放射性物質汚染が生じた。人々の生活活動に伴い放射性物質を含む草木類が一般ごみにも混入し、それを焼却処理することにより、各地の一般廃棄物焼却施設の焼却灰(主灰)、飛灰から高濃度の放射性Csが検出される事態が起こった。国が定める基準値(8000Bq/kg)を超える焼却灰等は指定廃棄物となり、国の責任で処理することになっているが、いまだ処分できずに施設内に保管されている。その後、発生する焼却灰等の放射性Cs濃度は相当程度低減してきたが、現在においても福島県内を中心に高い状態は続いている。また、関東・東北の一般廃棄物焼却施設および災害廃棄物仮設焼却施設では、事故由来の放射性Csを含む廃棄物の処理により、炉内耐火物への放射性Csの蓄積が確認されている。現在、除染に伴って発生した除染廃棄物を減容化するために福島県内では仮設焼却炉の整備が進んでおり、相当程度高い濃度の除染廃棄物を焼却し減容化することになると考えられるため、より多くのデータ蓄積が必要不可欠と考えられる。

そこで本調査は、除染廃棄物等を処理対象とした仮設焼却施設において、耐火物への放射性Cs等の長期的な蓄積の実態を明らかにすることを目的とし、炉内空間線量率調査および炉外空間線量率の経時変化調査、耐火物分析等の調査を行った。また、これまで調査を行ってきた一般廃棄物焼却施設において、メンテナンス工事時の炉内空間線量率調査および炉外空間線量率の経時変化調査を行い、放射性Csの耐火物への蓄積について考察した。

(2) 方法

1) 既存施設におけるメンテナンス工事時の炉内空間線量率調査および炉外空間線量率の経時変化調査

これまで複数年にわたりボイラー設備内外の空間線量率測定を実施した既存施設において、放射性の蓄積状況を調査するため、ボイラー設備内外から空間線量率の経時変化を調査した。ボイラー設備内外の空間線量率測定は、NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ(日立アロカ製TCS-172B)と一部ではプローブ用遮蔽体(TH-J2505)を用いて測定部直上(1cm)で行った。

2) 仮設焼却炉における炉内外空間線量率、耐火物中放射性セシウム等の経時変化調査

①A 施設

A 施設は、除染廃棄物以外を主な処理対象物とした小型焼却炉である。図2.1-1に対象施設の処理フローの概要を示す。炉外の空間線量率の調査は、焼却炉および減温塔で実施した(○印)。炉内の空間線量率の調査は、焼却炉および減温塔上部で実施した。空間線量率測定はNaI(Tl)シンチレーションサーベイメータを用いて測定部直上(1cm)で行った。

耐火物は空間線量率測定を行った焼却炉および減温塔で採取した。採取した耐火物試料について、図2.1-2のように、炉内側から原則2cmの厚さ毎に切断・粉碎し、分析試料とした。各層について、放射性物質濃度等測定方法ガイドラインに則りゲルマニウム半導体検出器を用いて放射

性 Cs(Cs-134、137)の測定を行った。

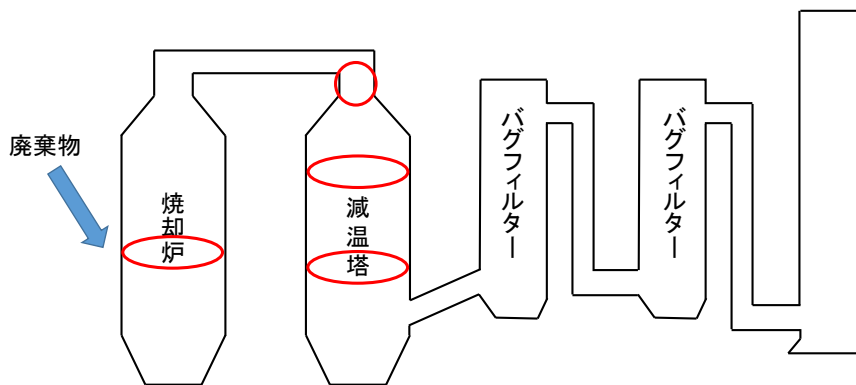


図 2.1-1 A 施設の処理フローの概要

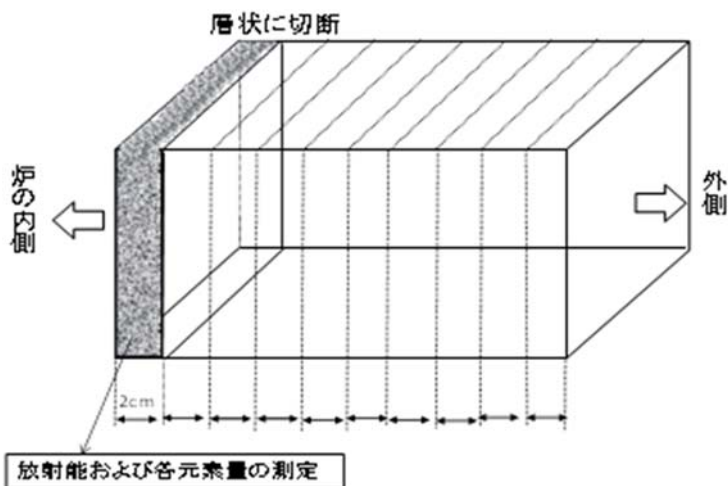


図 2.1-2 耐火物試料の切断方法

②B 施設

B 施設は、連続運転式の大型ストーカ式焼却炉であり、主な処理対象物は除染廃棄物、家の片づけごみである。図 2.1-3 に対象施設の処理フローの概要を示す。炉内外の空間線量率の調査は、焼却炉、空気予熱器、ガス冷却塔で実施した (○印)。空間線量率測定は NaI (TI) シンチレーションサーベイメータを用いて測定部直上 (1cm) で行った。ガス冷却塔内部の垂直方向、水平方向における空間線量率測定には日立アロカ社製 PDR-303 を用いた。

耐火物は空間線量率測定を行った焼却炉、空気予熱器、ガス冷却塔で採取した。採取した耐火物試料について、図 2.1-2 のように、炉内側から原則 2cm の厚さ毎に切断・粉碎し、分析試料とした。各層について、放射性物質濃度等測定方法ガイドラインに則りゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性 Cs (Cs-134、137) の測定を行った。また、焼却飛灰を定期的に採取し、Cl 濃度の測定と溶出試験を実施した。Cl 濃度は波長分散型蛍光 X 線分析装置 (Supermini200) を用いて測定した。溶出試験は JIS K0058-1 に準じて評価した。液固比 10 で混合し、溶出時間は 6 時間とした。検液の放射性 Cs 濃

度(Cs-134、137)はGe半導体検出器(ORTEC製 GEM30-70 および GMX40-83-LB-B-HJ)により測定を行った。

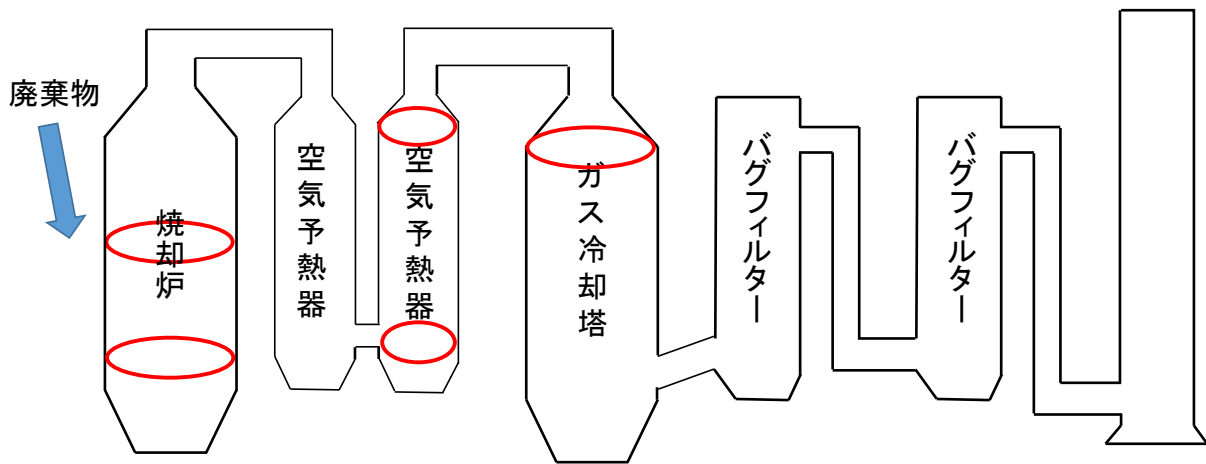


図 2.1-3 B 施設の処理フローの概要

(3) 結果および考察

1) 既存施設におけるメンテナンス工事時の炉内空間線量率調査および炉外空間線量率の経時変化調査

本施設では 2014 年に耐火物補修作業が実施された。耐火物補修作業前後においてボイラー設備の外部設備壁面直近とそこに対応する内部耐火物表面直近で遮蔽体を用いずに空間線量率を測定した結果を図 2.1-4 に、両者の相関関係を図 2.1-5 に示す。

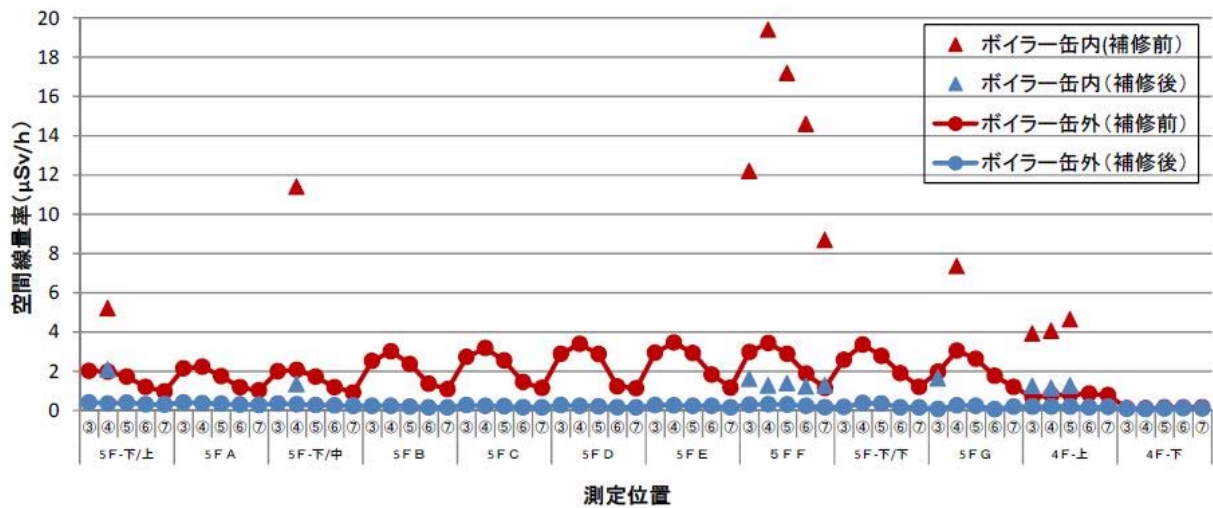


図 2.1-4 耐火物補修前後におけるボイラー設備内外での空間線量率測定結果

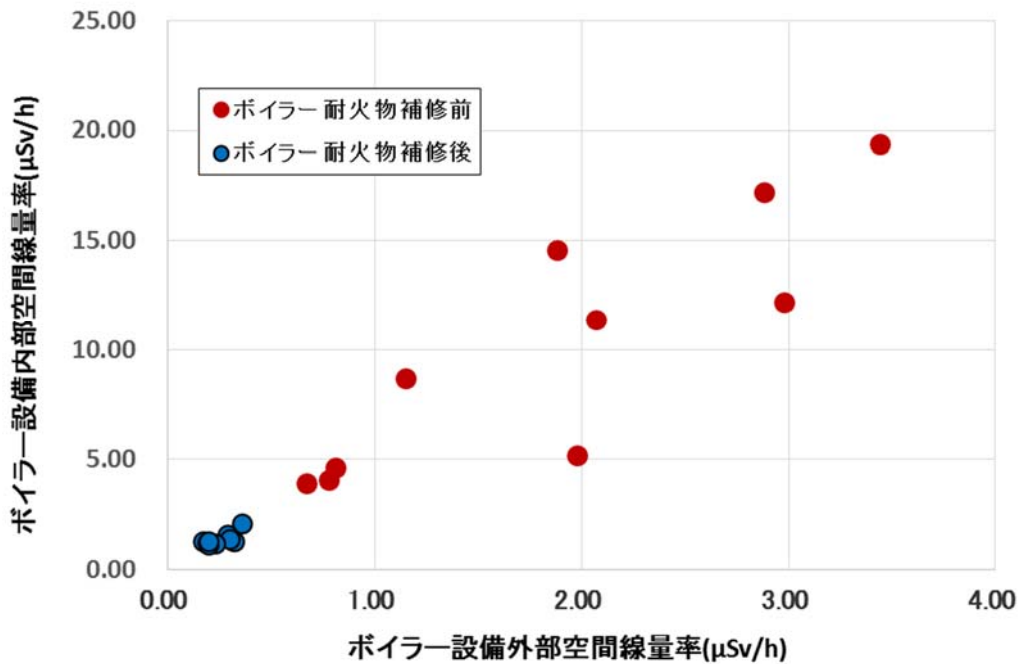


図 2.1-5 ボイラー設備内外における空間線量率の相関関係

図 2.1-5 の両者の相関関係において補修前の相関係数が 0.87、P 値が 0.11%、補修後の相関係数が 0.68、P 値が 2.9%となり、いずれも有意な相関性が認められた。このことから、ボイラー施設外部からの測定により内部の空間線量率変化の推定が可能と考え、ボイラー施設外部の空間線量率測定を定期的に行って、その経時変化を確認した。

図 2.1-6、図 2.1-7 にボイラー設備の外部からの遮蔽体を使用した場合と未使用の場合の空間線量率測定結果を示す。図中の 4F は 4 階部分での、5F は 5 階部分での測定結果で、上下は同一階での高さ方向の異なる測定場所を、丸数字は水平方向での異なる測定場所を意味している。図 2.1-6、図 2.1-7 のいずれにおいても、2014 年 8 月、2015 年 2 月、2015 年 7 月の 3 ヶ所で空間線量率の変化が認められる。その理由は、2014 年 8 月は 2014 年 7 月に内部清掃メンテナンスが行われ付着物が除去された影響で測定値が若干低下、2015 年 2 月は 2015 年 1 月の耐火物補修メンテナンスで耐火物が補修して新しくなった部分において大きく測定値が低下、2015 年 7 月は 2015 年 7 月測定前に行われた内部清掃メンテナンスの影響で測定値が若干低下したと考えられた。遮蔽体使用の有無にかかわらず同様のポイントで変化が認められ、その傾向も同じことから遮蔽体を使用せずに測定しても内部での変化を推定できる可能性が示唆された。

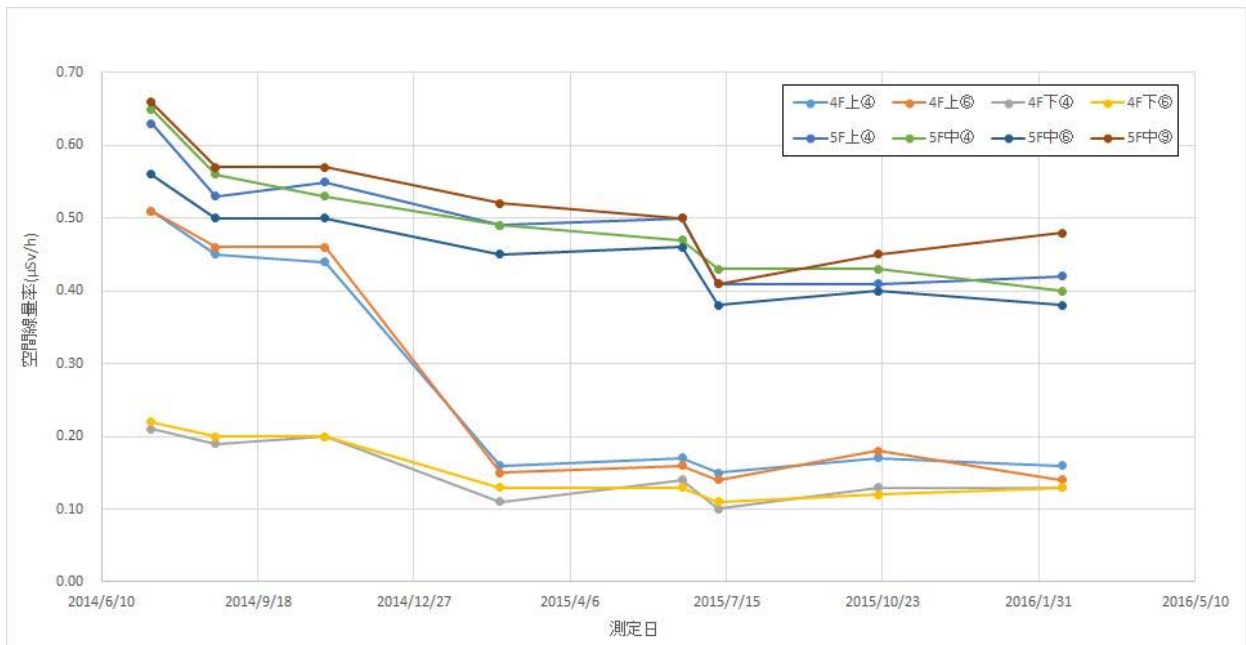


図 2.1-6 ボイラー設備外部からの空間線量率測定結果(遮蔽体未使用)

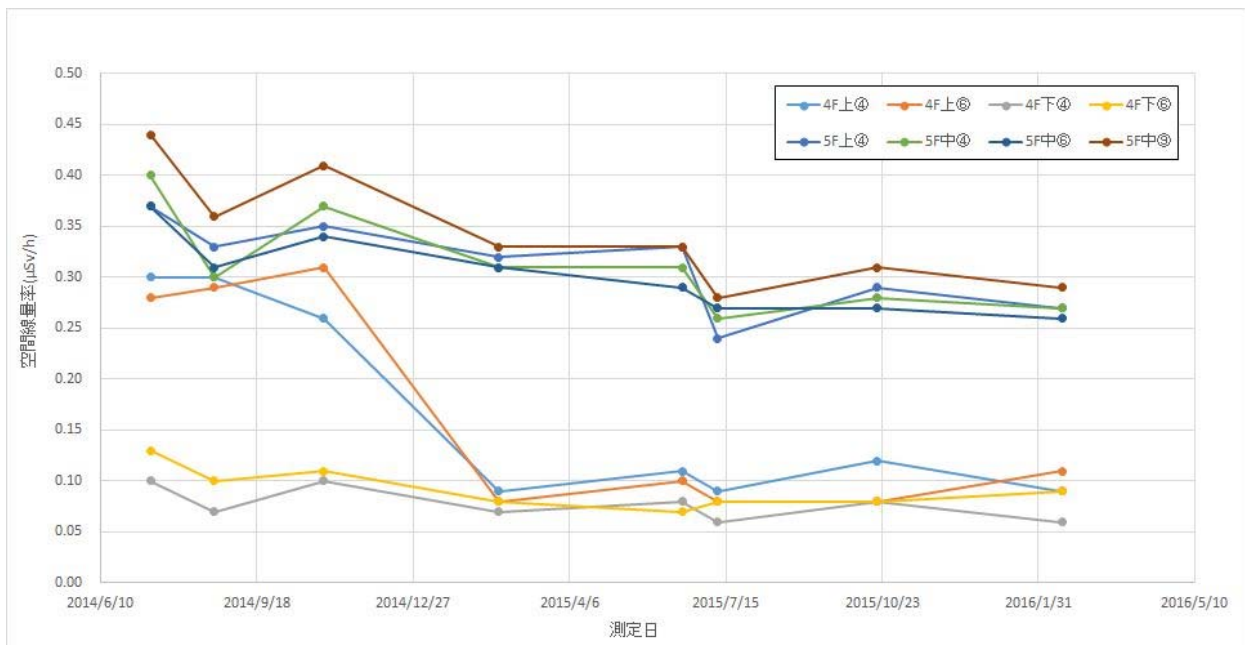


図 2.1-7 ボイラー設備外部からの空間線量率測定結果(遮蔽体使用)

耐火物補修が行われなかったボイラー設備内部の1年間の耐火物表面の空間線量率測定結果を

表 2.1-1 に示す。遮蔽体使用有無にかかわらず耐火物が補修されていないにも関わらず空間線量率が 20 数%から 40%低下していることがわかった。また、図 2.1-8 に飛灰中の放射性 Cs 濃度の経時変化を示す。ごみ焼却施設において剪定枝や雑草等がごみとして搬入される量が増加する初夏と秋の 2 つをピークとした変化がみられることが知られており¹⁾、本調査施設においても 2012 年と 2014 年は 2 つのピークが、2013 年は 2 つの間の谷間がなく 1 つのピークとなっているものの、ほぼ同様の傾向が認められる。また、ピークによる高低があるものの、全体的に濃度が低下していることがわかる。つまり、ごみ中の放射性 Cs 濃度が低下し、結果として飛灰中の放射性 Cs 濃度が低下してきている。ボイラー設備内部の 2 つの測定期間における自然減衰が約 9%であることから、放射性 Cs 濃度が低下したごみを焼却することで、この測定期間の運転中に耐火物に蓄積した放射性 Cs が揮散することで自然減衰以上の空間線量率の低減が生じたものと考えられる。

表 2.1-1 ボイラー設備内部の空間線量率測定結果

測定箇所	遮蔽体未使用			遮蔽体使用		
	2014/7 測定 (μ Sv/h)	2015/7 測定 (μ Sv/h)	低減率 (%)	2014/7 測定 (μ Sv/h)	2015/7 測定 (μ Sv/h)	低減率 (%)
5F 中④	4.09	2.73	33	1.6	1.14	29
5F 中⑥	5.38	3.64	32	2.28	1.37	40
5F 中⑨	4.63	3.53	24	1.77	1.36	23

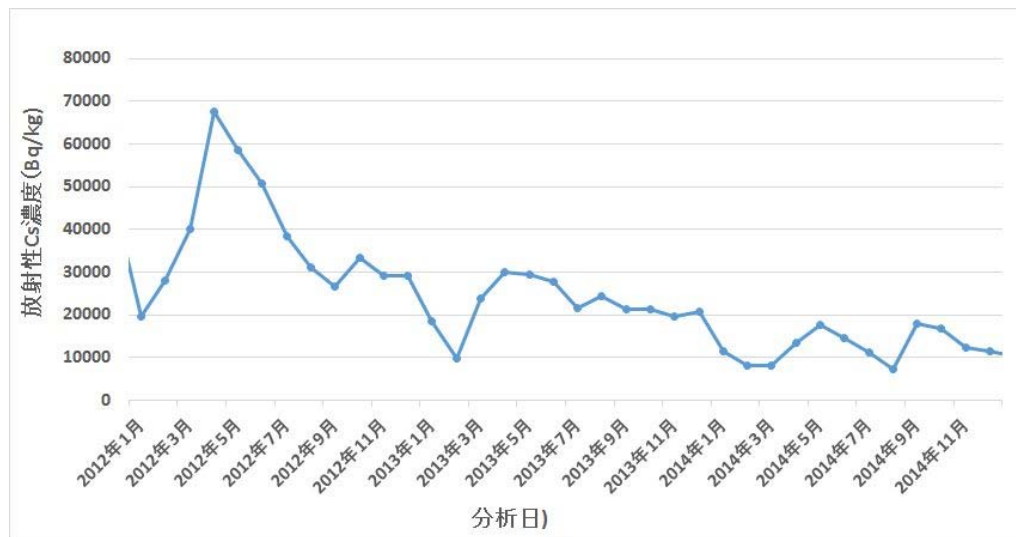


図 2.1-8 飛灰中の放射性 Cs 濃度の経時変化

2) 仮設焼却炉における炉内外空間線量率、耐火物中放射性セシウム等の経時変化調査

① A 施設

図 2.1-9 に焼却炉内部での空間線量率測定結果の運転日数による経時変化を示す。本施設では被焼却物中の放射性 Cs 濃度が低いため 1 年以上経過後においても空間線量率は微増で、その値は遮蔽体を使用した測定では焼却炉外のバックグラウンドの 2 倍程度にとどまった。また、焼却炉

外部における空間線量率の測定においては有意な変化は認められなかった。

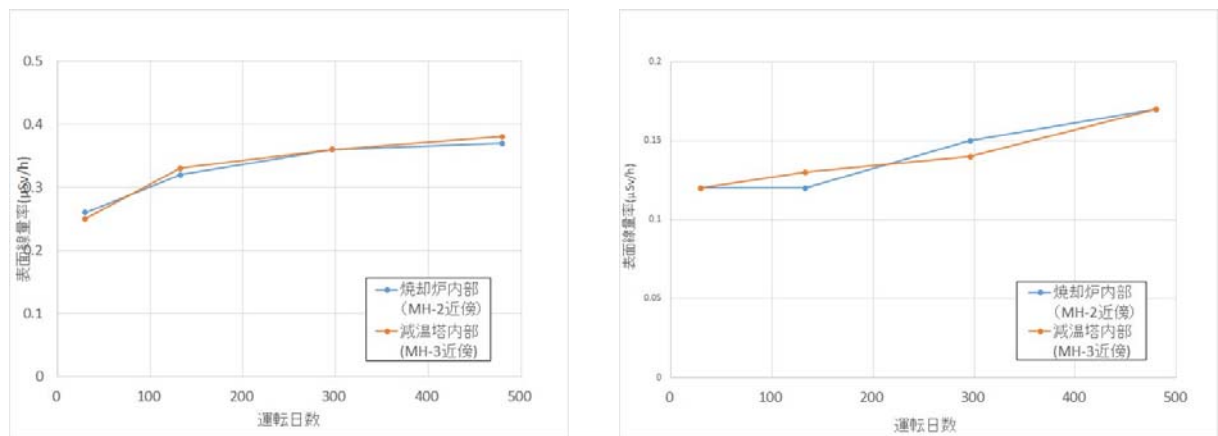


図 2.1-9 焼却炉内部空間線量率の運転日数による経時変化 (左: 遮蔽体未使用、右: 遮蔽体使用)

図 2.1-10 に各箇所から採取した耐火物表層の放射性 Cs 濃度の経時変化、図 2.1-11 に耐火物内への放射性 Cs の浸透状況(運転日数-270 日)を示す

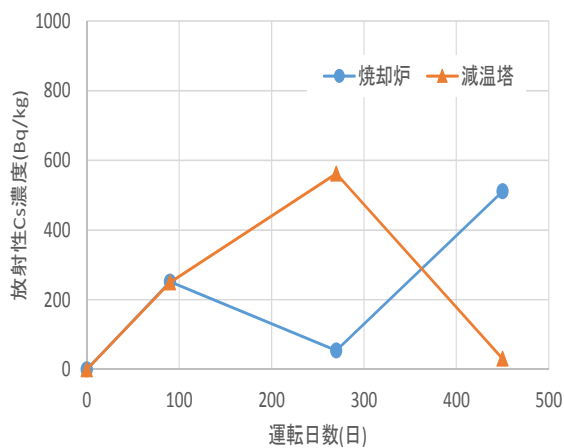


図 2.1-10 耐火物表層の放射性 Cs 濃度の経時変化

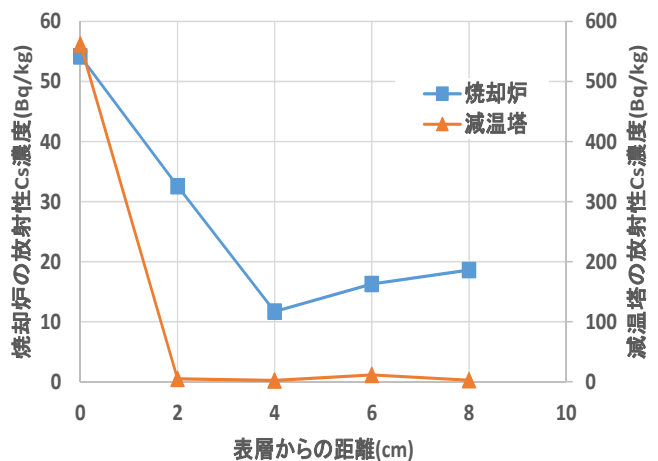


図 2.1-11 耐火物内への放射性 Cs の浸透状況 (運転日数-270 日)

これより、一般廃棄物処理施設の耐火物では数千 Bq/kg 程度を示していること²⁾に比べるといずれの箇所も耐火物への放射性 Cs の蓄積量は少ないことが分かる。本施設は除染廃棄物以外を主な処理対象としているため、被焼却物の放射性 Cs 濃度が低いことから耐火物への蓄積量が少なかったと考えられる。図 2.1-11 より焼却炉耐火物は 20Bq/kg 以下、減温塔耐火物は 10Bq/kg 以下と低濃度ながら内部まで浸透している傾向が確認された。本施設の焼却飛灰の性状分析を実施したところ、Cl 濃度が約 12%、放射性 Cs 溶出率が約 55%と一般廃棄物焼却飛灰とほぼ同等の性状³⁾であったことから、本施設では CsCl が一般廃棄物と同等に存在し、その結果、耐火物内部への放射性 Cs の浸透が進んだと考えられる。しかし、試料によっては浸透がそれほど確認されないケースもあった。本施設は処理量が少ない小型焼却炉であることから蓄積傾向が通常とは異

なる可能性があり、図 2.1-10 からサンプリング試料によるバラつきの可能性も考えられる。

②B 施設

図 2.1-12 に焼却炉外部からの空間線量率測定結果を示す。遮蔽体未使用では運転開始後から空気加熱器下部ホッパと二次燃部分では微増、それ以外は変動が多少あるものの変化しないと考えられる。遮蔽体使用では設備構造上遮蔽体を使用できなかった燃焼室と空気予熱器出口を除き微増という傾向となった。

図 2.1-13 に焼却炉内部での空間線量率測定結果を示す。遮蔽体未使用の測定結果では、運転日数 180 日まではすべて増加傾向、260 日では燃焼室のみ横ばいとなり、遮蔽体が使用できた場所での測定結果では、燃焼室は途中横ばいとなり最後微増で、他 2 か所は増加傾向を示した。

後述の耐火物への放射性 Cs 蓄積実態調査において、ガス冷却塔での放射性 Cs 蓄積量が他に比べ 1/3 から 1/2 と少ないことがわかった。しかし、空間線量率測定結果ではガス冷却塔が焼却炉内外のいずれの測定結果においても最も高い測定値を示したことから、その原因を考察するためにガス冷却塔内部の空間線量率測定と付着物採取を行った。ガス冷却塔内部の空間線量率測定結果を図 2.1-14 に示す。ガス冷却塔内部のほぼ中央付近の水平方向の空間線量率分布ではやや左側が高いような結果となり、測定場所のマンホールから垂直下方向での測定結果では、1m 下の部分で他の場所より高い結果が得られた。内部で非常に高い空間線量率の場所があり、その影響を受けているわけではなさそうなことから、付着物を採取し分析した。その結果、付着物の放射性 Cs 濃度が約 16 万 Bq/kg と非常に高かったことから、耐火物の蓄積量が一番少ないにもかかわらず付着物の影響によりガス冷却塔内部の空間線量率が一番高い結果となったものと考えられる。ガス冷却塔内部の垂直下方向 1m 地点については付着物の付着量が多いため空間線量率が高くなっているものと思われる。

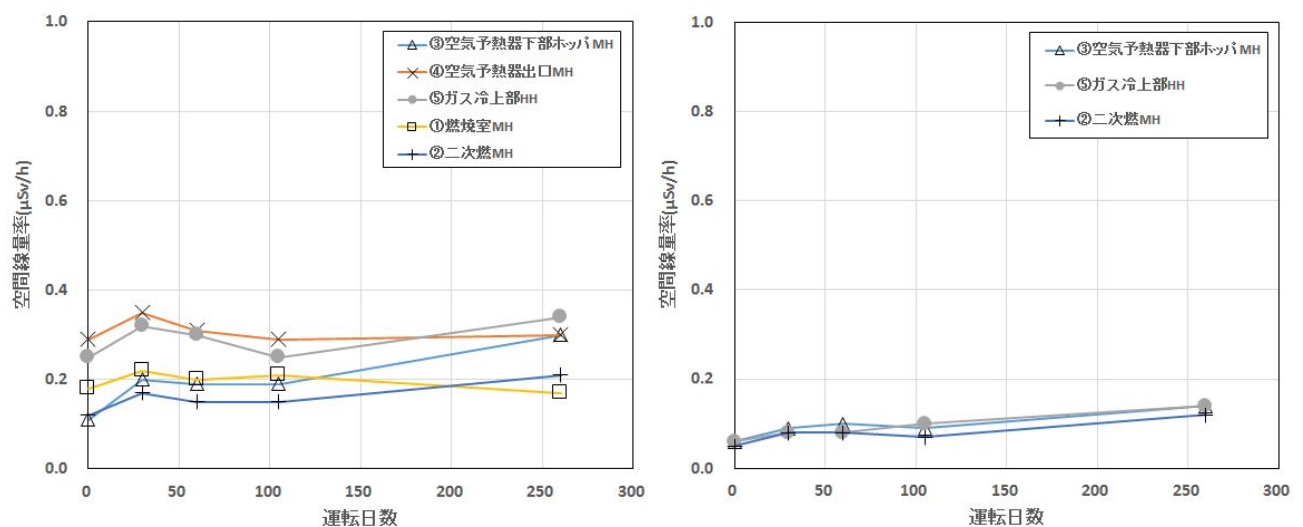


図 2.1-12 焼却炉外部空間線量率の運転日数による経時変化 (左: 遮蔽体未使用、右: 遮蔽体使用)

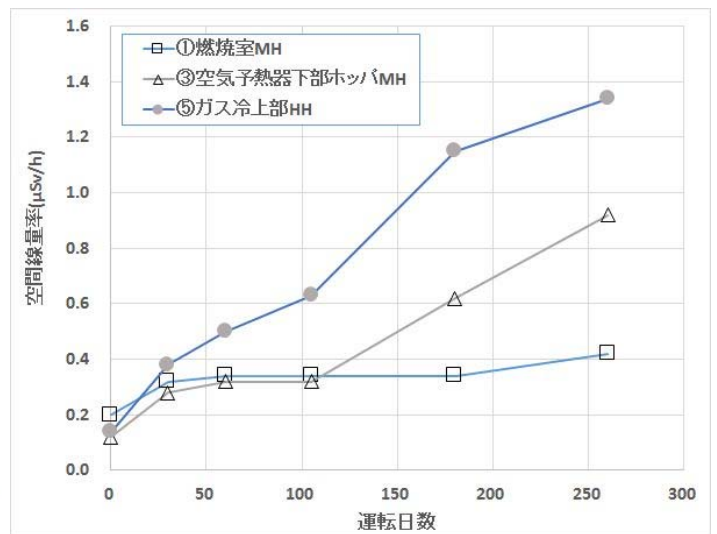
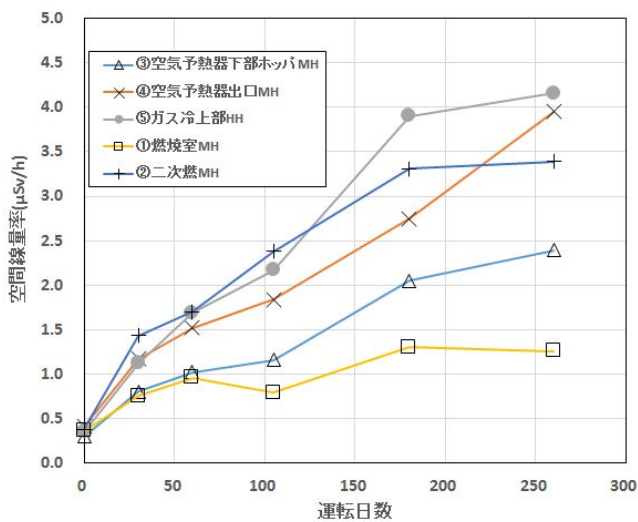


図 2.1-13 焼却炉内部空間線量率の運転日数による経時変化（左：遮蔽体未使用、右：遮蔽体使用）

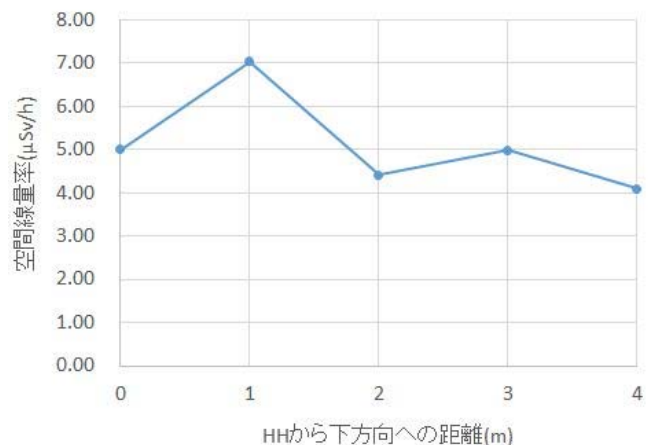
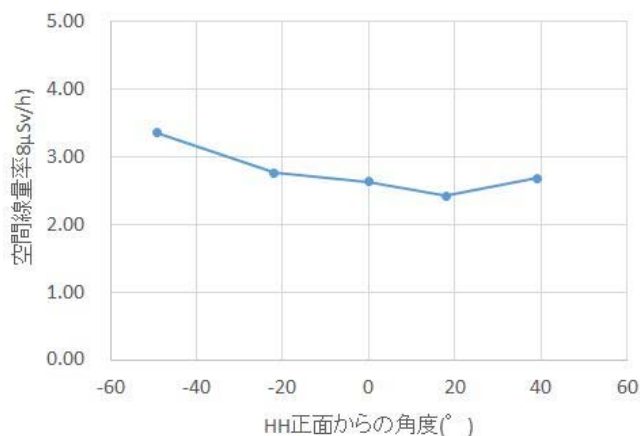


図 2.1-14 ガス冷却塔内部の空間線量率測定結果（左：水平方向、右：垂直方向）

各箇所から採取した耐火物表層の放射性 Cs 濃度の経時変化を図 2.1-15 に示す。

これより、いずれの箇所も除染廃棄物の処理が進むにつれて表層濃度が増加していることが分かる。濃度の高い除染廃棄物が処理されることで、耐火物への放射性 Cs の蓄積が進んだと考えられる。また、耐火物表層の放射性 Cs 濃度は空間線量率と概ね一致することから、耐火物への放射性 Cs の蓄積量が多いほど空間線量率が高くなると考えられる。しかし、ガス冷却塔では空間線量率が一番高いが耐火物表層の放射性 Cs 濃度は一番低いという乖離が確認された。ガス冷却塔では前述の通り耐火物表層に高濃度の付着物が確認され、付着物の有無で空間線量率に差があることが確認されたため、高濃度の付着物が付いている箇所では付着物による空間線量率への

寄与が大きく、耐火物への蓄積量は線量率ほど多くない可能性が考えられる。

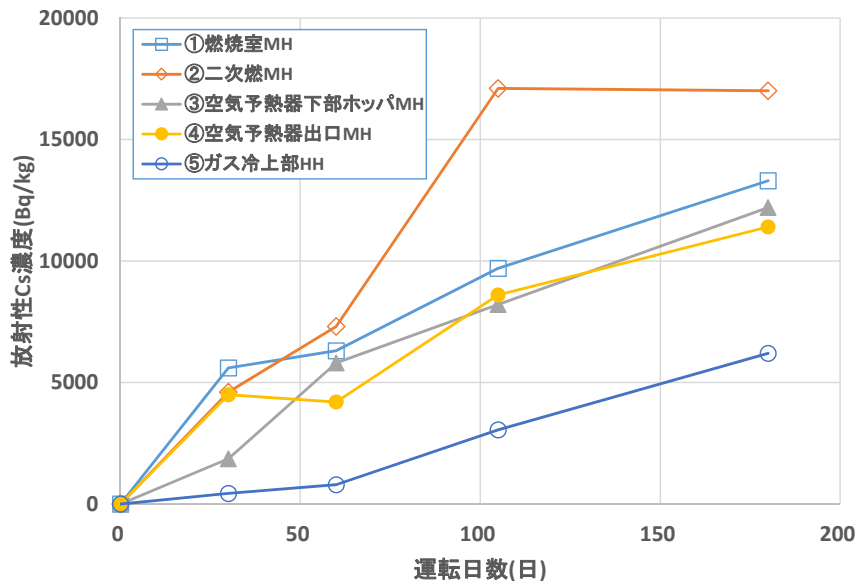


図 2.1-15 耐火物表層の放射性 Cs 濃度の経時変化

図 2.1-16、2.1-17 に燃烧室、空気予熱器下部における耐火物への放射性 Cs の浸透状況を示す。

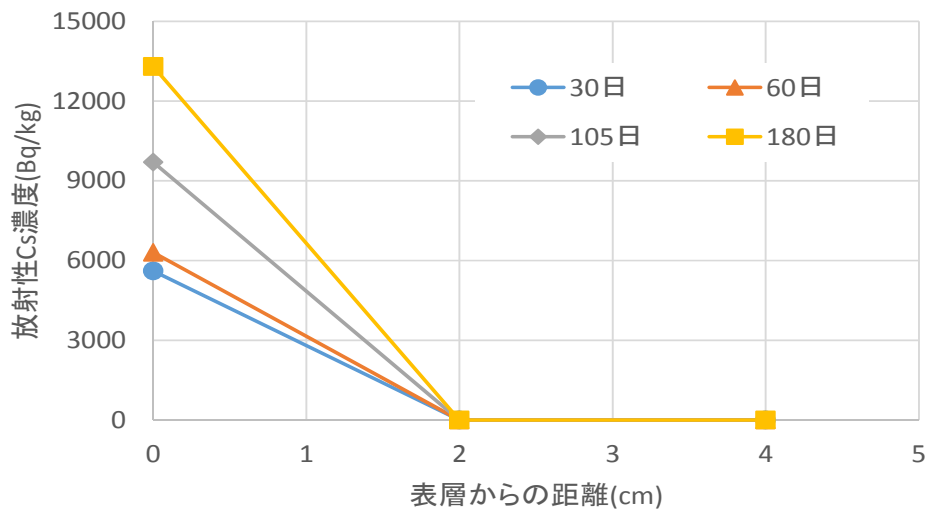


図 2.1-16 燃烧室耐火物への放射性 Cs の浸透性

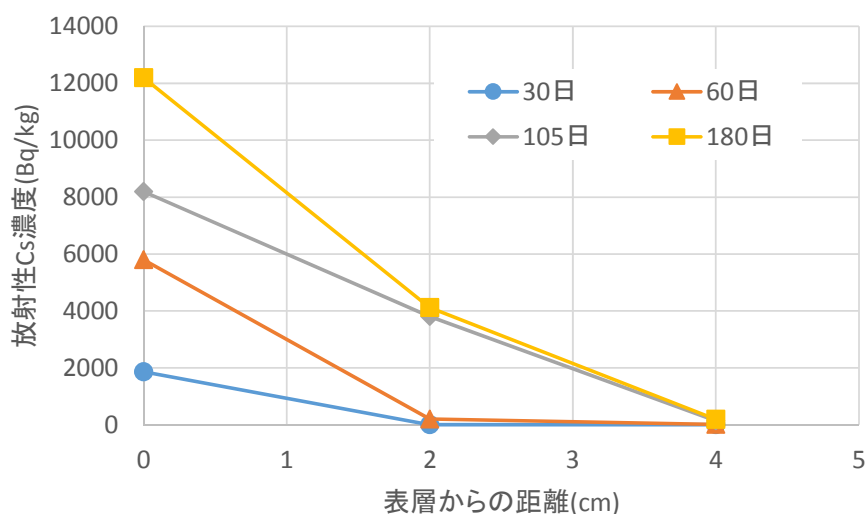


図 2.1-17 空気予熱器下部耐火物への放射性 Cs の浸透性

これより、燃焼室焼却炉の耐火物は表層のみ放射性 Cs が検出されており、内部への浸透は起こっていないことが分かる。一方、空気予熱器下部の耐火物では処理が進むにつれて内部まで浸透が進んでおり、微量ながらも 4cm まで浸透していることが分かる。しかし、浸透が進んでいる箇所でも表層から数 cm 程度であり、除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物への放射性 Cs の浸透性は低いと考えられ、曝露されるガス中に CsCl が少ない可能性が考えられる。そこで、焼却飛灰を採取し、飛灰の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出性を評価した。図 2.1-18 に焼却飛灰中の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率の推移を示す。

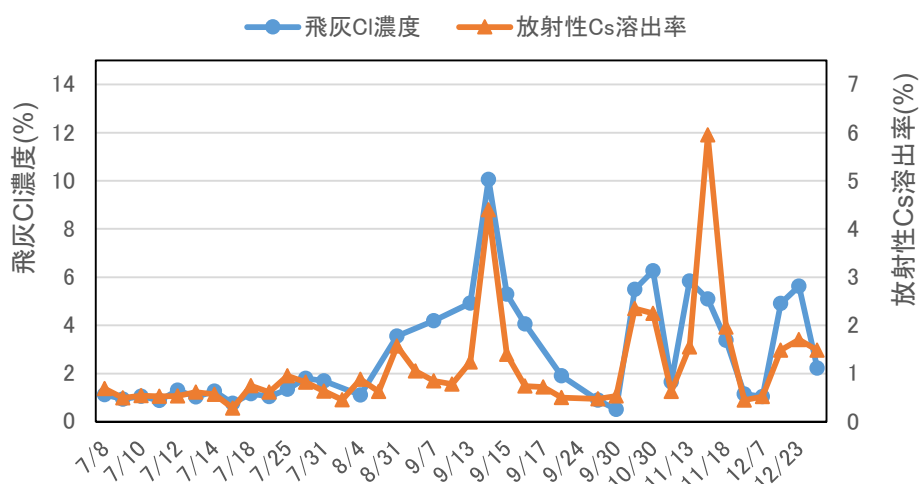


図 2.1-18 焼却飛灰中の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率の推移

処理開始 60 日(8 月末)までの Cl 濃度は 2%以下、放射性 Cs 溶出率は 1%以下、処理開始 60 日～105 日(8 月末～10 月中旬)の Cl 濃度は 1～10%程度、放射性 Cs 溶出率は 0.5～5%程度、処理

開始 105 日～180 日（10 月中旬～1 月初旬）の Cl 濃度は 1～5%程度、放射性 Cs 溶出率は 0.5～5%程度であった。処理開始初期の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率は非常に低く、CsCl がほとんど存在していないと考えられた。処理開始初期は土壌の混入を含む除染廃棄物のみの処理であったため、Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率ともに低いものであったと考えられる。処理開始 60 日以降はバラつきがあるものの処理開始初期より Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率ともに上昇傾向にあることが分かる。これは除染廃棄物のみの処理ではなく家の片づけごみ等との混焼により、被焼却物の性状が変化したことによると考えられる。

Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率が非常に低い処理開始 60 日までは耐火物への放射性 Cs の浸透もいづれの箇所も表層のみの蓄積であった。Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率が上昇傾向にある 60 日以降は空気予熱器において耐火物への浸透が表層のみから 4cm 程度まで進んでおり、Cl の存在量および Cs の存在形態が変化したことにより浸透が進んだ可能性が考えられる。

一般廃棄物焼却施設では、焼却飛灰の Cl 濃度および放射性 Cs 溶出率が高く、CsCl が多く存在していると考えられるため、耐火物内への放射性 Cs の浸透性が高いことが確認されている。今後も処理対象物の変化により焼却飛灰中の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出性が変化する可能性があるため、それに伴う耐火物への蓄積挙動の評価を行い、Cl の存在量、Cs の化合物形態による耐火物の蓄積挙動への影響を考察することが重要と考えられる。

(4)まとめ

除染廃棄物等を処理対象とした仮設焼却施設において、耐火物への放射性 Cs 等の長期的な蓄積の実態を明らかにすることを目的とし、炉内空間線量率調査および炉外空間線量率の経時変化調査、耐火物分析等の調査を行った。また、これまで調査を行ってきた一般廃棄物焼却施設において、メンテナンス工事時の炉内空間線量率調査および炉外空間線量率の経時変化調査を行い、以下の知見を得た。

- 1) 除染廃棄物以外を主な処理対象としている仮設焼却炉では、被焼却物の放射性 Cs 濃度が低いことから、耐火物への蓄積量も少なかった。
- 2) 除染廃棄物を主な処理対象としている仮設焼却炉では、処理が進むにつれて耐火物への蓄積量が増加する傾向が得られた。しかし、焼却飛灰の性状は一般廃棄物焼却飛灰と比べて、Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率ともに低く、耐火物内部への浸透性も少なかった。ただ、被焼却物の性状の変化により、耐火物内部への浸透性が変化する傾向が得られたため、Cl の存在量、Cs の化合物形態による耐火物の蓄積挙動への影響を考察する必要がある。
- 3) 焼却施設（ボイラー設備）内部と外部の空間線量率測定結果より、焼却炉外部からの空間線量率を測定することで焼却炉内部の空間線量率を推定できる可能性が示唆された。
- 4) 実焼却施設におけるボイラー設備内部の空間線量率測定結果から、放射性物質濃度が低下したごみを焼却することで耐火物に蓄積した放射性 Cs が揮散したことが原因と考えられる、自然減衰以上の空間線量率の低減が認められた。
- 5) 一般廃棄物焼却施設では耐火物への放射性 Cs 蓄積量が多いため、付着物の濃度の高いガス冷却塔より二次燃焼室などの温度の高い場所における空間線量率が高い傾向が見られたが 2)、除染廃棄物を主な処理対象としている仮設焼却炉では耐火物への放射性 Cs の浸透性が少なかったため、付着物の濃度の高いガス冷却塔が最も空間線量率が高くなるという一般廃棄物焼却

施設とことなる結果が得られた。

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：第四版）改訂版, p.178, http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r4_140414_all.pdf (閲覧日:2014年11月11日)
- 2) 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：第四版）改訂版, p.96, http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r4_140414_all.pdf (閲覧日:2014年11月11日)
- 3) 国立環境研究所：汚染焼却飛灰廃棄物等の最終処分場（遮断型構造）に用いるコンクリートに関する技術資料（第二報）第Ⅱ部, https://www.nies.go.jp/whatsnew/2014/concretetech_150220_2.pdf(閲覧日：2016年5月9日)

2.1.2 耐火物中 Cs 等の長期的挙動評価

(1) はじめに

放射性物質を含む廃棄物の焼却処理に伴い、炉内耐火物への放射性物質の蓄積が確認されており、放射性物質が蓄積した耐火物も最終的には廃棄物として処理される。これら耐火物廃材を適切に処理するためにも、耐火物中の放射性物質等の挙動の把握が必要である。ここでは、除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物における放射性物質等の溶出特性、除去特性に焦点をあて、放射性物質の挙動評価を行うことを目的とする。

(2) 方法

1) 溶出特性

溶出特性は環境庁告示第13号試験に準じて評価した。溶出試験は粒径2mm以下の耐火物試料に対し、液固比10で混合し、溶出時間は6時間とした。検液の放射性Cs濃度（Cs-134、137）はゲルマニウム半導体検出器により測定を行った。溶出試験に用いた耐火物は、除染廃棄物仮設焼却炉から採取した耐火物である。

2) 除去特性

除去特性は、炉内の空焼きによる耐火物中の放射性物質のクリーニングを想定した加熱試験を行い、試験前後の放射性Cs濃度、重量変化量から算出した放射性Cs量（Bq）から除去率を算出する方法により評価した。加熱試験に用いた耐火物は、除染廃棄物仮設焼却炉および一般廃棄物焼却炉から採取した耐火物である。加熱試験の条件は、電気炉内に2mm以下に破碎した耐火物を約10g設置し、加熱温度を800、1000℃（一部で600℃）、加熱時間を4時間とした。

また、塩化物（NaCl、KCl）を添加した加熱試験を行い、塩化物の添加効果を評価した。試験条件は、電気炉内に塩化物を重量比で10～30%添加した耐火物を約10g設置し、加熱温度を800、1000℃、加熱時間を4時間とした。除去率は同様に、試験前後の放射性Cs濃度、重量変化量から算出した。

(3) 結果および考察

1) 溶出特性

図 2.1-19 に施設 B で採取した耐火物表層からの放射性 Cs 溶出率の経時変化を示す。

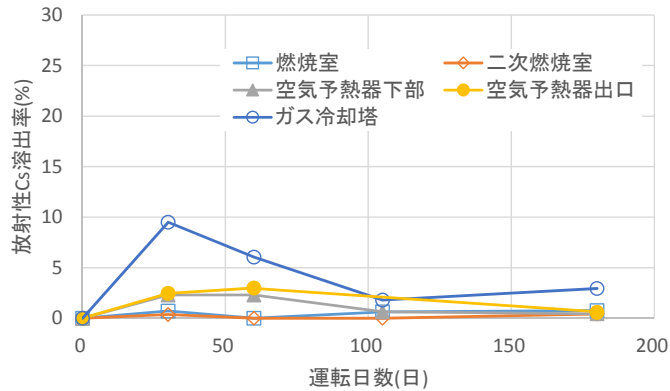


図 2.1-19 耐火物表層の放射性 Cs 溶出率の経時変化

これより、放射性 Cs 溶出率はいずれも 10%以下であり、除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物の放射性 Cs 溶出率は低いと考えられる。また、耐火物表層の放射性 Cs 濃度は処理が進むにつれて増加する傾向が見られたが、放射性 Cs の溶出性については大きな変化は認められなかった。施設 B の焼却飛灰の性状は、処理開始 60 日（8 月末）までの Cl 濃度は 2%以下、放射性 Cs 溶出率は 1%以下、処理開始 60 日～105 日（8 月末～10 月中旬）の Cl 濃度は 1～10%程度、放射性 Cs 溶出率は 0.5～5%程度、処理開始 105 日～180 日（10 月中旬～1 月初旬）の Cl 濃度は 1～5%程度、放射性 Cs 溶出率は 0.5～5%程度であった。このことから、焼却飛灰中に CsCl がほとんど存在していないと考えられるため、耐火物表層に蓄積している Cs も難溶性であったと考えられる。

図 2.1-20 に耐火物内部への放射性 Cs の浸透が確認された空気予熱器下部における層毎の放射性 Cs 溶出率を示す。

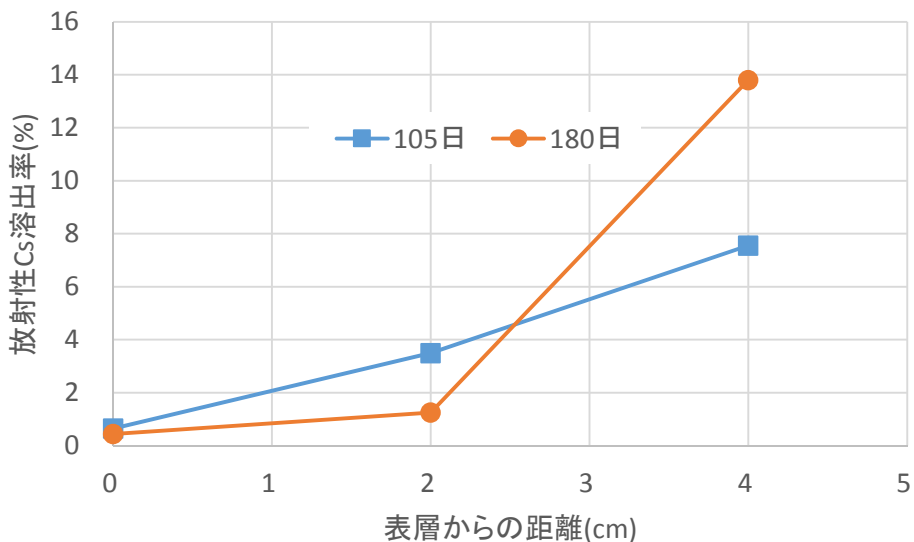


図 2.1-20 層毎の放射性 Cs 溶出率(空気予熱器下部)

これより、内部に行くにつれて放射性 Cs 溶出率が上昇していることが分かる。このことから、

CsCl の存在量が少ないと考えられる除染廃棄物仮設炉においても、耐火物内部には CsCl 態で浸透し、内部温度が低いことにより耐火物成分との反応が進まず CsCl 態のまま蓄積していると考えられる。また、空気予熱器下部では Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率が非常に低い処理開始初期は耐火物への放射性 Cs の浸透が表層のみであったが、Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率が上昇傾向を示すにつれ、耐火物への浸透が 4cm 程度まで進んでおり、Cl の存在量および Cs の存在形態が変化した可能性が考えられる。現状では、4cm 程度までの浸透であるが、今後も処理対象物の変化により焼却飛灰中の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出性が変化する可能性があり、それに伴って耐火物への浸透および溶出性が変化する可能性が考えられる。現段階では、耐火物表層からの放射性 Cs 溶出性が低いことから、解体作業時の高圧洗浄の際に耐火物からの放射性 Cs が溶出する可能性は少ないと考えられるが、今後も経時的な蓄積挙動を調査し、Cl の存在量、Cs の化合物形態による耐火物内での溶出挙動への影響を考察することが重要と考えられる。

2) 除去特性

図 2.1-21 に施設 B で採取した耐火物表層の加熱試験結果を示す。

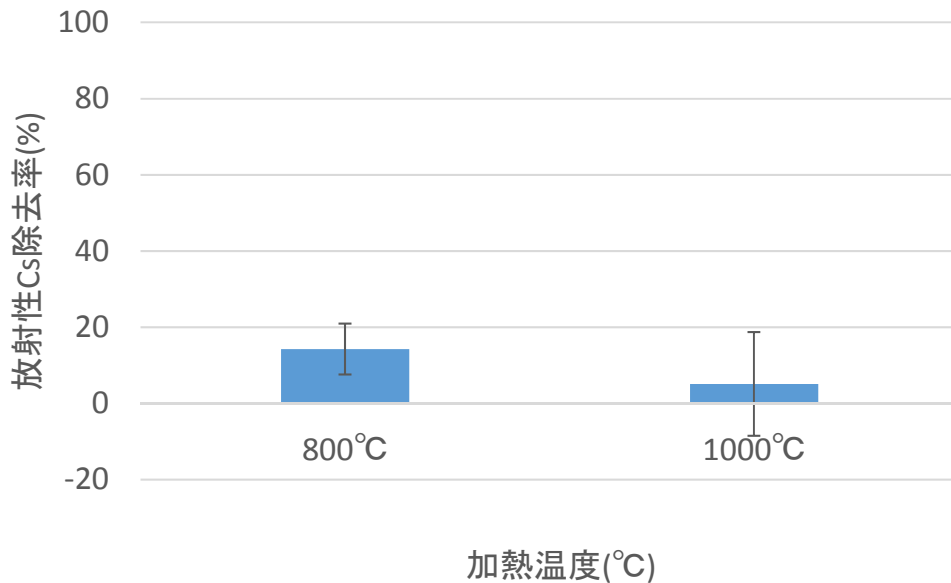


図 2.1-21 加熱試験結果(施設 B)

除去率が負値になっている条件があるが、試験前後での重量変化がなく、試験前後の放射性 Cs 濃度がほぼ同程度であることから、わずかな分析誤差で試験前後の放射性 Cs 量が逆転してしまい、負の除去率になったと考えられる。

図 2.1-21 より、いずれの加熱温度でも放射性 Cs 除去率は 20%以下と低く、除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物は単純な加熱では放射性 Cs が揮発しにくいと考えられる。これは、上述の放射性 Cs 溶出性からも分かるように、揮発しやすい CsCl が耐火物内にほとんど存在していないことから、加熱のみでは放射性 Cs が揮発しなかったと考えられる。

図 2.1-22 に施設 B とは異なる除染廃棄物仮設焼却炉で採取した耐火物の放射性 Cs 溶出率および加熱試験結果を示す。



図 2.1-22 放射性 Cs 溶出率と加熱試験結果(除染廃棄物仮設焼却炉)

これより、施設 B とは異なる除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物も放射性 Cs 溶出率が低く、いずれの加熱温度でも放射性 Cs 除去率はほとんど揮発しないという結果であった。この施設の焼却飛灰の Cl 濃度は概ね 2%以下、放射性 Cs 溶出率も概ね 20%以下と一般廃棄物焼却炉に比べて低く、施設 B 同様に焼却飛灰中に CsCl が余り存在していないと考えられるため、耐火物に蓄積している Cs も難溶性であったと考えられる。

一般廃棄物焼却炉における耐火物を用いた加熱試験の結果を図 2.1-23 に示す。

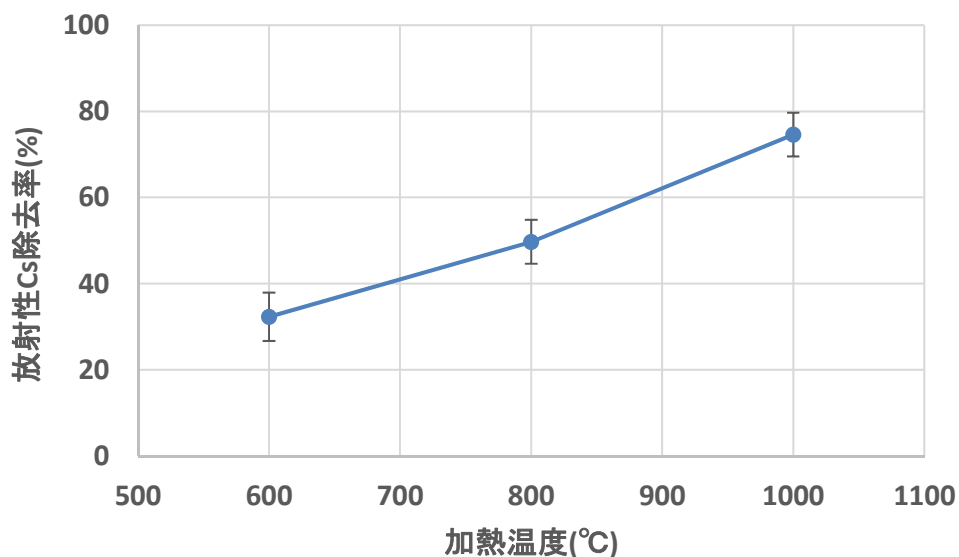


図 2.1-23 加熱試験結果(一般廃棄物焼却炉耐火物)

2014 年度の結果では、一般廃棄物焼却炉の耐火物は 800°C、4h の加熱で 60~70%程度、1000°C、4h の加熱で 80%程度の放射性 Cs 除去率が確認されていたが、2015 年度用いた耐火物でも 800°C で 50%程度、1000°C で 70%程度の放射性 Cs 除去率が確認された。2015 年度用いた耐火物の放射

性 Cs 溶出率は平均 50%程度であり、耐火物内に CsCl が多く存在していると考えられ、その結果、加熱のみで放射性 Cs が揮発したと考えられる。

また、一般廃棄物焼却炉の耐火物を用いた 2014 年度の結果では、加熱前後の放射性 Cs 溶出性を比較すると 1000℃での加熱で非溶出画分が 1/3 程度まで減少していることが確認された。非溶出画分は難溶性 Cs であるアルミノシリケート態などが考えられるが、高温での加熱により、これら非溶出性の Cs 化合物が揮発除去されたと推測される。しかし、図 2.1-21、2.1-22 からは単純な加熱で難溶性 Cs 多い耐火物から放射性 Cs が揮発する結果は得られなかった。各耐火物の元素組成を分析すると、耐火物に含まれる Cl 濃度が異なっており、図 2.1-23 の一般廃棄物焼却炉の耐火物では 5%程度、図 2.1-21、2.1-22 の除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物では 0.2~0.3%程度であった。このことから、耐火物に含まれる Cl が塩化揮発のような形で作用し、難溶性 Cs を揮発除去している可能性が考えられる。図 2.1-23 の耐火物の加熱前後の各元素の揮発率を評価すると、800℃で 60%程度、1000℃で 90%以上の Cl が揮発していることが確認され、耐火物に含まれる Cl が高温加熱により、HCl、Cl₂ などのガスを生成し、塩化揮発のような反応が起こることで難溶性 Cs が揮発したと考えられる。

以上より、耐火物からの放射性 Cs の揮発除去には Cl が影響を与えていると考えられるため、図 2.1-21、2.1-22 の耐火物に塩化物を添加した加熱試験を実施し、その効果を検証した。

図 2.1-246 および図 2.1-25 に図 2.1-21、2.1-22 の耐火物に塩化物 (NaCl、KCl) を添加した加熱試験の結果を示す。

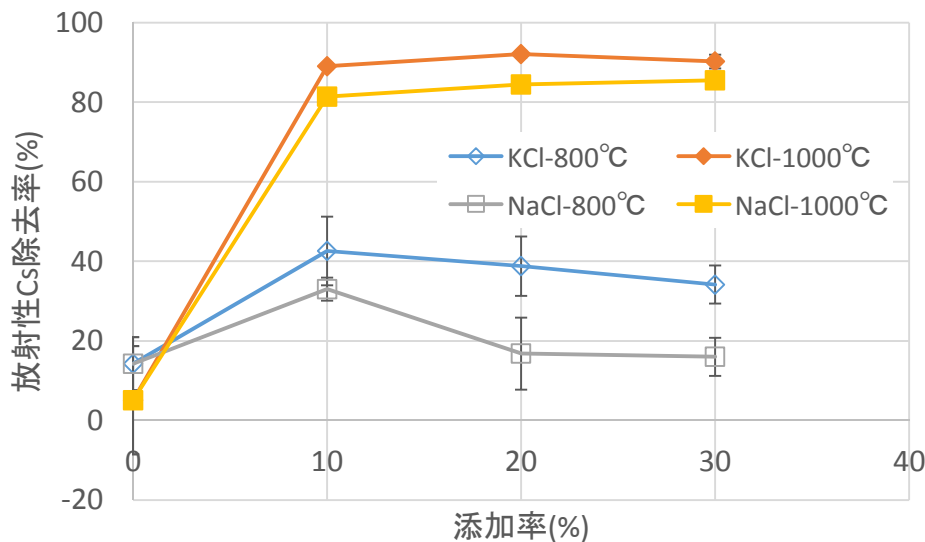


図 2.1-24 塩化物添加結果 (施設 B)

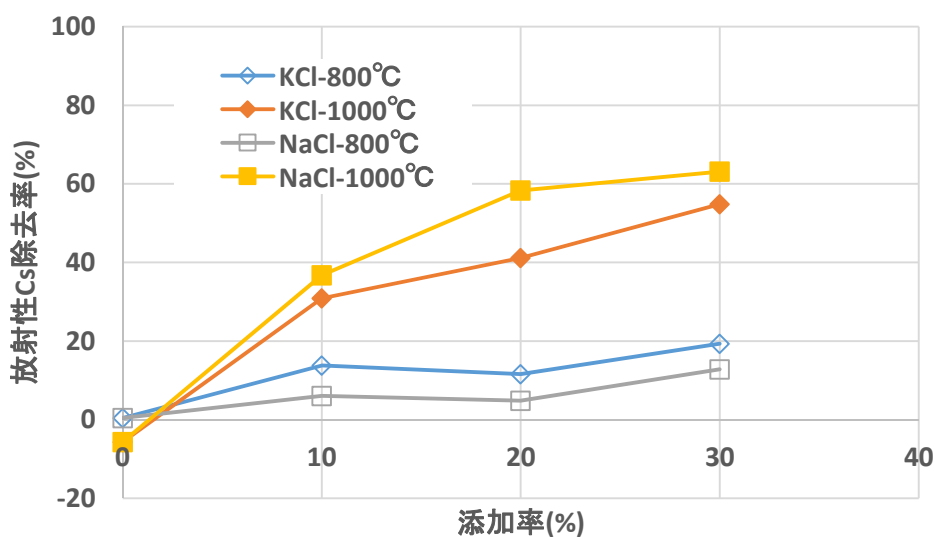


図 2.1-25 塩化物添加結果(除染廃棄物仮設焼却炉)

これより、加熱だけでは揮発除去されなかった放射性 Cs が塩化物の添加によって揮発除去されていることが分かる。Cl 量が少ない除染廃棄物系の耐火物においても、Cl 源を供給することにより、加熱によって放射性 Cs 揮発除去を促進できると考えられる。しかし、加熱温度が 800°C の場合は、いずれの耐火物も除去率が 10~40% 程度と低く、塩化物の添加効果はそこまで得られなかった。1000°C になると、いずれの耐火物も 800°C より除去率が上昇していることから、Cl による揮発除去促進にはある程度の温度が必要と考えられる。2014 度の一般廃棄物の耐火物を用いた結果でも 1000°C での加熱で非溶出画分が 1/3 程度まで減少していたが、800°C では非溶出画分の減少はほとんど確認されなかったことから、難溶性 Cs の揮発促進には 1000°C 程度が必要と考えられる。

また、図 2.1-24 と 2.1-25 では添加における除去効果に差が見られ、図 2.1-24 では 1000°C ではいずれの添加率でも 80% 以上の除去率であったが、図 2.1-25 では 30% の添加で 60% 程度の除去率であった。図 2.1-25 の耐火物は放射性 Cs 溶出率、加熱による除去率ともに非常に低い試料(図 2.1-22)であったが、元素組成の分析結果から Si が使用前の約 3% から約 15% と大幅に増加しており、土壌系の混入が多かった可能性が考えられる。また、焼却炉内の耐火物であるためクレンカや処理対象物の溶融の影響があった可能性も考えられる。一方、図 2.1-24 の耐火物は使用前後で Si 量に大きな変化はなく、土壌系の混入等は少なかったと考えられる。以上より、試料に含まれている鉍物組成等が添加効果に影響を与えている可能性があるため、耐火物の鉍物分析と合わせて評価する必要がある。

(4) まとめ

除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物における放射性物質等の溶出特性、除去特性に焦点をあて、放射性物質の挙動評価を行った。結果は以下の通りである。

- 1) 除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物は、施設の焼却飛灰の Cl 濃度、放射性 Cs 溶出率が低い場合、難溶性 Cs が蓄積されやすく、結果として放射性 Cs 溶出率が低く、加熱による揮発除去

が起こりにくい傾向であった。

2)塩化物の添加によって、難溶性 Cs が揮発促進される傾向が確認されたが、ある程度の温度が必要であった。

3)同じ除染廃棄物仮設焼却炉の耐火物であっても、処理対象物等によって、揮発除去等の挙動が異なる傾向が得られ、耐火物内の鉍物組成が影響している可能性が考えられた。

2.2 中間貯蔵・最終処分施設の長期的な維持管理・廃止手法の検討

2.2.1 放射性Cs含有廃棄物埋立処分場・貯蔵施設の長期挙動評価と廃止手法

(1)はじめに

汚染廃棄物の埋立処分場や中間貯蔵施設での覆土には、難透水性の覆土が用いられる計画となっている。10メートルを超える廃棄物や除去土壌を埋設した後、長期的な覆土の難透水性を確保するためには、面的な遮水性能を保持する必要がある。そこで、敷網工（ジオシンセティクス）を設置することによる沈下抑制効果を検討した。図 2.2-1 に敷網工を設置した廃棄物埋立処分場の一例を示す。本図では、最終覆土自体に敷網工を設置せず、廃棄物層の下にある中間覆土に対して敷網工を設置することを想定している。このような荷重条件における敷網工の不同沈下抑制効果について、実験土槽を用いた試験を実施した。

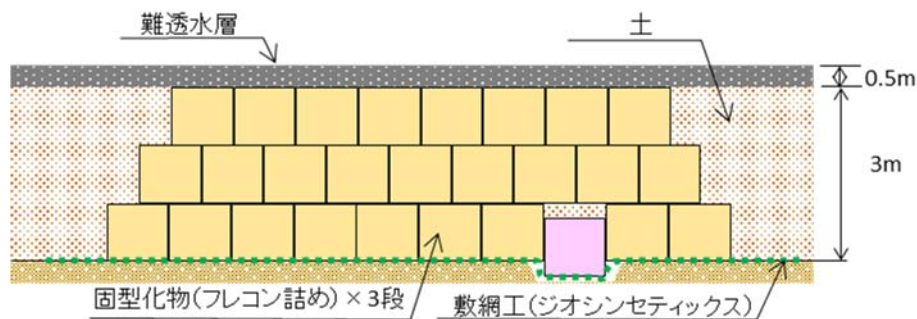


図 2.2-1 中間覆土に敷網工を設置する概念図

(2)試験方法

1) 試験用土槽

図 2.2-2 に試験用土槽の模式図を示す。試験用土槽は長さ 2.1 m、幅 0.3 m、高さ 1.0 m であり、側面は目視確認が可能なアクリル板とした（写真 2.2-1）。土槽上部には荷重条件を変化させるための油圧ジャッキを 7 台設置し、埋立物を模擬した載荷板（長さ約 0.3 m、幅約 0.3 m）を 7 枚設置した。また、土槽上部に門型架台を設置し、油圧ジャッキの反力をとれる構造とした。

土槽下部には不同沈下を模擬するための沈下板（長さ 0.4 m、幅 0.3 m）を設けた。沈下板は、概ね H=20 cm まで沈下させられるように昇降装置にはジャーナルジャッキを用い、任意の沈下速度による下降が可能な設備とした。また、沈下板部に傾きが生じないように沈下板部を箱型にするとともにジャーナルジャッキと剛結した。そして沈下板部に作用する荷重は、載荷板を介して 3 台のロードセルにより計測を行う構造とした。

地盤層厚は 0.4 m で、地盤中央部に補強材位置が固定となるような土槽構造とした。補強材の端部を固定可能にするために土槽側面には H=18 mm の開口部を設けた。

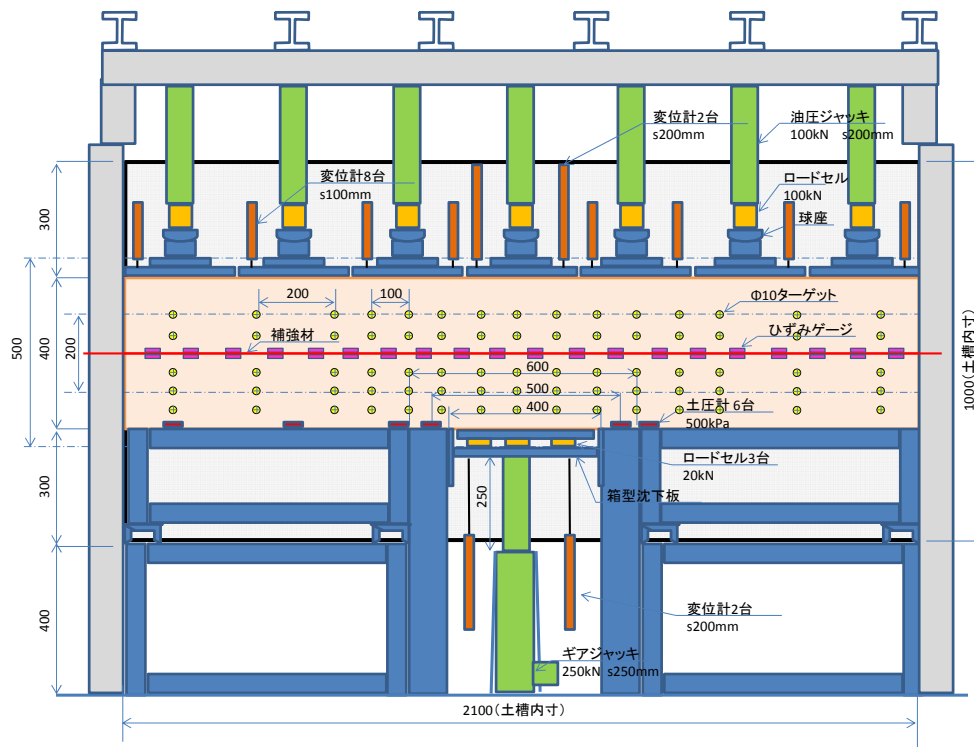


図 2.2-2 試験用土槽・センサー等配置図

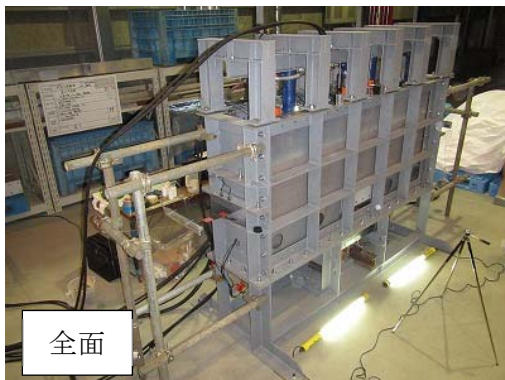


写真 2.2-1 試験状況

2) 載荷装置

表 2.2-1 に載荷装置の諸元を示す。土槽上方には油圧ジャッキによる載荷シリンダーを 7 台設置した。地盤の変形が大きくなると想定される土槽中央部付近に設置した 3 台については荷重制御が可能なシステムとし、変形に追従しながら所定の上載荷重を載荷できる仕組みとした。また、地盤の変形が小さいと想定される土槽側部付近の 4 台については、手動により上載荷重の調整を行った。沈下板の落下方法は、ジャーナルジャッキを用いて手動により行った。

表 2.2-1 載荷装置の諸元

名称	型番	性能	数量	備考
油圧ジャッキ	SLP-1020	能力：100kN ストローク：200mm	7	土槽上部
ジャーナルジャッキ (ギアジャッキ)	JJ-2525	能力：250kN ストローク：250mm	1	沈下板部

3) 補強材

表 2.2-2 に試験に用いた補強材の仕様一覧を、写真 2.2-2 に各補強材の外観、矯正状況および切断状況を示す。補強材はロール状で生産されるため、試験前にあらかじめ補強材の上におもり等を置くなどして巻き癖を取る矯正作業も実施した。

表 2.2-2 補強材の仕様

補強材種	方向	目合	引張強度
ジオ グリッド	タテ	7mm	70kN/m 以上
	ヨコ	7mm	70kN/m 以上



写真 2.2-2 補強材 (ジオグリッド)

4) 試験用砂

試験には茨城県産笠間砂 (まさ土) を用いた。写真 2.2-3 に笠間砂の外観を示す。



写真 2.2-3 笠間砂 (左：自然含水比 $w=10.2\%$ 、右：気乾 $w=1.6\%$)

5) 試験ケース

沈下抑制試験は補強材の有無をパラメータとして計2ケース実施した。表2.2-3に試験ケースを、図2.2-3、2.2-4に各ケースの模式図を示す。なお、試験では、砂は気乾させた後のものを用いた。

表 2.2-3 試験ケース

試験ケース	補強材の種類	敷砂厚さ	沈下板幅	砂の含水状態	砂の締固め度
Case1	なし	40 cm	40 cm	気乾	90%
Case2	ジオグリッド	40 cm	40 cm	気乾	90%

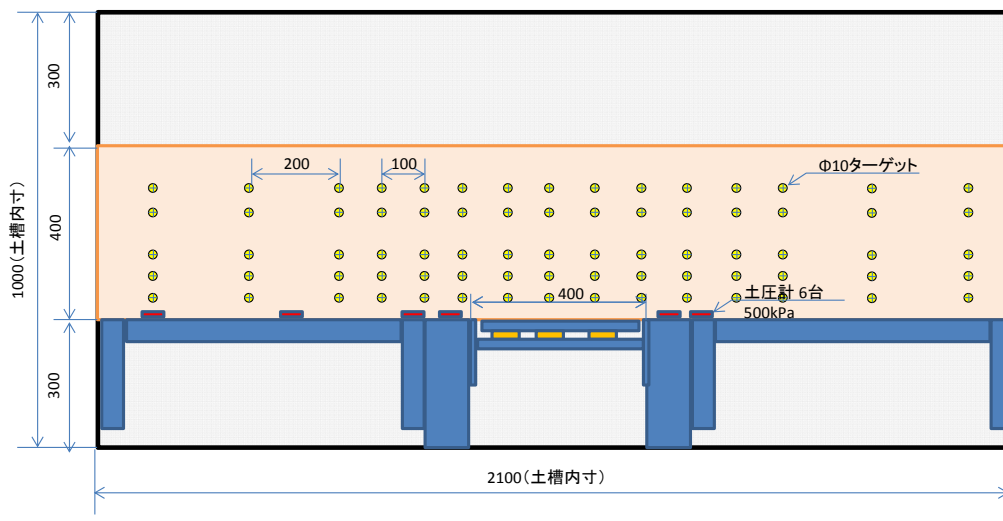


図2.2-3 Case1（補強材なし）の模式図

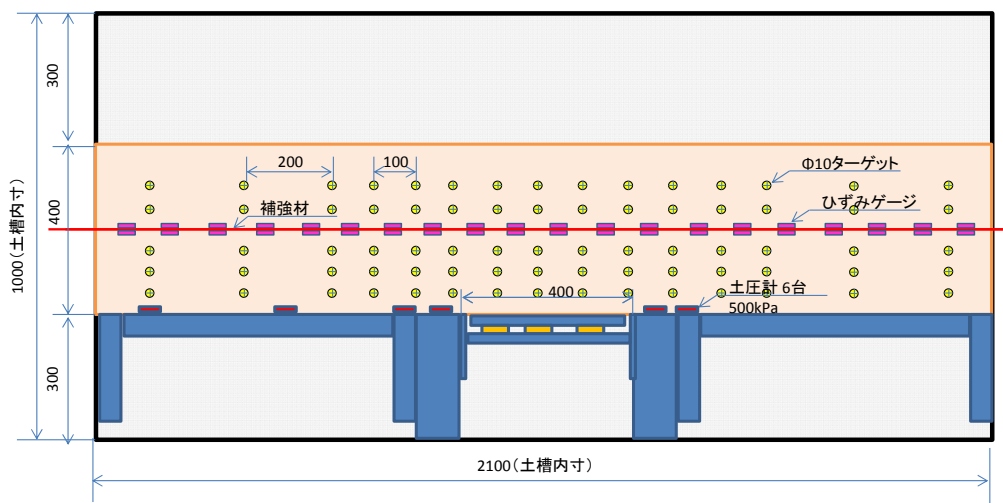


図2.2-4 Case2（補強材あり）の模式図

(3) 試験結果

1) 概況

沈下板付近の状況変化を写真2.2-4、2.2-5に示す。写真は各ケースで沈下0 mmと、沈下80 mmの状況で掲載した。補強材のないケースでは、沈下0 mmより80 mmに変化した状況においても、見かけ上、沈下板が下方に移動しただけの状況が確認された。これは、上部の地盤が沈下板の変位に追従してきているため、見た目上の変化が確認されないだけで、下部の不同沈下がそのまま地表面部に陥没を生じさせる状況である。一方、補強材ありのケースにおいては、沈下0 mmより80 mmに変化することにより、土層内に大きな空隙が確認され、土層が上下部に分離された状況となった。これは、ジオグリッドが下部の沈下に追従せず、補強材として上部土層を保持し、沈下に対抗している状況である。

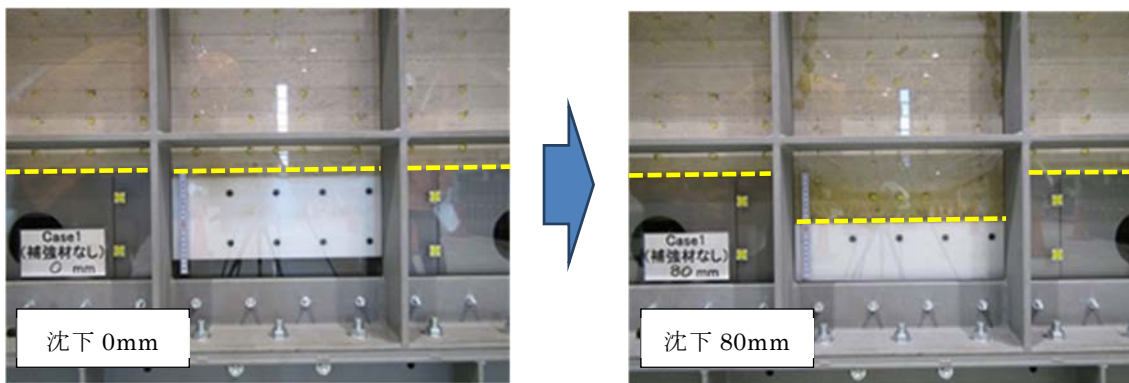


写真2.2-4 Case1 (補強材なし) の試験状況

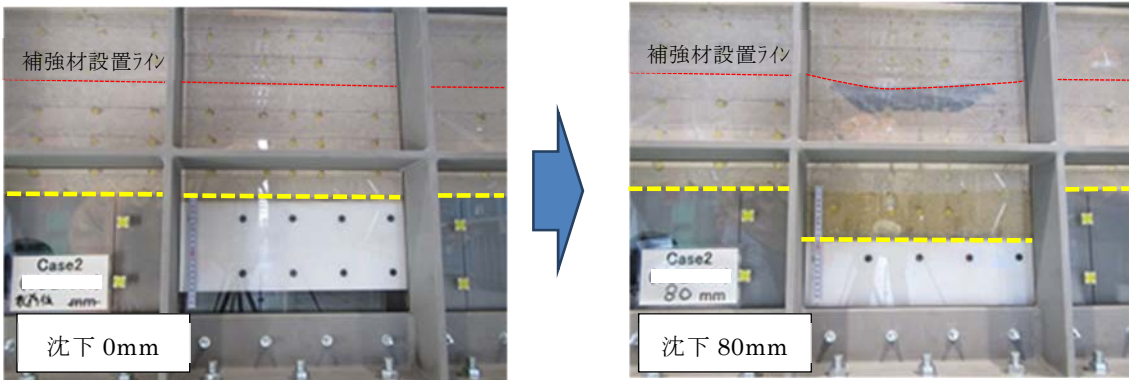


写真2.2-5 Case2 (補強材あり) の試験状況

2) 土槽中央部の載荷板変位と沈下板部変位

図 2.2-5 に土槽中央部の載荷板変位と沈下板部変位の関係を示す。補強材なし Case1 は沈下板部を -35 mm から -40 mm に下降させる段階において、載荷板変位は -12.7 mm から -29.0 mm に低下し、地盤に大きな変形が生じた。一方、補強材ありの Case2 は、いずれも沈下板変位が -80 mm に到達するまで地盤に大きな変形は生じなかった。この結果より、補強材が土層を保持し、下方の沈下を地表面部に伝達することを抑制していることが確認された。

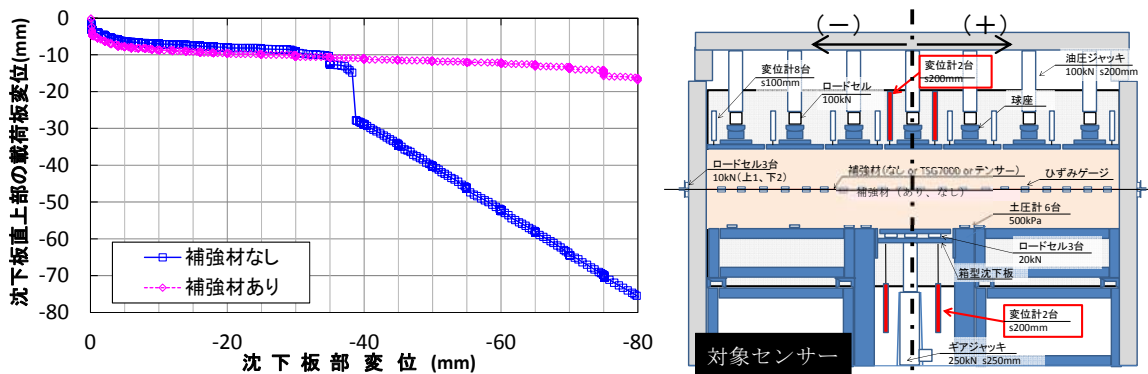


図2.2-5 沈下板変位と載荷板変位の関係

3) 沈下板部荷重と沈下板部変位

図 2.2-6 に沈下板部荷重と沈下板部変位の関係を示す。いずれのケースにおいても、沈下板を 1 mm 下降させると合計荷重は 6.0 kN 前後、2 mm 下降させると 3.0 kN 前後と沈下板部荷重は急激に低下した。また、沈下板部変位 -6 mm では 0.2 kN 以下と同様の傾向を示した。補強材なしの Case1 は、沈下板部を -35 mm から -40 mm に下降させる段階において荷重が増大しており地盤が破壊に至っていること推定された。一方、補強材ありの Case2 は沈下板変位 -80 mm に到達した時点でも荷重はほとんど変化せず、地盤の状況は安定していた。

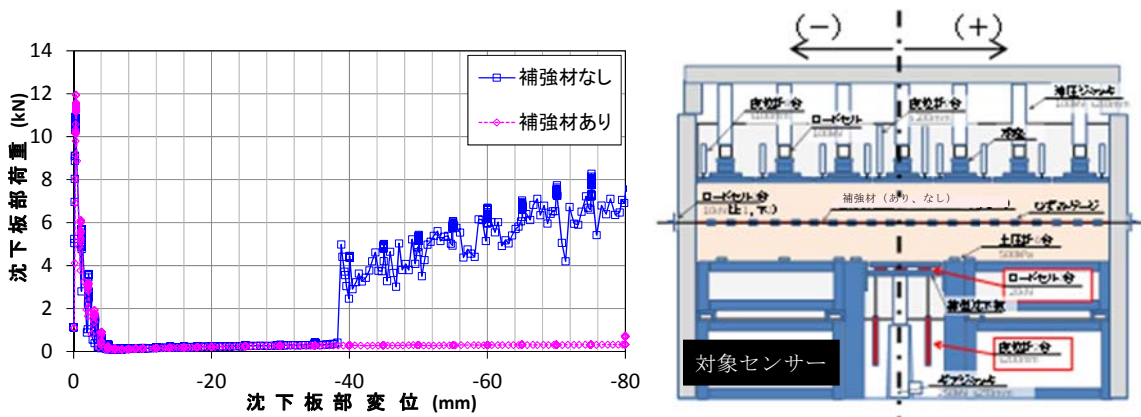


図2.2-6 沈下板変位と沈下板荷重の関係

(4) さいごに

本試験の結果、地盤の不同沈下が保管材に及ぼす影響を低減する手法として補強材の敷設が効果的であることが確認された。一方で、使用材の特性により補強効果を発揮できる範囲（土質、荷重など）の変化については、仕様決定における要求事項となるため重要であり、今後の研究において明らかにする計画である。

2.2.2 放射性 Cs 長期挙動を制御するための埋立システム評価

(1)はじめに

特定一般廃棄物や特定産業廃棄物のうち、放射性セシウム（Cs）の溶出性の大きい煤じん（焼却飛灰）を廃棄物処分場に埋立処分する際には、埋立した飛灰の上部に隔離層を設置することで雨水の浸透を抑制し、下部には土壌吸着層を設置することで溶出した放射性セシウムの拡散を防止することが義務付けられている。事故前は、このような形態をとる埋立処分基準は存在しなかったことから、これらの効果が実証的に検討された事例は無い。そこで、本研究では、汚染した焼却飛灰と隔離層、土壌吸着層から構成される処分場を模した大型実験土槽に対して、自然降雨を与えた場合の雨水浸透挙動と焼却飛灰からのセシウム等の溶出挙動を評価することを試みた。

(2)実験方法と解析方法

1)土槽実験の方法

大型実験土槽は、内寸で幅 2,400 mm、高さ 2,400 mm、奥行き 600 mm であり、土槽を正面からみた写真を写真 2.2-6 に示す。土槽前面には、厚さ 38 mm の合わせガラスを設置しており、土槽背面、側面、および底面は FRP パネルで構成されている。この土槽を図 2.2-7 に示すように 2 つのエリアに分割し、左側の幅 600 mm のエリアには焼却飛灰と下部土壌層のみから構成される仮想的な埋立処分場を模擬した（以降、実験区①とする）。一方、残りの左側の幅 1,800 mm のエリアには、焼却飛灰と下部土壌層に加え、上部隔離層を設置し、省令に示される埋立処分場の構造を模擬した実験区②を作成した。

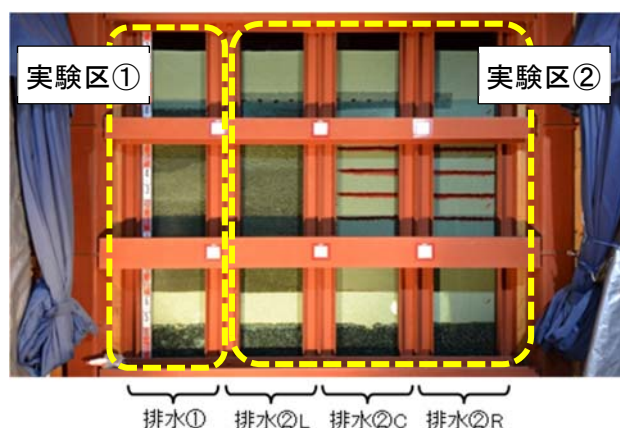


写真 2.2-6 大型実験土槽の正面写真

設置寸法等については図 2.2-7 に示す通りである。焼却飛灰については、実験場所の制約条件により、実汚染飛灰を用いることができなかったため、非汚染焼却飛灰を用いており、放射性セシウムではなく、一般的な焼却飛灰に含まれている安定セシウムを対象にした実験を行った。飛灰の周辺には、非汚染の廃棄物が埋め立てられることを想定し、安定セシウム等を溶出しない

珪砂 5 号を模擬廃棄物層として用いた。下部の土壌吸着層には、粒径 1.4~4.0 mm の顆粒ゼオライト（株式会社東北化学工業）を使用し、上部の隔離層には粒径 10 mm 以下のベントナイト砕石（ナチュラルブラケット：NB）を使用した。実験土槽最下部の砕石は、採水装置と実験層を接続し、円滑な排水を確保するための間詰め材であり、砕石 4 号を用いた。なお、砕石と下部土壌層である顆粒ゼオライトの間には、吸出防止シートを設置した。使用した材料の主な物性を表 2.2-4 に示す。

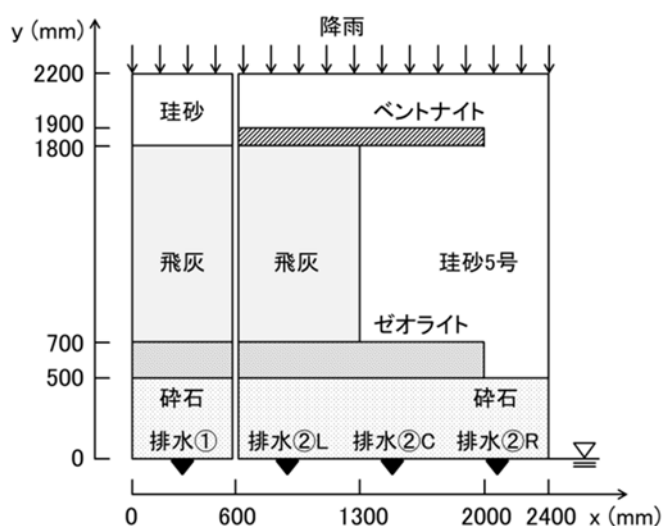


図 2.2-7 実験土槽内に設置された材料の配置図

表 2.2-4 土槽実験に使用した材料物性

	単位	焼却飛灰	珪砂 5 号	ベントナイト 砕石	顆粒 ゼオライト	天然砕石 4 号
模擬層		汚染廃棄物層	既存廃棄物	隔離層	土壌吸着層	排水材
土粒子密度	kg/m ³	2,440	2,620	2,490	2,310	2,670
自然含水比	%	26.7	0.00	22.7	0.05	—
強熱減量	%	10.0	0.24	6.02	1.11	—
最大乾燥密度	kg/m ³	—	1,540	1,390		1,530
透水係数	cm/s	—	7.3×10^{-2}	3.0×10^{-9}	2.5×10^{-2}	—
粒度 > 2mm	%	—	0	100	100	100
75um-2mm	%	—	100	0	0	0
5-75um	%	—	0	0	0	0
< 75um	%	—	0	0	0	0
比表面積	m ² /g	—	1.5	—	159	—
CEC	cmol/kg	—	0.7	—	140	—

実験開始後には、土槽上部を解放し、自然降雨を与えることで、それぞれの実験区に対して同

量の降雨量を与えた。雨水の浸透に伴う浸透挙動と、焼却飛灰から溶出される安定セシウムならびにイオン類の濃度をモニタリングすることで、下部土壌層の安定セシウム吸着能や隔離層の効果について評価した。雨水の浸透挙動については、土槽前面から観察されるトレーサー（本実験では食紅を使用して視覚的な観察を行った）の移動や各地点に埋設した土壌水分計（Delta-T Device 社製：SM150）の応答から評価し、安定セシウムやイオン類の溶出挙動については、土槽下部から排水させる浸出水の濃度分析を行うことで評価した。

2) 数値解析の方法

実験土槽内の雨水浸透挙動や、安定セシウムやイオン類の移行挙動を数値解析によって予測かのであるか検討するため、土槽実験の条件に合わせた不飽和浸透流解析、移流分散反応解析を行った。移流分散方程式では、安定セシウム、ならびにその他のイオン類を一括で表現した他イオンに 2 成分を計算対象とした。他イオンには、飛灰から溶出されるナトリウムイオン、カリウムイオン、カルシウムイオンなどが含まれるが、いずれのイオン種についても物質移動特性は類似していると仮定し、それらを 1 つの成分として扱うことで、計算負荷の軽減を図った。解析に用いた浸透流と移流分散の基礎方程式は、それぞれ、

$$\frac{\partial \theta_w}{\partial p_w} \cdot \frac{\partial (\rho_w p_w)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_w u_w) = 0$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\theta_w c + \rho_d S) = \nabla \cdot (\theta_w D \nabla c - u_w c) - \lambda (\theta_w c + \rho_d S)$$

で与えられる。ここに、 θ_w ：体積含水率 (m^3/m^3)、 p_w ：間隙水圧 (Pa)、 ρ_w ：液相の密度 (kg/m^3)、 t ：時間 (s)、 u_w ：土中を流れる液相の平均流速 (m/s)、 c ：液相濃度 (mol/m^3)、 ρ_d ：固相の乾燥密度 (kg/m^3)、 S ：固相吸着量 (mol/kg)、 D ：分散係数テンソル (m^2/s) である。不飽和浸透流はリチャーズ方程式に従っているが、不飽和の構成則には va-Genuchten モデル（以下、VG とする）を用いた。平均流速 u_w はダルシー則に従うとし、吸着量 S に対して非平衡吸脱着モデルを用いると、それぞれ次式によって与えられる。

$$u_w = -\frac{k_{rw} K}{\mu_w} (\nabla p_w + \rho_w g \nabla z)$$

$$\frac{\partial S}{\partial t} = \beta (K_d c - S) - \lambda S$$

ここに、 k_{rw} ：比透水係数、 K ：固有透過度テンソル (m^2)、 μ_w ：液相の粘性係数 ($\text{Pa}\cdot\text{s}$)、 g ：重力加速度 (m/s^2)、 β ：平衡速度定数 (1/s)、 K_d ：分配係数 (m^3/kg)、 λ ：崩壊定数 (1/s)、および z ：基準面からの高さ (m) である。基礎方程式中の各パラメーターは表 2.2-5 に示すように与えた。初期条件は、浸透流方程式に対しては土槽下部を地下水面とした静水圧分布となる間隙水圧を与え、移流分散方程式については、土槽内の濃度分布をゼロとして与えた。境界条件は土槽上部を降雨浸透境界（実験期間中に観測された降雨量）とし、土槽下部を排水境界とした。また、飛灰からの安定セシウム及び共存イオンの溶出特性、ならびにゼオライトへの吸着特性は文献の報告 1) を参照した。以上を条件に、上記の基礎方程式の解を COMSOL ver.4.3b を用いて計算した。

表 2.2-5 計算に使用した各パラメーターの条件

	単位	既存廃棄物層	Cs 廃棄物層	土壌吸着層	隔離層
材料		珪砂 5 号	焼却飛灰	ゼオライト	ベントナイト
乾燥密度	kg/m ³	1,540	1,130	693	1,260
間隙率	—	0.4	0.3	0.7	0.5
固有透過度	m ²	10 ⁻¹²	10 ⁻¹²	10 ⁻¹²	10 ⁻¹⁶
VG パラメータ α	1/m	17.7	17.7	17.7	17.7
VG パラメータ n	—	1.62	1.62	1.62	1.62
分配係数	mL/g	0	0	2 × 10 ⁶ (EC) ⁻¹	30
平衡速度定数	1/day	0	0	0.043	0.043

※ セシウムに対する分配係数は、共存イオンによる吸着阻害を考慮して電気伝導度 EC に依存する形で与えた。

(3) 結果と考察

実験期間中の降雨量を図 2.2-8 に、土槽下部からの累積排水量とその電気伝導率を図 2.2-9 に示す。実験区②では、隔離層の下に位置する排水②L と排水②C に排水は認められず、隔離層による雨水浸透の抑制効果が確認された。また、排水①よりも排水②R の水量が多いのは、実験区②に降った雨水が隔離層によって側方（右側）に誘導され、排水②R に集中したためである。浸出水中の電気伝導率は、実験区①のように飛灰埋立層を通過した場合、60,000 mS/m 程度の高い値を維持しており、多量の共存イオンが存在していることが示唆される。一方、実験区②では、排水②R から排水される浸出水の電気伝導率は比較的低い値を維持している。実験区②で、度々、約 5,000 mS/m を示しているのは、土槽内に設置したトレーサーである食紅の影響と考えられる。なお、実験期間中、隔離層を設置した実験区②の排水②L と排水②C からは排水が認められなかったことから、隔離層ならびに飛灰層を通過するような鉛直下向きの浸透流は無く、隔離層の雨水浸透抑制が機能していたと判断される。

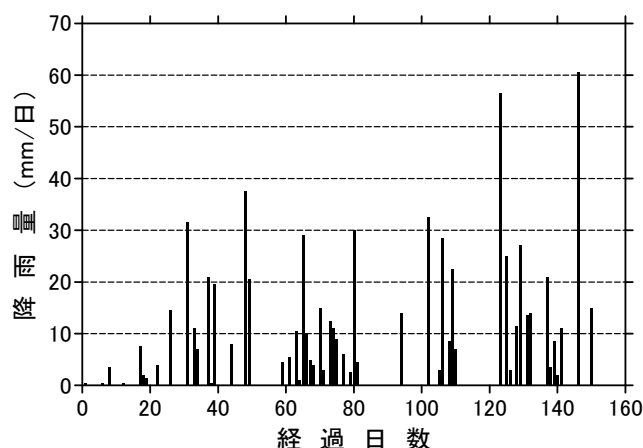


図 2.2-8 実験期間中の日降雨量分布

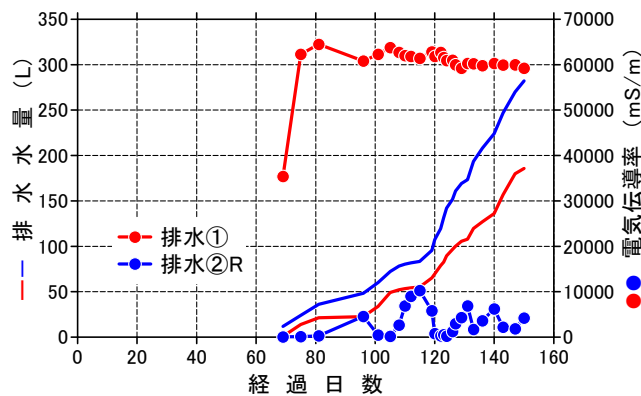


図 2.2-9 土槽からの浸出水水量と電気伝導率の変化

実験開始から 150 日経過後の土槽内の水分変化率を図 2.2-10 に示す。水分変化率は実験開始時の水分量からの変化率であり、この変化率がゼロに近いほど雨水の浸透の影響を受けていないことを意味している。降雨によって土槽内に浸透した雨水は、隔離層によって側方に移動し、その後、珪砂 5 号の模擬廃棄物を通過して鉛直に浸透している様子が確認される。本来であれば、変化率の大きい領域がもう少し広くても良いが、十分に反応していない水分センサーも確認されることから、データ整理やセンサーの検定等を見直す必要性も感じられた。

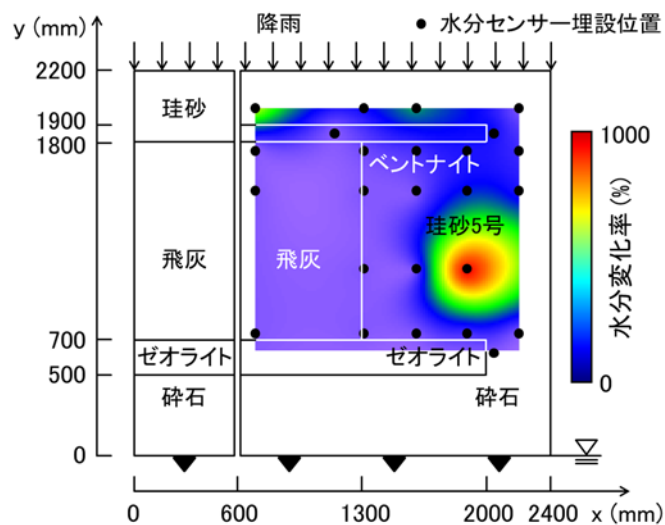


図 2.2-10 計測された水分量の変化率

COMSOL を用いた数値解析によって予測した 180 日後の水飽和度の分布を図 2.2-11 に示す。土壌上部より浸透した雨水は、隔離層であるベントナイト碎石の上部で一時的に対流し、側方(右側)へと浸透している様子が計算され、飛灰層への浸透が抑制されている様子が再現されている。上部隔離層の右端から浸透した雨水は、鉛直下向きに流れているが、水平方向への広がりもあり、飛灰層へと向かう様子も計算された。これは、不飽和浸透における動水勾配が負の間隙水圧に依存しているためであり、乾燥している飛灰側へと水が引き寄せられる現象である。省令で埋立基

準が定められた時には、既にこの現象が想定されていたため、隔離層は飛灰埋立層よりも水平方向に突き出す形状となっており、仮に浸透水が回り込んだとしても、飛灰層へと浸透水が到達しない構造となっている。本実験と数値解析により、その効果が確認されたといえる。

安定セシウムの濃度分布の計算結果を図 2.2-12 に示す。実験区①では飛灰中の安定セシウムが降雨浸透に伴って洗い出されているのに対し、隔離層のある実験区②では、飛灰埋立層への雨水浸透が抑制されていることから、初期濃度である 2.4 ppm のまま、ほぼ変化していない様子が計算された。これらの結果は実験結果とも整合しており、不飽和浸透流と移流分散反応方程式によって、埋立層内の安定セシウムの溶出挙動が計算できる可能性が示唆された。

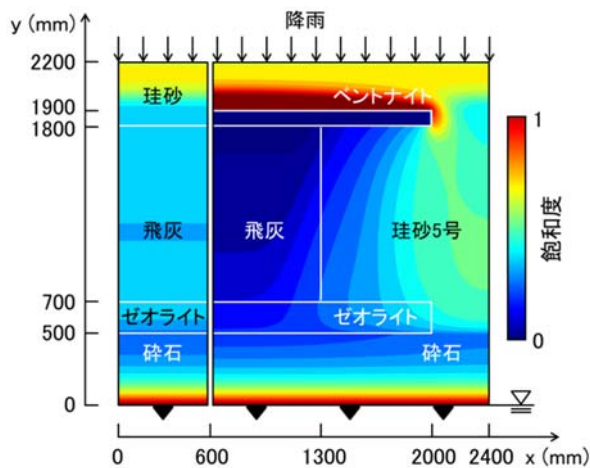


図 2.2-11 180 日後の飽和度計算結果

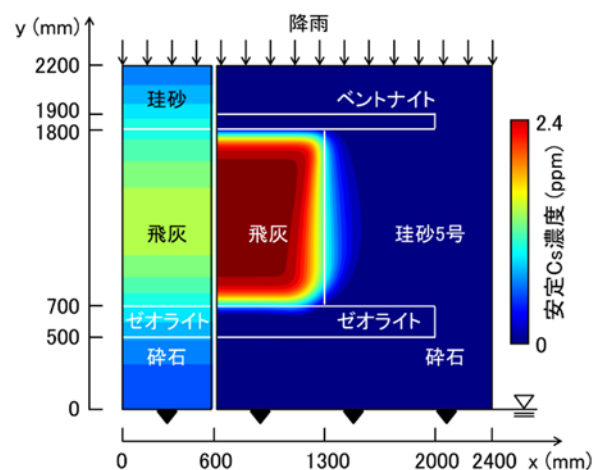


図 2.2-12 180 日後の安定セシウム濃度計算結果

(4) まとめ

溶出性の高い特定一般廃棄物の焼却飛灰埋立層を模擬した実験土槽を行った結果、上部隔離層であるベントナイト砕石によって飛灰埋立層への雨水浸透抑制が可能であること、排水量や水分センサー、数値解析により明らかにした。また、上部隔離層を飛灰埋立層よりも水平方向に突き出した形とすることの正当性も確認することができた。本土槽実験は今後も継続する予定であり、モニタリングを継続すると共に、数値解析による表現についても更に改善していく予定である。

参考文献

- 1) 石森洋行, 肴倉宏史, 蛭江美孝, 遠藤和人, 山田正人, 大迫政浩 (2012): 福島第一原発事故後に発生した焼却灰からの放射性セシウムの溶出特性と埋立地に敷設される土壤層への吸着効果, 第 33 回全国都市清掃研究・事例発表会講演論文集, pp.309-311.

3. フローストックモデルの構築、測定モニタリング技術等の確立

3.1 フローストックのリスク評価と管理システム開発

3.1.1 放射性物質に汚染された廃棄物等のマテリアルフローの把握

(1)はじめに

福島原発事故由来放射性物質の人為による非制御な拡散とそれに伴う健康リスクを低減し、無用な風評被害を防止するために、福島県内外の放射性物質の降下・沈着量が比較的大きい東日本エリアにおいて発生する廃棄物・副産物（以下、汚染廃棄物等という）と、それらを汚染した放射性物質の処理処分や再生利用等に係る、人工圏での物質フローを特定する取り組みを続けている。行政資料などで把握される汚染廃棄物等の物量フローを、汚染している放射性セシウム（以下、Cs）フローに変換するために必要な係数を取得するため、野外に設置された家屋・道路等の構造物に由来する汚染廃棄物等について、発生地域の汚染状況を代表する空間線量率と、汚染廃棄物等の種類、部材表面の汚染状況の関係を得るため、福島県の汚染廃棄物対策地域内における家屋等の屋外部材について、表面汚染密度を測定する調査を行った。

(2)方法

福島県富岡町の家屋解体廃棄物の仮置場において搬入された廃棄物の表面汚染密度を測定した。家屋等発生地点の空間線量率には放射性ヨウ素の影響を排除するため、原発事故から一定期間が経過した文部科学省による第3次航空機モニタリングの測定結果（2011年5月31日～7月2日測定）¹⁾、大熊町による町内空間線量率測定結果の平均値（2011年9月13・14日測定）²⁾、双葉町による町内における広域モニタリングの調査結果（空間放射線量率の測定結果）について（2011年7月7・14・15・21日実施）³⁾を用いた。廃棄物発生地点の空間線量率は3.32～7.00 $\mu\text{Sv/hr}$ の範囲にあった。

測定は β 線用ラギッドシンチレーションサーベイメータ（TCS-319H、日立アロカメディカル）、GMサーベイメータ（TGS-146B、日立アロカメディカル）で行い、鉛遮蔽体（コリメータ）を用いて、バックグラウンドの影響を低減した。JIS Z4504⁴⁾に準拠し、サーベイメータより得られた計数率（cpm）より、次式を用いて表面汚染密度（ Bq/cm^2 ）を算出した。なお、換算係数には β 線用ラギッドシンチレーションサーベイメータでは0.00260（ $\text{Bq/cm}^2/\text{cpm}$ ）、GMサーベイメータでは0.00262（ $\text{Bq/cm}^2/\text{cpm}$ ）を用いた。

$$\text{表面汚染密度（Bq/cm}^2\text{）} = \{ \text{測定値（cpm）} - \text{バックグラウンド値（cpm）} \} \times \text{換算係数（Bq/cm}^2/\text{cpm）}$$

得られた表面汚染密度を部材の種類（材質）および部材の表面の向き（水平または垂直）で整理し、昨年度の調査結果と併せて、それぞれ測定地点の空間線量率との関係を解析した。

(3)結果と考察

調査結果を表3.1-1に示す。表では本年度（H27年度）ならびに昨年度（H26年度）に測定で得られた表面汚染密度を2011年9月1日時点のCs-137の表面汚染密度へ減衰補正した値を表記した。

表 3.1-1 調査結果一覧

部材	年度	項目 (単位)	サンプル数	最大	最小	平均	標準偏差
プラスチック 水平	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	19	45.61	0.08	3.96	10.25
		空間線量率 (μSv/h)	19	45.00	3.65	9.25	9.96
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	7	0.62	0.16	0.31	0.14
		空間線量率 (μSv/h)	7	6.67	4.38	5.81	0.92
プラスチック 垂直	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	9	3.68	0.04	0.86	1.19
		空間線量率 (μSv/h)	9	25.00	3.65	9.32	7.01
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	2	0.17	0.16	0.17	-
		空間線量率 (μSv/h)	2	6.18	4.50	5.34	0.84
木材垂直	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	28	1.58	0.05	0.59	0.51
		空間線量率 (μSv/h)	28	19.00	1.90	8.38	5.72
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	7	0.20	0.08	0.12	0.05
		空間線量率 (μSv/h)	7	6.67	3.83	4.75	1.23
金属水平	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	25	24.78	0.21	3.97	5.66
		空間線量率 (μSv/h)	25	45.00	3.65	12.19	11.50
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	2	1.12	0.63	0.87	-
		空間線量率 (μSv/h)	2	4.65	4.20	4.43	-
金属垂直	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	39	12.09	0.11	1.06	2.08
		空間線量率 (μSv/h)	39	45.00	1.90	9.91	8.63
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	4	0.40	0.14	0.21	0.11
		空間線量率 (μSv/h)	4	6.57	4.65	5.13	0.83
コンクリート 水平	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	39	115.35	0.53	12.59	23.78
		空間線量率 (μSv/h)	39	70.00	3.65	15.21	15.17
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	4	2.17	0.10	1.06	0.86
		空間線量率 (μSv/h)	4	6.63	4.55	5.53	0.94
コンクリート 垂直	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	30	14.13	0.05	2.12	3.04
		空間線量率 (μSv/h)	30	45.00	1.90	8.93	8.90
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	2	0.46	0.41	0.44	-
		空間線量率 (μSv/h)	2	6.60	6.60	6.60	-
外壁材垂直	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	19	1.31	0.06	0.51	0.34
		空間線量率 (μSv/h)	19	25.00	3.65	12.93	7.20
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	2	0.33	0.11	0.22	-
		空間線量率 (μSv/h)	2	7.00	6.00	6.50	-
セメント瓦	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	10	14.72	0.38	7.24	4.30
		空間線量率 (μSv/h)	10	19.00	3.65	8.30	5.46
	H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	9	4.17	0.32	2.09	1.49
		空間線量率 (μSv/h)	9	6.63	3.68	5.18	1.13
塗り瓦	H26	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	8	2.66	0.28	0.93	0.76
		空間線量率 (μSv/h)	8	19.00	4.00	8.84	5.96

H27	Cs137 濃度(Bq/cm ²)	6	0.66	0.26	0.44	0.16
	空間線量率 (μSv/h)	6	6.60	3.32	5.31	1.26

測定した表面汚染密度を 2011 年 9 月 1 日時点の Cs-137 へ減衰補正した値と調査した地域の 2011 年 6-9 月期の空間線量率との関係を調べた。なお、本年度測定した部材の種類は、プラスチック（エクステリア、農業用ビニル、雨樋、波板等その他）、木材、金属、コンクリート、外壁材、セメント瓦、塗り瓦である。図 3.1-1 から図 3.1-5 に H26 年度の測定結果（空間線量率が 0~10 μSv/hr の範囲を抜粋）と併せて示した。

空間線量率が 0~10 線量率が μSv/hr の範囲では表面汚染密度と空間線量率には有意な相関関係はみられなかった。水平に設定されていた部材のほうが垂直に設置されている部材よりも、空間線量率に対する表面汚染密度が大きくなる傾向はあった。また、他の部材よりもコンクリート（材）およびコンクリート瓦の空間線量率に対する表面汚染密度が大きかった。金属（水平）を除いて、本年度調査で得られた表面汚染密度は昨年度より小さくなる傾向にあった。

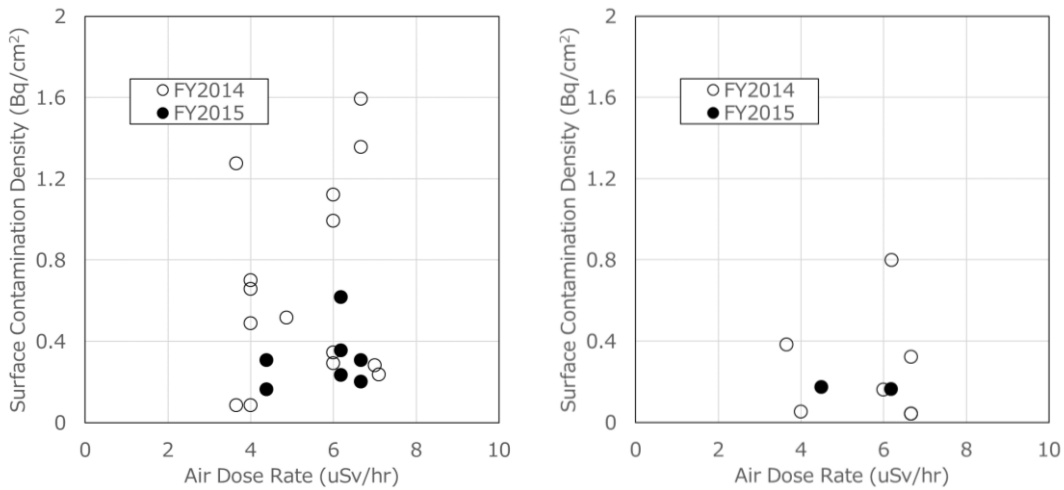


図 3.1-1 表面汚染密度（2011 年 9 月 1 日時点へ減衰補正）と空間線量率（2011 年 6~9 月期）の関係
プラスチック（左：水平、右：垂直）

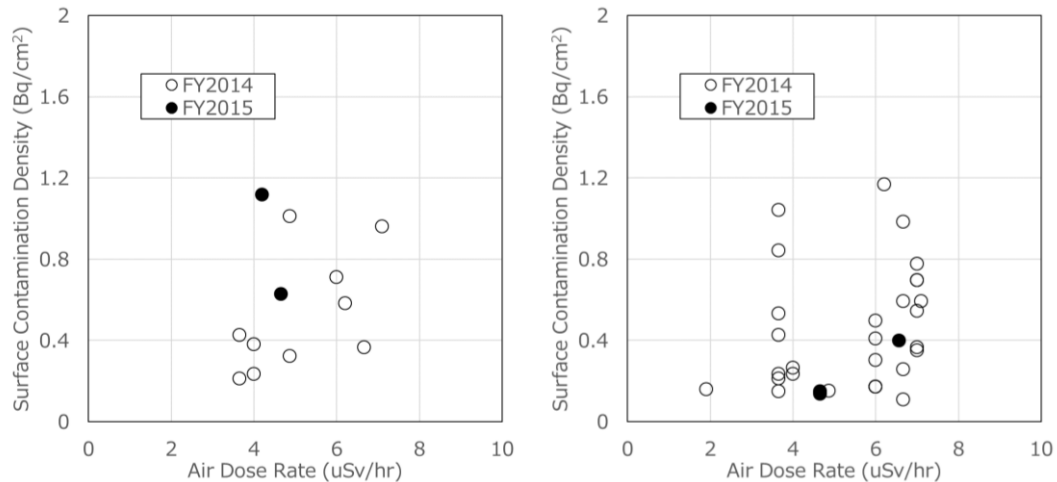


図 3.1-2 表面汚染密度（2011 年 9 月 1 日時点へ減衰補正）と空間線量率（2011 年 6~9 月期）の関係

金属（左：水平、右：垂直）

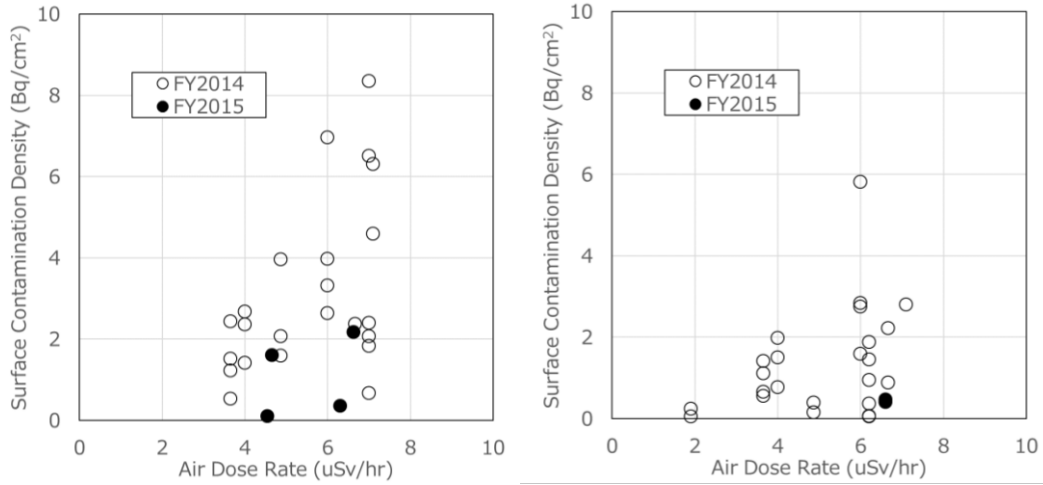


図 3.1-3 表面汚染密度（2011年9月1日時点へ減衰補正）と空間線量率（2011年6～9月期）の関係

コンクリート（左：水平、右：垂直）

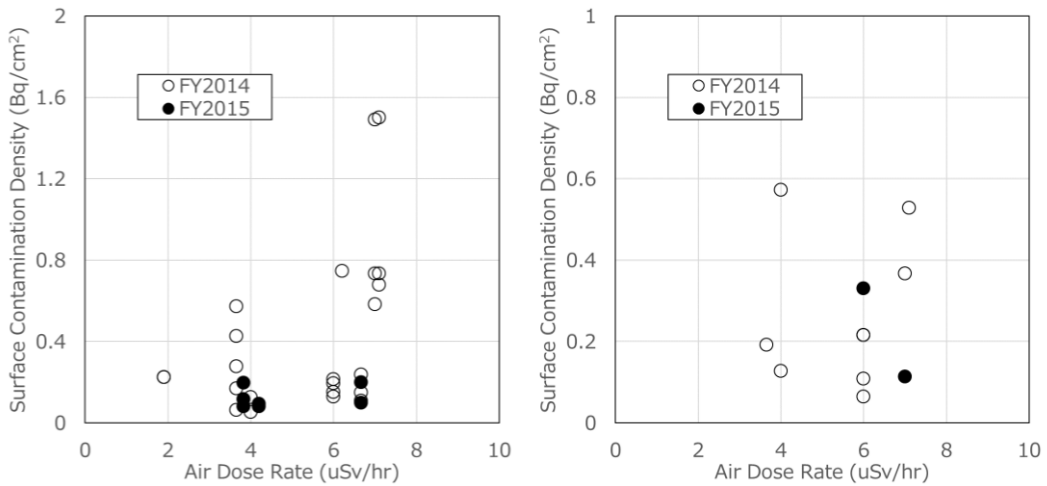


図 3.1-4 表面汚染密度（2011年9月1日時点へ減衰補正）と空間線量率（2011年6～9月期）の関係

（左：木材垂直、右：外壁材垂直）

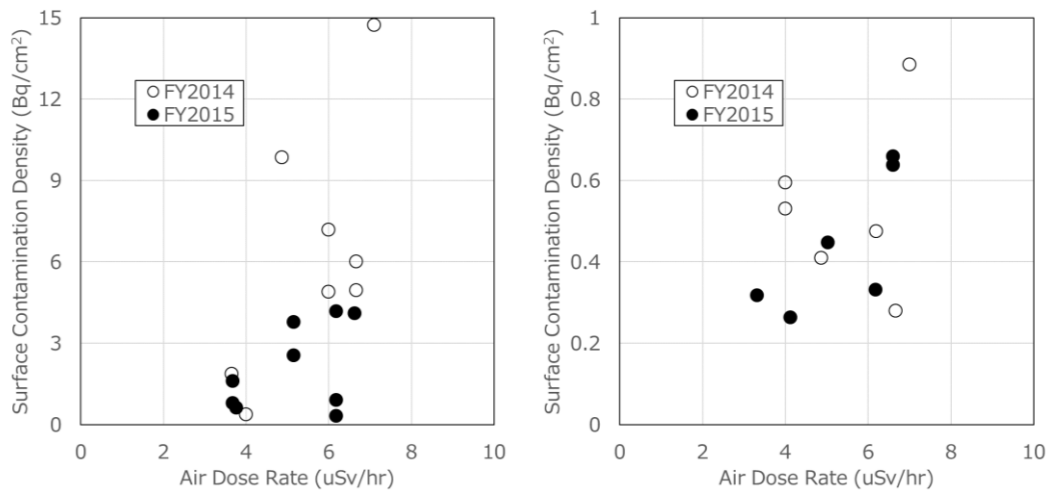


図 3.1-5 表面汚染密度（2011 年 9 月 1 日時点へ減衰補正）と空間線量率（2011 年 6～9 月期）の関係
（左：セメント瓦、右：塗り瓦）

部材の方向による表面汚染密度の違いは、事故時の放射性物質の沈着とその後の洗浄に関する部材への降雨等の当たり方、部材の種類による違いは、部材表面の放射性物質の付着・浸透特性の違いを反映していると考えられる。また時間経過による表面汚染密度の低下は、降雨等による放射性物質が洗浄または部材内部への浸透していることを示唆している。よって、解体家屋などの部材の放射性物質による汚染の程度を発生地の空間線量率から推定するためには、時間経過による放射線量の自然減衰だけでなく、その地点の降水量、部材の設置方向ならびに部材表面の材質に依存すると考えられる、洗浄・浸透率を考慮しなければならないと考えられた。

(4) まとめ

野外に設置された家屋・道路等の構造物に由来する汚染廃棄物等について、発生地域の汚染状況を代表する空間線量率と、汚染廃棄物等の種類、部材表面の汚染状況の関係を得るため、福島県の汚染廃棄物対策地域内における家屋等の屋外部材について、表面汚染密度を測定する調査を行った。

水平に設定されていた部材のほうが垂直に設置されている部材よりも、空間線量率に対する表面汚染密度が大きくなる傾向はあった。また、他の部材よりもコンクリート（材）およびコンクリート瓦の空間線量率に対する表面汚染密度が大きかった。金属（水平）を除いて、本年度調査で得られた表面汚染密度は昨年度より小さくなる傾向にあり、時間経過により降雨等による放射性物質が洗浄または部材内部への浸透していることを示唆していた。

参考文献

1) 文部科学省 (2011) 文部科学省による第 3 次航空機モニタリングの測定結果について、平成 23 年 7 月 8 日報道発表資料

- 2) 大熊町 (2011) 大熊町内空間線量率測定結果 平均値 (9月13・14日測定), <http://www.town.okuma.fukushima.jp/?p=14679>
- 3) 双葉町 (2011) 双葉町内における広域モニタリングの調査結果 (空間放射線量率の測定結果) について, <http://www.town.fukushima-futaba.lg.jp/2759.htm>
- 4) JIS Z 4504:2008, 放射性表面汚染の測定方法-β線放出核種 (最大エネルギー0.15MeV以上) 及びα線放出核種

3.1.2 人口圏における放射性物質のフロー・ストックモデルの作成

(1)はじめに

福島第一原子力発電所の事故に伴って、東日本の広範囲地域において放射性セシウム (以下、Cs) に汚染された廃棄物が発生した。環境中へ放出された放射性 Cs によるリスクの適正管理や対策実施効果の検証のため、社会システムの一部である各種処理プロセスを通じた放射性 Cs の挙動、すなわち廃棄物の処理処分や有効利用に伴ってどれだけの放射性 Cs がどこへ移動し、蓄積したのかを理解する必要がある。

昨年度は、放射性 Cs の人工圏への流入と各種処理プロセスを通じた廃棄物・副産物等への移行と蓄積量を巨視的 (マクロ的) な視点から推計・分析するための放射性 Cs のフロー・ストックモデル作成を行った。2015年度は、福島県内をはじめとする様々な事例への放射性 Cs フロー・ストックモデルの適用に向けて、プロセスデータ修正のための入力インターフェースの作成、計算結果の集計・出力プログラムを追加した計算ツールの作成を行った。

(2)人口圏における放射性物質のフロー・ストックモデルの基本的な枠組み

昨年度作成した放射性 Cs フロー・ストックモデルの基本的な構造を図 3.1-6 に示す。本モデルは大きくフローモデルとストックモデルの2つのモデルから構成される。

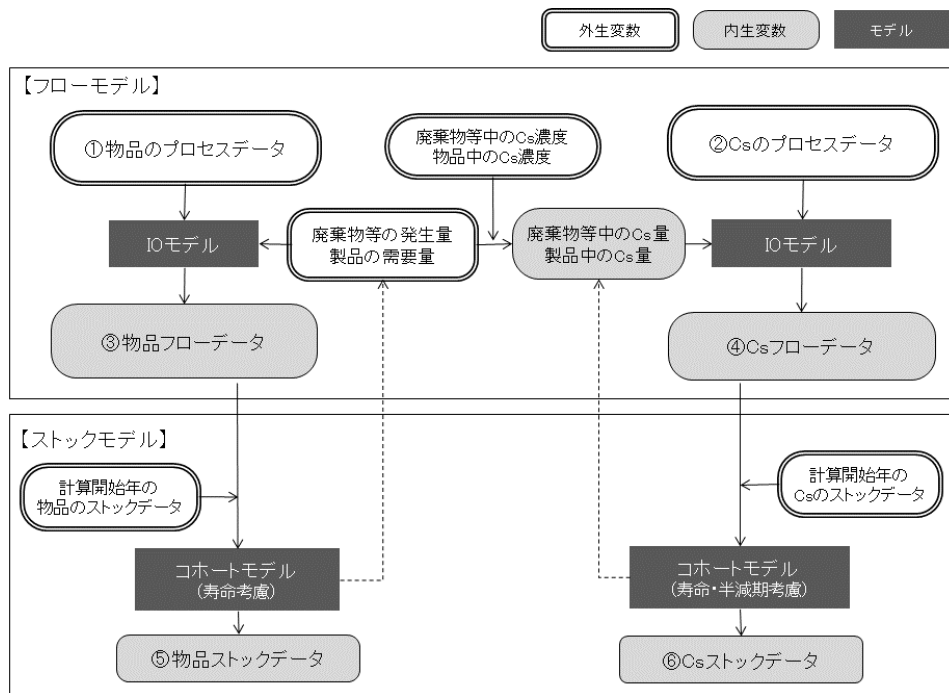


図 3.1-6 放射性 Cs フロー・ストックモデルの基本的な構造

フローモデルは、廃棄物・副産物等の物品および放射性 Cs のプロセスデータから投入産出表形式のプロセスモデルを構築しており（図 3.1-7）、対象年の廃棄物・副産物等の発生量や素材、製品の需要量およびそれらに含まれる放射性 Cs 量（総量）を外生的に与えることで、対象年に関して投入産出表形式で表示することが可能な物品と放射性 Cs のフローデータが計算されるものである。このフローモデルは、国立環境研究所が日本の物質循環を推計するために過去に作成した物質フロー・ストックモデル（橋本ら, 2012）の中の廃棄物処理プロセスモデルをベースに、廃棄物・副産物等の物品だけでなく放射性 Cs も扱えるように拡張したものである。ストックモデルは、寿命と半減期を考慮したコホートモデルとなっており、フローモデルで計算された対象年においてストックの初期値を与え、フローモデルからフローデータを入力値として受け渡しすることで物品および放射性 Cs のストックデータが計算されるものである。

- モデルは物品 (Cs) → プロセサー物品 (Cs) → プロセスの連鎖で構成される。
- プロセスには、大きく「フロー制御プロセス」と「処理プロセス」がある。
- フロー制御プロセスでは物品のフローとCsのフローは比例する。

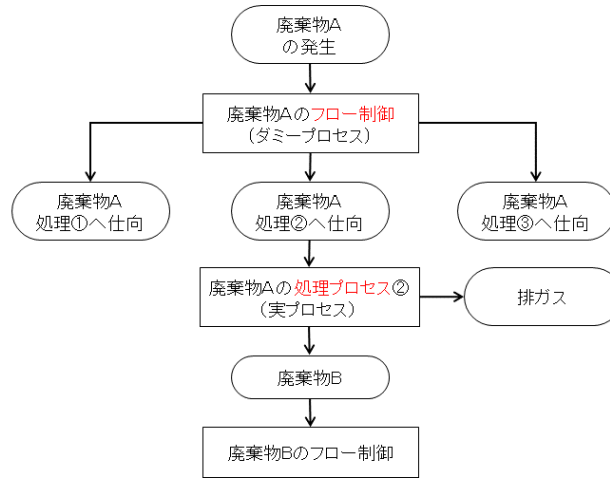


図 3.1-7 プロセスモデルの構造とプロセスデータの種類

(3) フローモデル計算ツールの構成

前項で示したモデルのうち、フローモデルを計算機上で実行するための計算ツールを作成した。計算ツールは計算プログラムが格納された Microsoft Excel® (以下、Excel) のアドインファイル、ユーザーインターフェースとなる Excel ワークシートファイル、および各種処理を行うための Microsoft Access® (以下、Access) データベースファイルから構成される。

ユーザは Excel ワークシート上でデータを作成する。アドインより計算プログラムを実行すると作成したデータは自動的に Access のデータベースファイルのテーブルにコピーされる。データは Access 上で処理され、計算結果が再び Excel ワークシートファイルに引き渡されて出力される。

表 3.1-2 に人工圏における放射性 Cs フローモデル計算ツールのワークシート構成を示す。計算ツールでは、各種文献や実態情報から作成した廃棄物・副産物等の物品およびそれらに含まれる放射性 Cs のプロセスデータ (フロー制御や処理プロセスにおける分配フロー情報) を格納した工程原単位シート (Tec シート) とフロー計算の起点となる廃棄物・副産物の発生量およびそれらに含まれる放射性 Cs 量 (総量) を格納した発生量シート (Srv シート) をもとに、連続する処理プロセスを通じた廃棄物・副産物等および放射性 Cs のフローを計算する。

表 3.1-2 人工圏における放射性 Cs フローモデル計算ツールのワークシート構成

ワークシート	ワークシート名	説明
工程原単位	Tec	各工程 (フロー制御、処理プロセス) における廃棄物・副産物および放射性 Cs の投入産出データ
物品元素組成	Elm	物品の識別に使用する情報

ワークシート	ワークシート名	説明
工程原単位 [補完後]	Tec+	各工程（フロー制御、処理プロセス）における廃棄物・副産物および放射性 Cs の分配率データ（Tec シートのデータから作成）
発生量	Srv	フロー計算の起点となる廃棄物・副産物およびそれに含まれる放射性 Cs の発生量等
物質フロー 計算結果	Res	廃棄物・副産物および放射性 Cs フローの計算結果

工程原単位シート（Tec シート）における各プロセスの投入産出データ記述の例を図 3.1-8 に示す。1つのプロセス（「ProcessArea」、「ProcessClass」、「ProcessName」の組合せ）において、「IO」列が IN の行がプロセスへの投入、OUT の行がプロセスからの算出を意味しており、「物品」、「Cs」列がプロセスにおける投入産出データを記述している（正の値が投入、負の値が産出）。工程原単位シート（Tec シート）の「物品」、「Cs」列の記載は投入産出量でもその割合でもよい。計算ツールには、記述された全てのプロセスについてこのデータをもとに分配率へと規格化したデータを計算し、そのデータを同じフォーマットに格納した工程原単位 [補完後] シート（Tec+シート）を自動的に生成するプログラムが格納されている。

発生量シート（Srv シート）の記載例を図 3.1-9 に示す。発生量シートは、フロー計算の起点となる物品の発生量およびそれらに含まれる放射性 Cs 量のリストである。必要な物品についてその発生量と含まれる放射性 Cs 量を外生的に与える（「物品」、「Cs」列にその量を入力する）。

ProcessArea	IO	GoodsArea	GoodsName	GoodsSub	#物品-2012年(1000t)	#Cs-2012年(GBq)	#Cs濃度-2012年(Bq/kg)				
101-福島県(森林)	R001	素材	1	0	IN	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	293500	293500
101-福島県(森林)	R001	素材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	-197.176	-197.176
101-福島県(森林)	R001	素材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	-87326	-87326
101-福島県(森林)	R001	素材	1	0	OUT	200-その他発生	R001	素材	発生	-91000	-91000
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	1	IN	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	1	1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	R001	素材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R001	素材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	R001	素材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	R001	素材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R002	林地残材	発生	1	1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R002	林地残材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	101-福島県(森林)	R002	林地残材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	R002	林地残材	発生	1	1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	R002	林地残材	発生	-1	-1
101-福島県(森林)	R002	林地残材	1	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	R002	林地残材	発生	-1	-1
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	IN	102-福島県(製材・合板工場)	R001	素材	発生	1.000	1.584
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	-0.153	-1.163
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	R001	素材	発生	-0.847	-4.41
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	1	1
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	1	1
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	1.000	1.000
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	-0.500	-0.500
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	-0.450	-0.450
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	-0.500	-0.500
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	1.000	1.584
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	-0.153	-1.163
102-福島県(製材・合板工場)	R04	製品発生	0	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	W001	残材(パルク)	発生	-0.847	-4.41

図 3.1-8 工程原単位シート（Tec シート）の記載例

C	ProcessArea	IO	GoodsArea	GoodsName	GoodsSub	#物品-2012年(1000t)	#Cs-2012年(GBq)	*Cs濃度-2012年(Bq/kg)
	最終需要	IN	101-福島県(森林)	R001 素材	発生	-324	-512	1,584
	最終需要	IN	101-福島県(森林)	R002 林地残材	発生	-33	-53	1,584
	最終需要	IN	110-福島県(住居等)	W003 建設廃棄物(木くず)	発生	-126	-176	1,400
	最終需要	IN	111-福島県(災害地)	W004 災害廃棄物(木くず)	発生	-152	-212	1,400
*	最終需要	IN	101-福島県(森林)	R003 間伐材	発生	0	0	0

図 3.1-9 発生量シート（Srv シート）の記載例

計算ツールのプログラムを実行することで、発生量シート（Srv シート）に与えた物品および放射性 Cs 量を起点とし、工程原単位 [補完後] シート（Tec+シート）の分配率に従って、廃棄物・副産物等の処理処分およびそれに随伴する放射性 Cs フローが計算される。計算結果は、図 3.1-10

に例を示したような物質フロー計算結果シート（Res シート）として生成される。これを任意のプロセスや物品レベルで集計することで、廃棄物・副産物等の処理処分に沿った放射性 Cs フローを投入産出表形式で表現した結果（図 3.1-11 に例）を得ることができる。

ProcessArea	ProcessClass	ProcessName	PDum	IO	GoodsArea	GoodsClass	GoodsName	GoodsSub	物品-2012年(1000Bq)	Cs-2012年(GBq)	Line
101-福島県(森林)	001-素材フロー制御	R001 素材	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	発生	323.5	512.2460365	2
101-福島県(森林)	001-素材フロー制御	R001 素材	0	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	素材・合板工場向け(発生)	-167.175425	-264.765584	3
101-福島県(森林)	001-素材フロー制御	R001 素材	1	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	チップ工場向け(発生)	-87.32457496	-138.3010815	4
101-福島県(森林)	002-選搬	001 選搬(製材・合板工場)	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	発生	-69	-109.279271	5
101-福島県(森林)	002-選搬	001 選搬(製材・合板工場)	1	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	素材・合板工場向け(発生)	167.175425	264.765584	6
101-福島県(森林)	002-選搬	001 選搬(製材・合板工場)	1	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	素材・合板工場向け(選搬)	167.175425	264.765584	7
101-福島県(森林)	003-積み下ろし	002 積み下ろし(製材・合板工場)	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	素材・合板工場向け(選搬)	167.175425	264.765584	8
101-福島県(森林)	003-積み下ろし	002 積み下ろし(製材・合板工場)	1	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	001-素材等	R001 素材	素材・合板工場向け(積み下ろし)	-167.175425	-264.765584	9
101-福島県(森林)	002-選搬	005 素材選搬(チップ工場向け)	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	チップ工場向け(発生)	87.32457496	138.3010815	10
101-福島県(森林)	002-選搬	005 素材選搬(チップ工場向け)	1	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	チップ工場向け(選搬)	87.32457496	138.3010815	11
101-福島県(森林)	003-積み下ろし	005 素材積み下ろし(チップ工場向け)	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R001 素材	チップ工場向け(選搬)	87.32457496	138.3010815	12
101-福島県(森林)	003-積み下ろし	005 素材積み下ろし(チップ工場向け)	1	OUT	103-福島県(チップ工場)	001-素材等	R001 素材	チップ工場向け(積み下ろし)	-87.32457496	-138.3010815	13
101-福島県(森林)	001-素材フロー制御	R002 林地残材	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R002 林地残材	発生	33.437	52.95614968	14
101-福島県(森林)	001-素材フロー制御	R002 林地残材	1	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R002 林地残材	チップ工場向け(発生)	-33.437	-52.95614968	15
101-福島県(森林)	002-選搬	024 林地残材選搬(チップ工場向け)	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R002 林地残材	チップ工場向け(発生)	33.437	52.95614968	16
101-福島県(森林)	002-選搬	024 林地残材選搬(チップ工場向け)	1	OUT	101-福島県(森林)	001-素材等	R002 林地残材	チップ工場向け(選搬)	-33.437	-52.95614968	17
101-福島県(森林)	003-積み下ろし	025 林地残材積み下ろし(チップ工場向け)	1	IN	101-福島県(森林)	001-素材等	R002 林地残材	チップ工場向け(選搬)	33.437	52.95614968	18
101-福島県(森林)	003-積み下ろし	025 林地残材積み下ろし(チップ工場向け)	1	OUT	103-福島県(チップ工場)	001-素材等	R002 林地残材	チップ工場向け(積み下ろし)	-33.437	-52.95614968	19
102-福島県(製材・合板工場)	004-製品生産	007 製材・合板生産	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	発生	167.175425	264.765584	20
102-福島県(製材・合板工場)	004-製品生産	007 製材・合板生産	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	発生	-25.57784003	-194.3915842	21
102-福島県(製材・合板工場)	004-製品生産	007 製材・合板生産	0	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	発生	-141.5972885	-70.47399275	22
102-福島県(製材・合板工場)	005-廃棄物等発生	008 残材(パワーク)の発生	1	IN	102-福島県(製材・合板工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	発生	25.57784003	194.3915842	23
102-福島県(製材・合板工場)	005-廃棄物等発生	008 残材(パワーク)の発生	1	OUT	102-福島県(製材・合板工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	発生	-25.57784003	-194.3915842	24
102-福島県(製材・合板工場)	006-廃棄物フロー制御	W001 残材(パワーク)	1	IN	102-福島県(製材・合板工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	処理	25.57784003	194.3915842	25
102-福島県(製材・合板工場)	006-廃棄物フロー制御	W001 残材(パワーク)	1	OUT	104-福島県(建設廃棄物等施設)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	建設廃棄物等施設向け(発生)	-12.78892002	-97.19579212	26
102-福島県(製材・合板工場)	006-廃棄物フロー制御	W001 残材(パワーク)	1	OUT	106-福島県(木材製品工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	建設廃棄物等施設向け(発生)	-11.51002901	-97.47927911	27
102-福島県(製材・合板工場)	006-廃棄物フロー制御	W001 残材(パワーク)	1	OUT	106-福島県(木材製品工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	木材製品工場向け(発生)	-1.278892002	-9.719579212	28
103-福島県(チップ工場)	004-製品生産	028 チップ生産(素材)	0	IN	103-福島県(チップ工場)	001-素材等	R001 素材	チップ工場向け(積み下ろし)	87.32457496	138.3010815	29
103-福島県(チップ工場)	004-製品生産	028 チップ生産(素材)	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	発生	-13.36065997	-10.5410158	30
103-福島県(チップ工場)	004-製品生産	028 チップ生産(素材)	0	OUT	103-福島県(チップ工場)	003-製品等	P001 製品等	発生	-79.98391499	-36.76059575	31

図 3.1-10 物質フロー計算結果シート（Res シート）の記載例

合計 / Cs-2012年(GBq)			Process Area																			最終処分	合計
GoodsArea	GoodsClass	GoodsName	101-福島県(森林)	102-福島県(製材・合板工場)	103-福島県(チップ工場)	104-福島県(焼却処理等施設)	105-福島県(堆肥)	106-福島県(木材製品工場)	107-福島県(建設資材工場)	108-福島県(紙工)	109-福島県(ボード工場)	110-福島県(住居等)	111-福島県(炭質)	112-福島県(最終処分)	200-その他日本	201-その他日本(セメント工場)	最終処分	合計					
≡101-福島県(森林)	≡001-素材等	R001 素材	512	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-512	0				
		R002 林地残材	53	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-53	0				
≡102-福島県(製材・合板工場)	≡001-素材等	R001 素材	-265	265	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
	≡002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡103-福島県(チップ工場)	≡001-素材等	R001 素材	-138	0	138	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
	≡002-廃棄物等	R002 林地残材	-53	0	53	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
		W001 残材(パワーク)	0	0	-9	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
		W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	119	0	0	0	0	0	0	0	-119	0	0	0	0	0	0				
		W004 災害廃棄物(木くず)	0	0	111	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-111	0	0	0	0				
	≡003-製品等	P005 チップ	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡104-福島県(焼却処理等施設)	≡002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	0	-97	-70	167	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
		W002 焼却灰	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
		W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	0	32	0	0	0	0	0	0	0	0	-32	0	0	0	0				
		W004 災害廃棄物(木くず)	0	0	0	102	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-102	0	0	0				
	≡003-製品等	P005 チップ	0	0	-37	37	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡105-福島県(堆肥)	≡002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	0	-87	-63	151	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
		W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
	≡003-製品等	P005 チップ	0	0	-2	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡106-福島県(木材製品工場)	≡002-廃棄物等	W001 残材(パワーク)	0	-10	-7	0	0	17	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡107-福島県(建設資材工場)	≡002-廃棄物等	W002 焼却灰	0	0	0	-44	0	0	44	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡108-福島県(紙工)	≡003-製品等	P005 チップ	0	0	-166	0	0	0	0	166	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡109-福島県(ボード工場)	≡003-製品等	P005 チップ	0	0	-14	0	0	0	0	0	14	0	0	0	0	0	0	0	0				
≡110-福島県(住居等)	≡002-廃棄物等	W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	176	0	0	0	0	0	0	-176				
≡111-福島県(炭質)	≡002-廃棄物等	W004 災害廃棄物(木くず)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	212	0	0	0	0	0	-212				
≡112-福島県(最終処分)	≡002-廃棄物等	W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	0	-223	0	0	0	0	0	0	0	0	223	0	0	0	0				
		W004 災害廃棄物(木くず)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0				
≡200-その他日本	≡001-素材等	R001 素材	-109	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	109	0	0	0				
	≡002-廃棄物等	W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-24	0	24	0	0				
	≡003-製品等	P005 チップ	0	0	-12	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	12	0	0	0				
≡201-その他日本(セメント工場)	≡002-廃棄物等	W002 焼却灰	0	0	0	-71	0	0	0	0	0	0	0	0	0	71	0	0	-71				
≡OUT	≡001-素材等	R001 素材	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-109	0	0	-109				
	≡002-廃棄物等	W003 建設廃棄物(木くず)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-24	0	0	-24				
	≡003-製品等	P001 製品等	0	-70	-51	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-121				
		P002 堆肥	0	0	0	0	-153	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-153				
		P003 未材料製品	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-17				
		P004 セメント	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-71				
		P005 チップ	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-12				
		P005 建設資材	0	0	0	0	0	0	-44	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-44				
		P006 紙	0	0	0	0	0	0	0	-166	0	0	0	0	0	0	0	0	-166				
		P007 ボード	0	0	0	0	0	0	0	0	-14	0	0	0	0	0	0	0	-14				
	≡自然圏	大気	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				
	≡人工圏	最終処分	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-224	0	0	-224				
合計			0	0	-90	-90	0	0	0	0	0												

表 3.1-3 入力インターフェースおよびプログラムのためのワークシート一覧

ワークシート	ワークシート名	説明
工程リスト	TecList	各工程の情報（名前、場所、クラス）及び下流側プロセス数を格納する。
計算対象	Target	計算対象の情報を格納する。
工程詳細	TecDetail	工程ごとの投入・産出物質の情報を格納する。
工程詳細入力	工程詳細入力	工程ごとの投入・産出物質の情報を入力するための専用シート

プログラムを実行すると、既存の工程原単位シート（Tecシート）から情報を取得し、既存の工程のリストを格納した工程リストシート（TecListシート）、各工程のプロセスデータ（投入産出データ等）を格納した工程詳細シート（TecDetailシート）、各工程のプロセスデータを入力・修正するための入力インターフェースとなる工程詳細入力シートを自動的に生成する（図 3.1-12、図 3.1-13、図 3.1-14）。

	A	B	C	D	E	F	G	H
	ProcessID	C	ProcessName	ProcessArea	ProcessClass	Lower Process Number	備考	作成日時
1						2		
2	1		発生(フロー制御)	福島県(住居等)	発生			
3	2		運搬積み下ろし	福島県(チップ工場)	運搬積み下ろし	1		
4	3		チップ生産	福島県(チップ工場)	廃棄物等発生	1		
5	4		チップ発生	福島県(チップ工場)	製品生産	1		
6	5		運搬・積み下ろし	福島県(焼却処理施設)	運搬積み下ろし	1		
7	6		焼却処理	福島県(焼却処理施設)	焼却処理	2		
8	7		焼却灰発生	福島県(焼却処理施設)	廃棄物等発生	1		

図 3.1-12 工程リストシート（TecListシート）の例

	A	B	C	D	E	F	G	H	
	ProcessID	ProcessName	GoodsNo	IO	ProcessArea	ProcessClass	Main	GoodsName	
2	1	0.発生(フロー制御)	1	IN	01.福島県(住居等)	01.発生	Main	W001_建設廃棄物(木くず)	01.福島県
3	1	0.発生(フロー制御)	2	OUT	01.福島県(住居等)	01.発生		W001_建設廃棄物(木くず)	02.福島県
4	1	0.発生(フロー制御)	3	OUT	01.福島県(住居等)	01.発生		W001_建設廃棄物(木くず)	03.福島県
5	2	1.運搬積み下ろし	1	IN	02.福島県(チップ工場)	02.運搬積み下ろし	Main	W001_建設廃棄物(木くず)	02.福島県
6	2	1.運搬積み下ろし	2	OUT	02.福島県(チップ工場)	02.運搬積み下ろし		W001_建設廃棄物(木くず)	02.福島県
7	3	3.チップ生産	1	IN	02.福島県(チップ工場)	04.廃棄物等発生	Main	W001_建設廃棄物(木くず)	02.福島県
8	3	3.チップ生産	2	OUT	02.福島県(チップ工場)	04.廃棄物等発生		P001_チップ	02.福島県
9	4	4.チップ発生	1	IN	02.福島県(チップ工場)	03.製品生産	Main	P001_チップ	02.福島県
10	4	4.チップ発生	2	OUT	02.福島県(チップ工場)	03.製品生産		P001_チップ	02.福島県
11	5	2.運搬・積み下ろし	1	IN	03.福島県(焼却処理施設)	02.運搬積み下ろし	Main	W001_建設廃棄物(木くず)	03.福島県
12	5	2.運搬・積み下ろし	2	OUT	03.福島県(焼却処理施設)	02.運搬積み下ろし		W001_建設廃棄物(木くず)	03.福島県
13	6	5.焼却処理	1	IN	03.福島県(焼却処理施設)	05.焼却処理	Main	W001_建設廃棄物(木くず)	03.福島県
14	6	5.焼却処理	2	OUT	03.福島県(焼却処理施設)	05.焼却処理		W002_焼却灰	03.福島県
15	6	5.焼却処理	3	OUT	03.福島県(焼却処理施設)	05.焼却処理		W002_焼却灰	03.福島県
16	7	6.焼却灰発生	1	IN	03.福島県(焼却処理施設)	04.廃棄物等発生	Main	W002_焼却灰	03.福島県
17	7	6.焼却灰発生	2	OUT	03.福島県(焼却処理施設)	04.廃棄物等発生		W002_焼却灰	03.福島県

図 3.1-13 工程詳細シート（TecDetailシート）の例

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J
1										
2			● プロセス		01.発生(フロー割当)					
3					01.福島県(住居等)					
4					01.発生					
7										
8			● 物品数			3				
11			削除する時に選択→		物品1	物品2	物品3			
13			● IN/OUT		IN	OUT	OUT			
15			● 主産物		主産物					
17			● 物品名称		W001.建設廃棄物(木くず)	W001.建設廃棄物(木くず)	W001.建設廃棄物(木くず)			
19			● 物品の名称(詳細)		発生	チップ工場向け(発生)	焼却処理等施設向け(発生)			
21			● 物品が産出された 国・地域・場所		01.福島県(住居等)	02.福島県(チップ工場)	03.福島県(焼却処理等施設)			
24			● 物品の所属する 大くりのクラス		002-廃棄物等	002-廃棄物等	002-廃棄物等			
27			● 下流側工程			1.運搬積み下ろし	2.運搬・積み下ろし			
28						02.福島県(チップ工場)	02.福島県(焼却処理施設)			
29						02.運搬積み下ろし	02.運搬積み下ろし			
31			● 2012年-物品		81,045	-10,127	-70,918			
33			● 2012年-Cs		81,045	-10,127	-70,918			
35			● 2012年-鉛		1	-1				
37			● 2013年-物品		108,285	-85,333	-22,952			
39			● 2013年-Cs		108,285	-85,333	-22,952			
41			● 2013年-鉛		108,285	-85,333	-22,952			
43			● *物品フロー出典		全量が移行と想定		全量が移行と想定			
45			● *Csフロー出典							
47			● *Cs濃度-2011年[Bq/kg]							
49			● *Cs濃度-2012年[Bq/kg]							

図 3.1-14 工程詳細入力シート（プロセスデータ入力インターフェース）

既存のプロセスデータを修正する場合は工程詳細入力シートを用いる。シート上部においてプロセスを選択し、下部でデータを修正する。新たにプロセスデータを追加する場合は、工程リストシート（TecList シート）でプロセスを追加した上で、工程詳細入力シートで必要情報を入力し、工程詳細シート（TecDetail シート）へ反映させる。作成したプログラムを実行すれば、この修正や追加を自動的に工程原単位シート（Tec シート）へ反映させることができる。これにより、放射性 Cs フローを計算したい対象にあわせて必要な処理プロセス等のデータを容易に構築することができるようになった。

(5) 計算結果集計・出力プログラムの作成

作成した放射性 Cs フローモデル計算ツールによる計算結果は、図 3.1-10 に示したように、設定した各プロセスおよび物品についてその投入と産出に随伴する放射性 Cs 量をリスト形式で表示したものとなる。廃棄物・副産物等の処理処分・有効利用に伴う放射性 Cs フローを得るためには、計算結果のリストを利用目的に応じた形式で集計して表示する必要がある。これを行った 1 つの例が図 3.1-11 に示したような集計、表示である。

2015 年度改良を行った計算ツールには、Excel のピボットテーブル機能を使用してこの計算結果を下記の 2 つの定型形式で集計、表示するためのプログラムを作成して搭載している。

- 1) プロセスおよび廃棄物・副産物ごとの物品および放射性 Cs の投入産出量の関係

2) 各プロセスへの廃棄物・副産物と放射性 Cs の総投入量または産出量の一覧

1)の形式で結果を集計表示した例を図 3.1-15 に示す。この形式では、行見出しを廃棄物・副産物の種類、列見出しをプロセスの種類とした表に各廃棄物・副産物および放射性 Cs の投入量(「IO」列=IN) と産出量(「IO」列=OUT) が集計される。なお、図の例では廃棄物・副産物量(物品量)が集計されているが、集計対象を放射性 Cs 量とすることで、各プロセスにおいて投入、算出される物品に含まれる放射性 Cs 量の集計表を得ることができる。

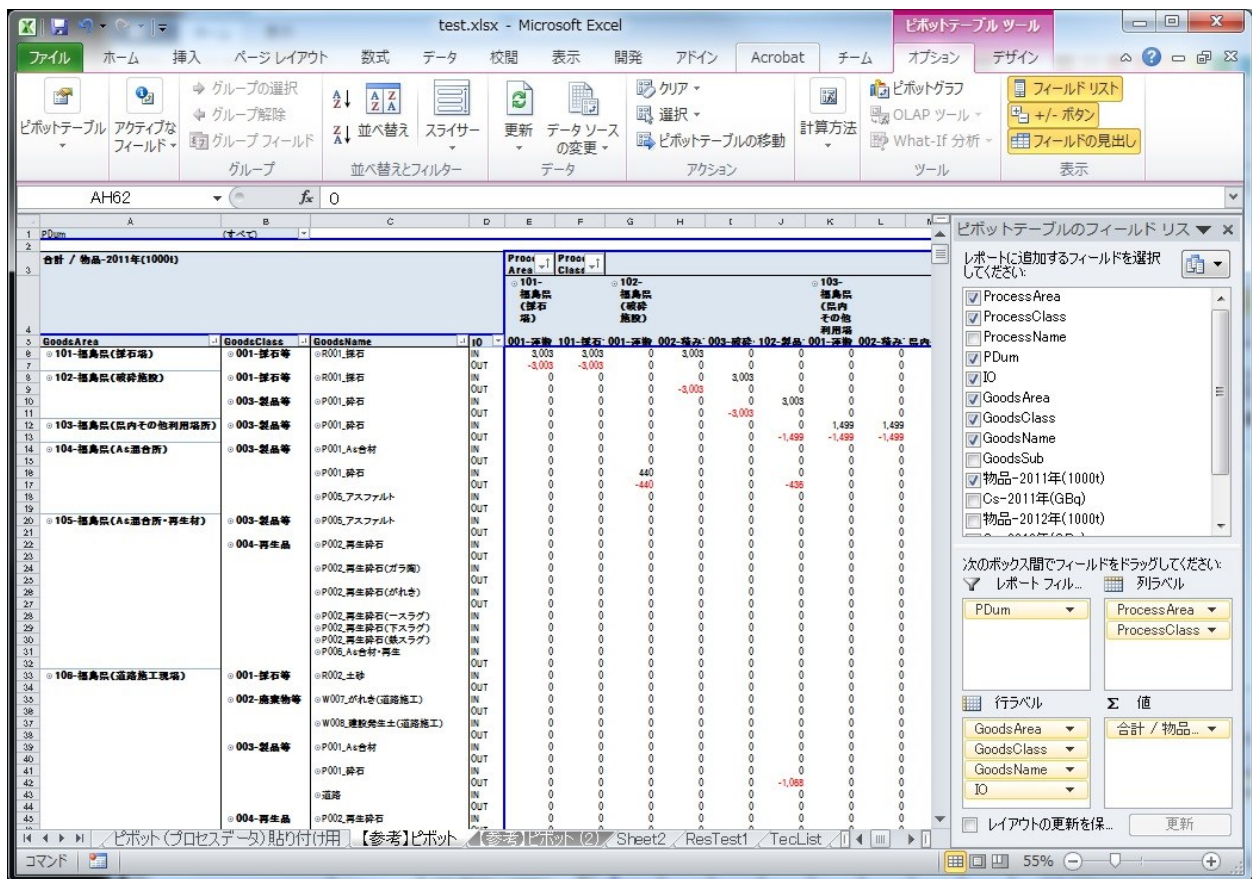


図 3.1-15 プロセス、廃棄物・副産物ごとの物品・放射性 Cs の投入産出量の関係の集計表示例

2)の形式で結果を集計表示した例を図 3.1-16 に示す。この形式では、行見出しをプロセスと廃棄物・副産物の種類の組合せとし、列方向に各廃棄物・副産物および放射性 Cs の投入量または産出量を同時に集計、表示する。放射性 Cs 量を廃棄物・副産物量で除した列を追加すれば、各プロセスにおいて投入または産出される各廃棄物・副産物の放射性 Cs 濃度を計算させることができる。なお、図の例ではプロセスへの投入量が集計、表示されているが、レポートフィルタの「IO」を IN (投入量) から OUT (産出量) へ変更することで、産出量の一覧表を表示させることができる。

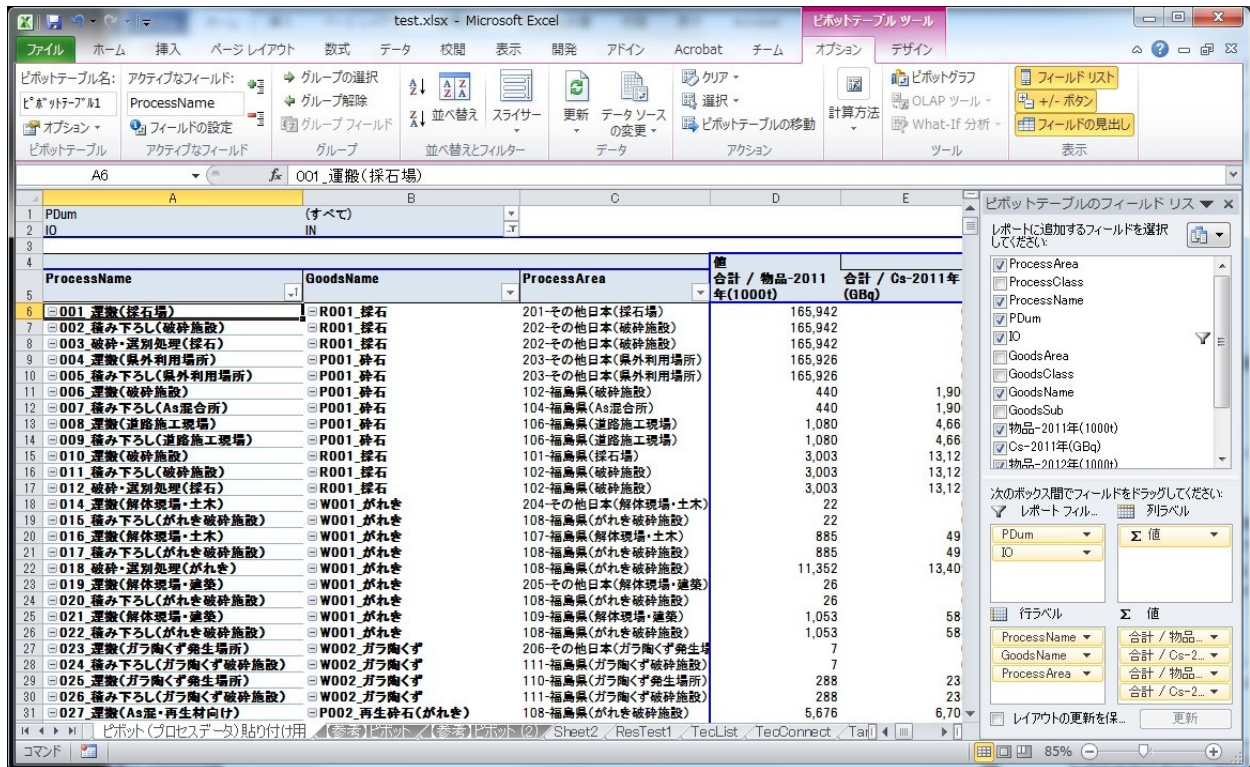


図 3.1-16 各プロセスへの廃棄物・副産物と放射性 Cs の総投入量または産出量の集計表示例

なお、作成したモデルおよび計算ツールの構造、Excel のピボットテーブル機能を十分に理解している利用者は、この定型形式による集計、表示以外にも、自らの目的に応じて任意の形式を設定して結果を集計、表示することが可能である。

以上の計算ツールの作成により、評価対象に応じてプロセスや物品の細分化等の拡張や結果の集計・出力が容易に行えるようになり、福島県内における廃棄物・副産物の処理処分や有効利用における放射性 Cs フロー・ストック分析の様々なケーススタディ実施への活用、貢献が期待される。なお、本モデルおよび計算ツールは、工程原単位シート (Tec シート) および発生量シート (Srv シート) に必要な情報を記載することで、放射性 Cs だけでなく、廃棄物・副産物等の処理処分・有効利用に伴う重金属類等の化学物質フローの分析へもそのまま適用可能である。

参考文献

橋本征二、稲葉陸太、加用千裕、高木重定、田崎智宏、南斉規介、藤井崇、藤井実、森口祐一、吉川実、大迫政浩 (2012) 日本の物質フロー・ストックモデルの構築とその適用、第 23 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集、17-18.

3.1.3 中間貯蔵施設への汚染土壌等ロジスティクシステムの構築と評価

(1)はじめに

福島県の環境回復のためには、県内の除染活動で発生した約 1,600 万~2,200 万 m³ の大量の汚染土壌や除染廃棄物を、県内に点在する集約保管されているだけで数百箇所、宅地内等の分散保管等を含めると数万箇所から、できるだけ早期にかつ安全に中間貯蔵施設へ搬入する必要がある。

車両輸送が主体となるこの大規模な輸送を計画するためには、仮置場等からの荷出しや中間貯蔵施設での荷降ろしに要する時間、渋滞の回避、車両の通行制限、運転手の休憩などの制約を考慮する必要がある。

本研究では、福島県内の仮置場等の位置データと道路網データを用いて、仮置場から中間貯蔵への輸送車両の運行シミュレーションを行い、種々の制約が輸送期間に与える影響を評価した。

(2) 方法

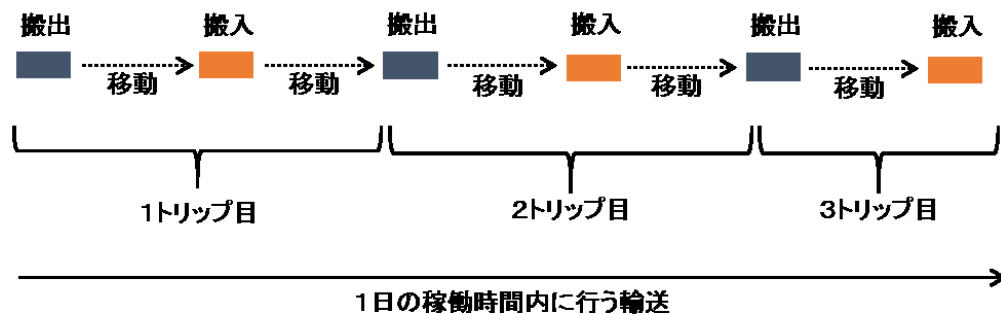


図 3.1-17 一台の車両による輸送のガントチャート

ある仮置場から一台の輸送車両が荷を搬出し移動して中間貯蔵施設へ搬入し、元の仮置場まで戻る過程を「1トリップ」とし、要する時間を搬出時間+移動時間+搬入時間+移動時間とした。一日の稼働時間における流れ（ガントチャート）を図 3.1-17 に示す。福島県内で約 250 ヶ所設定した仮置場毎に汚染土壌等の仮置量を与えた。仮置場と中間貯蔵施設予定地との間の走行速度を高速道路 70 km/時および一般道路 30 km/時とし、福島県内道路網データから、時間優先の検索モードで移動時間を求めた。搬出の時間帯は 9:00～18:00 とした。搬出と搬入に要する作業時間は同じとして、それぞれ 30 分と設定した。今回は季節・時間帯による走行速度やルートの変化、また運転手の休憩時間は今回は設定しなかった。

仮置場に配置された輸送車両毎に、搬出・搬入・移動時間の与条件を設定したガントチャートが作成し、全車両について重ねあわせることで、全輸送時間や道路交通量等を評価した。また、仮置場で同時に車両による搬入や搬出ができる「系統数」は 1 とした。なお、仮置場において、直前に入った車両の搬出作業による次の車両の待ちが発生しない最大の車両台数である「限界車両台数」は、今回の設定では、全ての仮置場の総計で 1,537 台であった。

今回は中間貯蔵施設（搬入側）の単位時間あたりの搬入台数に上限を与えるケースについて、運行シミュレーションを行った。1時間あたりの搬入車両台数を 30、60、120、240、480、960 台と設定した。また、中間貯蔵施設からみて遠方の仮置場優先で配車する場合と近場の仮置場優先で配車する場合について検討した。

(3) 結果と考察

各仮置場から車両 1 台でピストン輸送した場合の輸送完了までの総日数（全輸送期間）は 15,451 日、限界車両台数まで車両を投入した場合は 2,866 台であった。

表 3.1-4 に搬入車両台数を制限した条件下での全輸送期間を示す。1時間あたり 30～120 台ま

では搬入台数の上限を増やすと、全輸送期間は短縮されたが、それ以上では変わらなかった。搬出の順序が遠方優先でも近場優先でもこの傾向は変わらなかった。

表 3.1-4 中間貯蔵施設の単位時間あたりの搬入台数に上限を与えた場合の全輸送機関

中間貯蔵施設における 単位時間当たりの搬入 台数制限	遠方優先		近場優先	
30台	4,015	日	4,112	日
60台	3,348	日	3,223	日
120台	3,029	日	2,925	日
240台	2,880	日	2,866	日
480台	2,866	日	2,866	日
960台	2,866	日	2,866	日

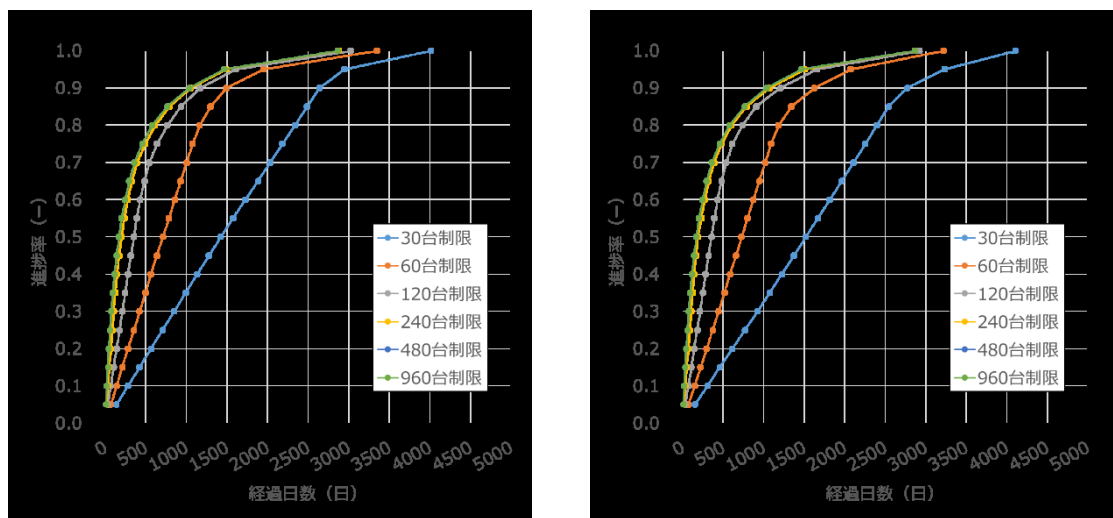


図 3.1-18 中間貯蔵施設の単位時間あたりの搬入台数に上限を与えた場合の進捗率
(左：遠方優先、右：近場優先)

図 3.1-18 にそれぞれの条件での経過日数毎の輸送の進捗率（全ての仮置場にある除染物量に対する累積搬入量の割合）を示した。進捗率が 95%に達する日数は全輸送期間の 5 割から 8 割の日数であり、搬入台数の上限が大きくなるとこの日数は短くなった。図 3.1-19 に経過日数毎の車両台数を、図 3.1-20 に搬出仮置場数を示した。搬出仮置場数が一定から減少し始める時点があり、近場優先の場合はそこで車両台数が一時的に大きくなるピークを示した。

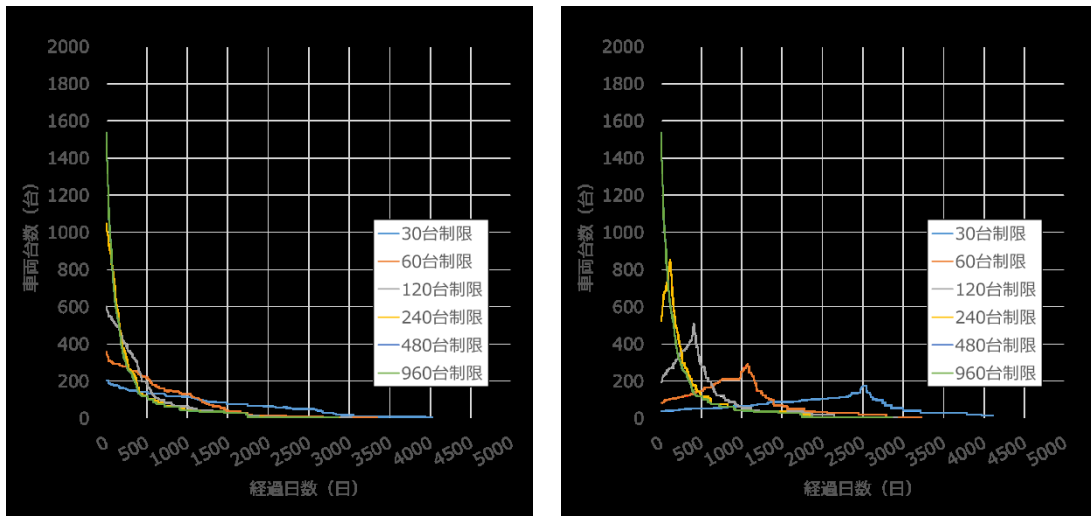


図 3.1-19 中間貯蔵施設の単位時間あたりの搬入台数に上限を与えた場合の車両台数
(左：遠方優先、右：近場優先)

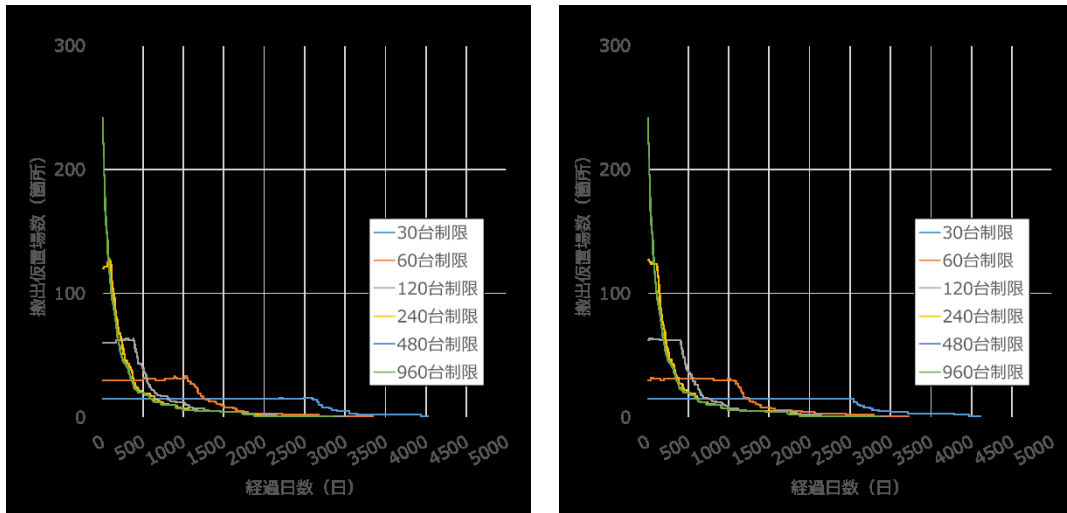


図 3.1-20 中間貯蔵施設の単位時間あたりの搬入台数に上限を与えた場合の搬出仮置場数
(左：遠方優先、右：近場優先)

(4) おわりに

今回設定した条件では、中間貯蔵施設における搬入台数上限を 120 台/時（例えば、20 ゲート設置で、1 ゲート当たり 6 台/時）とすれば、全輸送期間は 8 年程度であり、それより上限を増やしても大きな変化はなかった。搬出順序は全輸送期間には大きく影響しないが、近場優先で搬出した場合、一定期間経過後に車両台数を増やさなければならない可能性が示された。

3.2 測定モニタリング管理手法開発

3.2.1 排ガス中放射性セシウム採取方法の検証

(1) はじめに

2011年3月の福島第一原子力発電所事故後、関東地方の一般廃棄物焼却施設の焼却灰から放射性セシウム(以下、Cs)が検出される事例が同年6月下旬より報告されるようになった。これに対し、環境省は6月28日に「一般廃棄物焼却施設における焼却灰の測定及び当面の取扱いについて」を発出して焼却灰中の放射性Cs濃度の測定とその濃度に応じた対応を求めた。また8月29日に発出した「一般廃棄物処理施設における放射性物質に汚染されたおそれのある廃棄物の処理について」において、放射能モニタリングによる排ガス等の安全性の確認と住民理解促進のために結果を随時公表することが重要としている。その後、8月30日に公布された放射性物質汚染廃棄物対処特措法において、事故由来放射性物質汚染廃棄物の処理基準が定められ、例えば特定一般廃棄物や特定産業廃棄物の焼却施設等では排ガス中の放射性Cs濃度を1月に1回以上測定することとされた。

焼却排ガス中の放射性Cs濃度の測定方法について、「廃棄物関係ガイドライン第5部 放射能濃度等測定方法マニュアル」(以下、公定法という)¹⁾と「廃棄物関連試料の放射能濃度調査・測定マニュアル」²⁾では、図3.2-1に示した採取器具を用いてJIS Z 8808「排ガス中のダスト濃度測定方法」に準拠する方法(ろ紙捕集+吸収液捕集)で試料を採取し、採取した試料毎にGe半導体検出器を用いて放射性Cs濃度を測定するとしている。排ガス中の放射性Csは主にばいじん中に存在していると考えられており³⁾、ばいじんをろ紙で捕集することにより放射性Csを捕集する。吸収液捕集はろ紙が破損した場合のバックアップや、ガス態のCsが存在した場合への対応として、サンプリングトレインに組み込まれている。

公定法による焼却排ガス測定の妥当性については、大阪市⁴⁾や籠谷ら⁶⁾により検討されている。これらの検討では、管状炉中で塩化セシウムを加熱し、揮散したCsをろ紙捕集及び吸収液捕集により採取・測定しており、揮散したCsのほぼ全量がろ紙に捕集されていることが示されている。また、実際の廃棄物焼却施設での排ガス中の放射性Cs測定においても、吸収液から放射性Csが検出される例はほとんど無いことが分かっている⁵⁾。ただ、前者では純品の塩化セシウムを用いており、廃棄物や水分が共存する場合にも確実にCsがろ紙に捕集されるかは明らかにしておらず、後者ではそもそも焼却排ガス中の放射性Cs濃度が低濃度であるため、仮にろ紙を通過する放射性Csが存在していても検出できていないという可能性もある。一方で、排ガス中にガス態のCsが存在しており、公定法による採取ではろ紙を通過するのではないかとの懸念もある。

上述の背景を踏まえ、本研究では、廃棄物や水分が共存する場合においても、公定法でもCsが問題なく採取できることを確認するための検証実験を行うこととした。

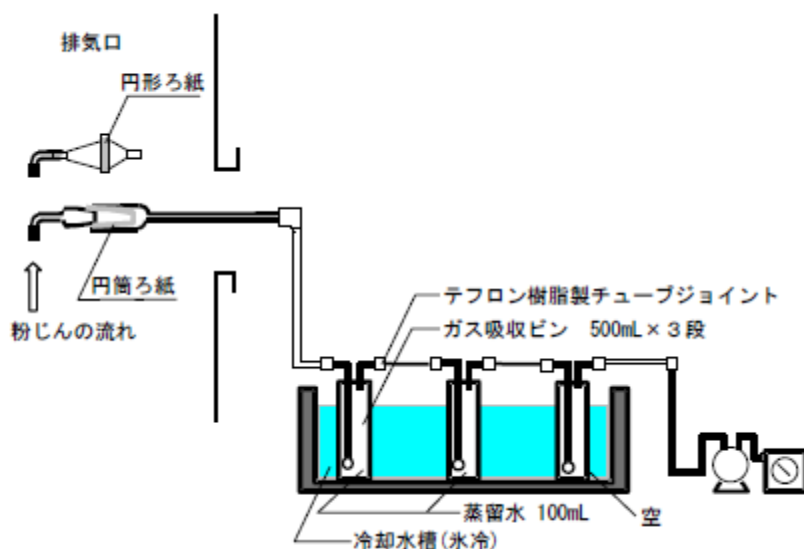


図 3.2-1 排ガス採取器具の構成 (環境省, 2013)

(2) 方法

本研究では、管状炉を用いた試験と、小型焼却炉（国立環境研究所循環・廃棄物研究棟に設置された熱処理プラント）を用いた試験による排ガス中 Cs 採取方法の検証を行った。一連の試験では、排ガス中の Cs を公定法と凝縮性ダスト採取装置（図 3.2-2）により採取して分析し、その結果を比較した。

凝縮性ダストは高温の煙道内ではガス態で存在しており、大気放出された後に冷却・凝縮してダストとなる成分である。凝縮性ダスト採取装置はその評価のため開発された装置であり、煙道からプローブで引き出した排ガスを冷却器中で間接的に水冷し、生成したダストを後段のろ紙で捕集するという構成になっている⁷⁾。従って、ガス態の Cs が排ガス中に存在した場合、凝縮性ダスト採取装置を用いることにより、凝縮水（ドレン水）または後段のろ紙により捕集されることが期待される。

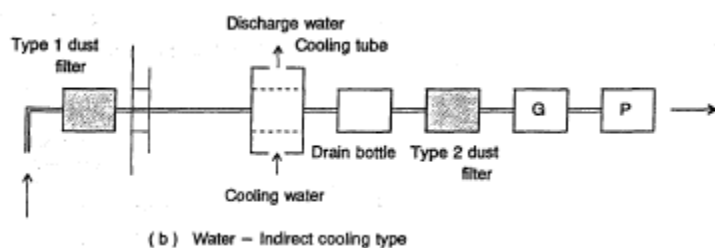


図 3.2-2 凝縮性ダスト採取装置の構成 (木暮, 1997) と実機写真

管状炉を用いた試験では、石英管内で塩化セシウムまたは粉碎後に塩化セシウムと混和したごみ由来燃料（RDF）を加熱し、揮散した Cs または凝縮性ダスト採取装置を用いて採取

し、双方の Cs 採取量を比較した。熱処理プラントを用いた試験では、炭酸セシウムを添加した RDF を一定の速度で供給、燃焼し、排ガス中の Cs を公定法または凝縮性ダスト採取装置を用いて捕集し、双方の Cs 捕集量を比較した。

なお、本研究においては、安定 Cs を用いて一連の試験を行った。

1) 管状炉を用いた試験

管状炉を用いた試験の試験装置の構成を図 3.2-3 に示す。電気加熱管状炉は石塚製作所製 IDK-A を使用した。石英管のサイズは内径 33 mm、長さ 600 mm であり、加熱部位の長さは 300 mm であった。供試試料として塩化セシウム（和光純薬製 特級）または塩化セシウムと RDF 粉砕物を混合したもの(混合比 1:1)を使用した。

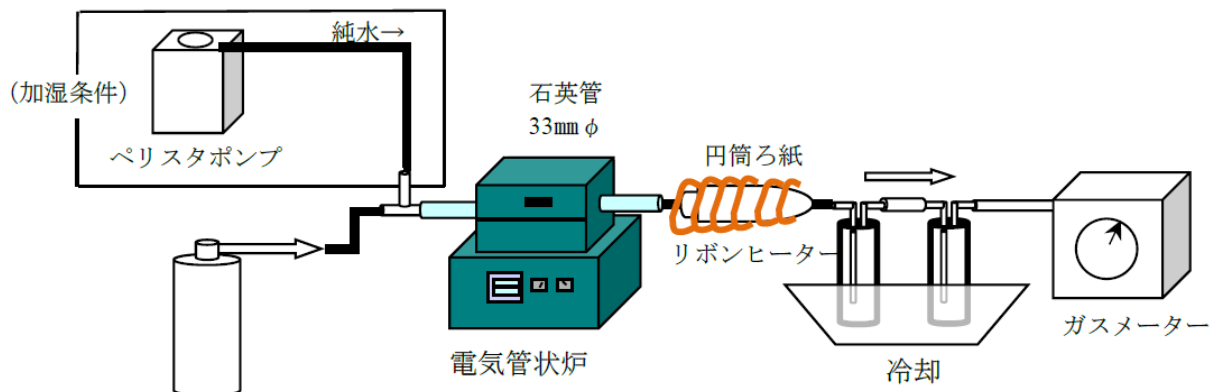


図 3.2-3 試験装置構成

表 3.2-1 試験条件一覧

試験条件	試料	加湿の有無	採取方法	採取部位		
				ろ紙	吸収液	—
1	塩化セシウムのみ	あり	インピンジャー	ろ紙	吸収液	—
2		なし		ろ紙	吸収液	—
3		あり	バブラー	ろ紙	吸収液	—
4		なし		ろ紙	吸収液	—
5		あり	凝縮性ダスト採取装置	ろ紙①	ドレン水	ろ紙②
6		なし		ろ紙①	ドレン水	ろ紙②
7	塩化セシウム+RDF	あり	インピンジャー	ろ紙	吸収液	—
8		なし		ろ紙	吸収液	—
9		あり	バブラー	ろ紙	吸収液	—
10		なし		ろ紙	吸収液	—
11		あり	凝縮性ダスト採取装置	ろ紙①	ドレン水	ろ紙②
12		なし		ろ紙①	ドレン水	ろ紙②

供試試料を電気加熱式管状炉を用いて温度条件 800°C でボンベエア雰囲気中で加熱し、排

ガスを通気して得られたろ紙および吸収液、もしくはドレン水について分析した。加熱時のボンベエア流量は毎分 2.0 L とし、加熱時間は 20 分間とした。また、加湿条件として純水を毎分 1.0 mL にてポンプで送液しながら加熱操作を行った。供試試料の仕込量は、塩化セシウムのみでの試験では 100 mg 程度、塩化セシウムを RDF と混合した試験では 200 mg 程度であった。

排ガスを採取するろ紙にはシリカ繊維円筒ろ紙 (No.88RH、アドバンテック社製) を用いた。試験系の構造上管状炉内に設置する 1 形採取装置を採用できないため、管状炉外に設置する 2 形採取装置とした。実験中、排ガス中の水分が凝縮して円筒ろ紙が破損しないよう、リボンヒーターで約 200℃ に加熱した。吸収びんの形状は JIS Z 8808 によったが、ノズル形状を直管のインピンジャーと焼結フィルターのバブラーの 2 種類を選定して採取を行った。また、凝縮性ダスト試料採取装置 (株式会社マルニサイエンス社製) を用いた試験では、2 形のろ紙 (ろ紙①) の後に装置を取り付け、水間接冷却法によるドレン水の採取を行い、更に後段に 2 形のろ紙 (ろ紙②) を設置して採取を行った。

排ガスを捕集したろ紙は裁断し、硝酸 10 mL、フッ化水素酸 4 mL、過塩素酸 1 mL の混酸を加えて 1 時間マイクロウェーブ分解した。その後 100 mL に定容して検液とした。吸収液またはドレン水は適宜希釈して検液とした。検液中の Cs は ICP 質量分析法により定量した。ICP 質量分析計はアジレント製 Model 7500 を使用した。検液中 Cs の定量下限値は 0.001 mg/L であった。

2) 熱処理プラントを用いた試験

熱処理プラントの構成及び実機写真を図 3.2-4 に示す。本プラントの焼却炉は産業廃棄物焼却炉によく使用されるロータリーキルンタイプをスケールダウンしたものであり、対象物を 600~800 °C の燃焼温度で、1 時間当たり数 kg 焼却できる能力を有している。また、排ガス処理設備として二次燃焼室、排ガス冷却装置、消石灰供給機、バグフィルター(BF)、活性炭吸着塔、スクラバーからなる排ガス処理設備を備えている。これらの排ガス処理設備は、ダイオキシン対策のなされた廃棄物焼却施設と同等のものである。

本研究においては、炭酸セシウム (和光純薬、特級) を Cs 濃度が 0.20% となるように添加して成形した RDF を供試試料とした。ロータリーキルン及び二次燃焼室の昇温開始後に RDF の投入を開始し、キルン温度が 840 °C、二次燃焼室温度が 890 °C に到達した後、安定燃焼が継続している間排ガスを採取した。排ガスはロータリーキルン出口、BF 出口、最終出口の 3 箇所を公定法により採取し、ロータリーキルン出口では凝縮性ダスト採取装置によっても採取した (図 3.2-5)。また、試験中に発生した主灰 (燃え殻) と飛灰、ブロー水 (ガス冷却塔から発生する水) も採取した。

ろ紙は裁断後、硝酸を添加して加熱処理し、定容後にろ過したものを適宜希釈して検液とした。吸収液試料は適宜希釈して検液とした。検液中の Cs は ICP 質量分析法により定量した。ICP 質量分析計はバリアン製 820-MS を使用した。分析条件は次の通り。質量数: 133、RF 出力: 1.4 kW、プラズマガス流量: 18.0 L/min、補助ガス流量: 1.80 L/min、シースガス流量: 0.75 L/min、ネブライザガス流量: 0.40 L/min。

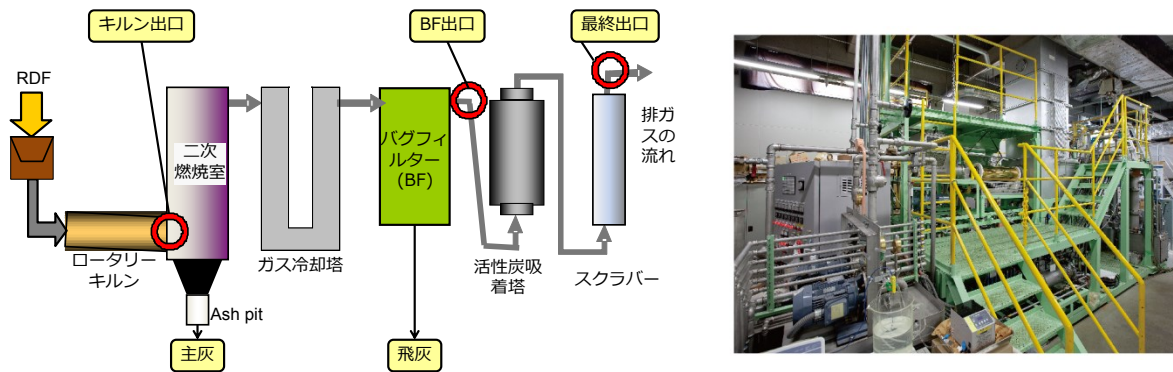


図 3.2-4 熱処理プラントの構成 (左) 及び実機写真 (右)

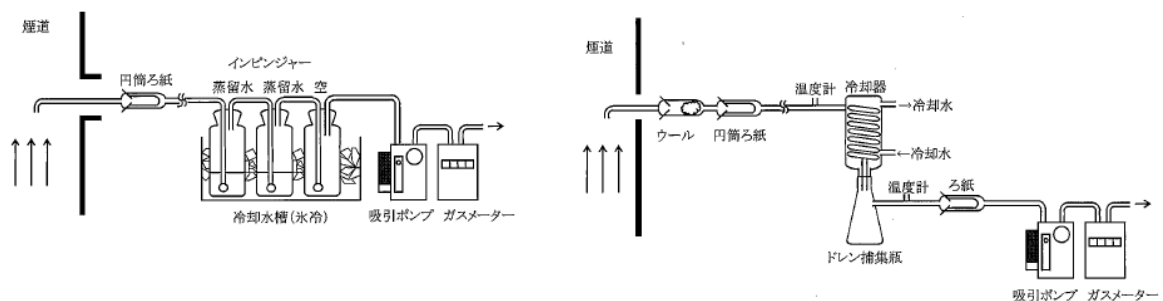


図 3.2-5 燃烧排ガスの採取方法 (左：公定法，右：凝縮性ダスト採取装置)

(3) 結果及び考察

1) 管状炉を用いた試験

試験結果について表 3.2-2 に示した。いずれの試験においても、Cs はろ紙 (凝縮性ダスト採取装置の場合はろ紙①) のみから検出され、吸収液やドレン水からは Cs は検出されなかった。吸収ビンのノズル形状の Cs 捕集効率に与える影響は、吸収液から Cs が検出されなかったため明確にならなかった。凝縮性ダスト採取装置の冷却器前後の排ガスの温度は、冷却器前が約 40℃、冷却器後が約 20℃と低温であり、凝縮性ダスト採取装置の冷却器のドレン水及び後段のろ紙②からは Cs は検出されなかったことから、冷却器前後ともに Cs はガス状態で存在していないと考えられた。公定法による採取と凝縮性ダスト採取装置による採取とで Cs 捕集量に違いはなかった。

条件 9、10 を除いて加湿条件下で Cs 捕集量が多くなり、加湿した場合に Cs の揮散量が増加することが分かった。また、廃棄物 (RDF) を共存させた条件 7~12 では、都市ごみ焼却の主灰に見られるセシウムアルミノシリケート等の生成により焼却灰に残留する傾向の把握を期待されたが、条件 3 と 9 で RDF の有無による差異が生じたものの、全体として明確な傾向は把握できなかった。塩化セシウムのみ加熱した場合 (条件 1~6) の Cs の揮散量に対する採取量の割合 (回収率) は 50%を超えた程度に留まっており、加湿の有無によらず揮散した Cs の一部は流路に付着したものと推測された。

本試験では、吸収液中の Cs の検出下限が 0.001 mg/L (検液中の濃度として)と、ろ紙から

調製した検液中の Cs 濃度 160～290 mg/L の 100 万分の 1 に相当する値であったが、吸収液からは Cs は検出されなかった。このことから、排ガス中の Cs は、現行の採取方法では問題なく採取できると考えられた。

表 3.2-2 管状炉試験結果一覧

試験条件	採取部位	検液中 Cs 濃度 (mg/L)	検液の最終液量 (L)	部位毎の Cs 量 (mg)	Cs 揮散量に対する割合(%)
1	ろ紙	290	0.1	29	65
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
2	ろ紙	190	0.1	19	53
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
3	ろ紙	270	0.1	27	55
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
4	ろ紙	120	0.1	12	51
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
5	ろ紙①	220	0.1	22	59
	ドレン水	<0.001	0.12	<0.00012	
	ろ紙②	<0.001	0.1	<0.0001	
6	ろ紙①	190	0.1	19	51
	ドレン水	<0.001	0.1	<0.0001	
	ろ紙②	<0.001	0.1	<0.0001	
7	ろ紙	230	0.1	23	—
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
8	ろ紙	160	0.1	16	—
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
9	ろ紙	170	0.1	17	—
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
10	ろ紙	170	0.1	17	—
	吸収液	<0.001	0.2	<0.0002	
11	ろ紙①	220	0.1	22	—
	ドレン水	<0.001	0.12	<0.00012	
	ろ紙②	<0.001	0.1	<0.0001	
12	ろ紙①	190	0.1	19	—
	ドレン水	<0.001	0.1	<0.0001	
	ろ紙②	<0.001	0.1	<0.0001	

2) 熱処理プラントを用いた試験

燃焼試験結果について表 3.2-3 に示した。5 時間の燃焼試験中の投入物の供給量は 10.66 kg（供給速度 2.13 kg/h）であり、主灰の発生量は 0.962 kg、飛灰の発生量は 0.142 kg であった。

表 3.2-3 燃焼試験結果

項目	値	項目	値
試験日	2016/1/27	ガス流量(m ³ N/h-dry)	20
投入物総量(g)	10,664	一次燃焼空気流量(m ³ /h)	18.7
投入物供給速度(kg/h)	2.13	二次燃焼空気流量(m ³ /h)	0
セシウム混入率 (%)	0.20	O ₂ (BF出口,%)	9.5
投入物サイズ (mm)	<10	CO (BF出口,ppm)	0
ロータリーキルン温度(°C)	841	NO _x (BF出口,ppm)	41
二次燃焼室温度(°C)	899	分解残渣量(g)	962
二次燃焼室出口(°C)	784	飛灰量(g)	142
酸性ガス処理	NaHCO ₃		

表 3.2-4 排ガス性状測定結果

測定項目		単位	キルン出口排ガス		BF 出口排ガス		最終出口排ガス	
			実測濃度	O ₂ 12% 換算濃度	実測濃度	O ₂ 12% 換算濃度	実測濃度	O ₂ 12% 換算濃度
排ガス流量	乾き	m ³ /h	—	—	20	—	20	—
	湿り		—	—	18	—	19	—
組成	CO ₂ 濃度	Vol %	9.2	—	11.0	—	9.6	—
	O ₂ 濃度	Vol %	10.6	—	8.4	—	9.8	—
	N ₂ 濃度	Vol %	80.2	—	80.6	—	80.8	—
排ガス水分量		Vol %	9.8	—	8.1	—	8.0	—
排ガス温度		°C	675	—	149	—	40	—
排ガス圧力		kPa	—	—	-0.646	—	-0.041	—
排ガス流速		m/s	—	—	3.8	—	2.9	—
CO 濃度 (連続測定)		vol ppm	5,000	4,600	3 未満	3 未満	7	5
O ₂ 濃度 (連続測定)		vol ppm	11.2	—	9.2	—	9.6	—
ばいじん濃度		g/m ³	3.6	3.3	0.001 未満	0.001 未満	0.001 未満	0.001 未満
HCl 濃度		mg/m ³	800	720	1 未満	1 未満	1 未満	1 未満
		vol ppm	490	440	0.6 未満	0.6 未満	0.6 未満	0.6 未満

排ガス性状について表 3.2-4 に示した。排ガス流量は 20 m³/h（乾き）であった。ばいじん濃度はロータリーキルン出口で 3.6 g/m³（実測濃度）、3.3 g/m³（酸素 12%換算濃度）で

あったが、BF 出口、最終出口では不検出（0.001 g/m³未満）であった。

排ガス、固体、液体試料中 Cs 濃度の測定結果について表 3.2-5 にまとめた。BF 出口、最終出口で採取した排ガスでは、ろ紙から極めて低い濃度の Cs が検出されたが、吸収液からは Cs は検出されなかった。また、キルン出口排ガスでは、ろ紙から公定法による採取で 150 mg/m³、凝縮性ダスト採取装置による採取で 170 mg/m³ の濃度で Cs が検出された。公定法よりも凝縮性ダスト採取装置による採取で Cs 濃度が若干高かったが、大差はなかった。また、吸収液中の Cs の検出下限は 0.00018～0.00063 mg/m³ と、ろ紙の Cs 濃度の 100 万分の 1 に相当する値であったが、吸収液からは Cs は検出されなかった。今回のキルン出口排ガスのように水分量が 10%程度、ばいじん濃度が 3 g/m³、排ガス温度が 600℃を超える条件の劣悪な排ガスの採取であっても、Cs はろ紙から破過していないことから、通常の廃棄物焼却施設等の調査で煙突出口での組成に近い排ガスを採取する場合には、ろ紙の破損があったような場合を除き、Cs がろ紙を破過することはまず起こらないと考えられた。

表 3.2-5 排ガス，固体，液体試料中セシウム濃度測定結果一覧

(a) 排ガス試料

採取部位	単位	キルン出口*	キルン出口	BF 出口	最終出口
ろ紙	mg/m ³	170	150	0.00097	0.00036
吸収液	mg/m ³	<0.00025	<0.00063	<0.00021	<0.00018

* 凝縮性ダスト採取装置による採取。

(b) 固体，液体試料

測定項目	単位	投入物	主灰	飛灰	ブロー水
セシウム	µg/g, µg/ml	2,000	2,200	16,000	710
水分	%	3.7	<0.1	<0.1	—

(4) まとめ

焼却排ガス中の放射性 Cs 採取方法の妥当性検証のため、管状炉及び熱処理プラントを用いた試験を行った。管状炉試験、熱処理プラント試験のいずれにおいても、凝縮性ダスト採取装置を用いた採取と公定法による採取とで排ガス中の Cs 濃度に大きな違いはなく、また、Cs は全てもろ紙により捕集され、ろ紙の後段に設置した吸収液や冷却器ドレン水からは検出はされなかった。キルン出口排ガスのような条件が劣悪な排ガスの採取であっても Cs はろ紙から破過しておらず、現行の排ガス中放射性 Cs の採取方法は妥当であると考えられた。

謝辞

管状炉試験においては株式会社環境管理センター、熱処理プラント試験においては株式会社島津テクノリサーチ、株式会社環境ソルテックのご協力を得た。ここに記して謝意を表す

る。

参考文献

- 1)環境省（2013）廃棄物関係ガイドライン第5部 放射能濃度等測定方法マニュアル.
- 2)廃棄物資源循環学会（2014）廃棄物関連試料の放射能濃度調査・測定マニュアル.
- 3)国立環境研究所（2014）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 第四版）.
- 4)大阪市（2012）東日本大震災により生じた廃棄物の広域処理に関わり放射性物質の測定方法に関する実験を行いました（平成24年10月11日）.
<http://www.city.osaka.lg.jp/kankyo/page/0000187721.html> (2016年4月25日閲覧)
- 5)山本貴士，田野崎隆雄，竹内幸生，鈴木剛，滝上英孝，大迫政浩，酒井伸一（2012）焼却排ガス中の放射性Cs測定における試料採取方法の検討．第1回環境放射能除染研究発表会要旨集，71.
- 6)籠谷純一，渡辺信久（2013）CsCl,KCl及びNaClの加熱時の揮発と捕集．第22回環境化学討論会講演要旨集，442-443.
- 7)木暮伸幸，田森行男，石岡修，井上俊明，谷本高敏（1997）凝縮性ダストを含む排ガス中の粒子濃度測定方法の調査研究．大気環境学会誌，32，162-173.

3.2.2 福島市における大気降下物等環境試料における放射性物質等の分析

(1) はじめに

1) 背景

平成23年3月の福島第一原子力発電所の事故によって、放射性セシウム(以下、Cs)を含む様々な放射性核種が環境中に放出され、土壌等の環境媒体の放射性Csによる汚染が広がった。事故後5年の間に、放射性Csを含む土壌や植物等は、除染され、減容化もしくは一般環境から除染廃棄物仮置場および廃棄物管理施設等へ移動された。これまでに実施されてきた除染によって、福島市内の放射性Csに起因する環境放射線量は大きく低減しており、それに伴って放射性Csの大気降下量も低減傾向にある。

国立環境研究所では、平成25年2月から平成26年12月にかけて、福島市やつくば市で大気降下物等環境試料を採取し、放射性Csを対象とした核種濃度分析、発生源推定のための元素分析、試料含有の放射性Csの存在状態を把握するためのイメージングプレート等の各種測定評価を実施してきた¹⁾。これまでの評価を通じて、放射性Csの大気降下量の経年の減少傾向を確認している。大気降下物と大気降下物採取近傍の表層土壌との関連性を評価したところ、大気降下物に含まれる放射性Csの濃度が高い場所では表層土壌の放射性Csの濃度も高い傾向であることや、大気降下物と表層土壌では全体の93%～95%を占める主要な構成元素（Al、Ca、Fe、K、Mg、Mn、Na）が共通していることが示され、表層土壌が大気降下物の主要な構成成分であることが示唆されている。イメージングプレートによって、大気降下物中の放射性Csが試料中に放射能濃集粒子（ホットパーティクル）として偏在していることを明らかにし、概ね大気降下物の放射性Cs濃度の高い順にホットパーティクルが多く検出される傾向であることも示された。これらの結果を総合すると、大気降下物の由来と

なっている表層土壌の除染作業を通じたホットパーティクルの減少が、福島市内における経年の放射性 Cs の大気降下量の減少に関連していると考えられる。

一方で、大気降下物や表層土壌に含まれるホットパーティクルについては、試料における存在状態、元素組成等の定性情報、放射能強度、試料含有放射性 Cs 濃度に対する寄与等、不明な点が多いのが現状である。

2) 目的

本研究では、上述の背景を踏まえて、放射性 Cs の大気降下量調査と大気降下物に含まれるホットパーティクルを対象とした粒子解析を実施した。大気降下量調査では、平成 26 年 12 月以降の福島市とつくば市における放射性 Cs の大気降下量を評価するため、平成 27 年 2/3 月期と平成 28 年 2/3 月期に昨年度と同様に大気降下物を採取して放射性 Cs を対象とした核種濃度分析を実施した。大気降下物に含まれるホットパーティクルを対象とした粒子解析では、はじめに、福島市やつくば市で採取した大気降下物を対象としてイメージングプレートによる試料中放射能の面的分布の測定を行い、大気降下物中放射性 Cs の放射能と大気降下物に含まれるホットパーティクルの数や放射線量との関連性を評価した。次いで、大気降下物から取り出したホットパーティクルを対象として、放射性 Cs を対象とした核種濃度分析や走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分析装置による元素成分分析を実施した。

(2) 研究方法

1) 放射性セシウムの大気降下量評価

①大気降下物の採取

大気降下物には、大気中に排出されたばいじんや風によって地表から舞い上がった粉じん等のうち、比較的粒径が大きく重いため大気中で浮遊してはならず降下する乾性降下物や、雨や雪等に取り込まれて降下する湿性降下物がある。本調査では、平成 25 年 2 月から平成 28 年 3 月にかけて、つくば市 1 地点と福島市 4~6 地点においてデポジットゲージ法（ポリエチレン製容器）或いはダストジャー法（ステンレス製容器）により、約 1 ヶ月間の大気降下物を採取した。ダストジャーには、降下物の再飛散を防止するため、10%ジエチレングリコール水溶液（v/v）を 1000mL 入れた。大気降下物の採取風景、採取時期及び採取場所を図 3.2-6、表 3.2-6 及び図 3.2-7 に示す。大気降下物の採取地点の詳細を次に示す：1) つくば市：国立環境研究所循環廃棄物棟の 3 階屋上、2) 福島市 A 地点：福島市北沢又字成出の調査協力施設の 4 階屋上、3) 福島市 B 地点：福島市金谷川 1 の調査協力施設の 1 階屋上、4) 福島市 C 地点：福島市吉倉字吉田の調査協力施設の 5 階屋上、5) 福島市 D 地点：福島市東浜の調査協力施設の 3 階屋上、6) 福島市 E 地点：福島市土湯温泉町の調査協力施設の 5 階屋上。



図 3.2-6 大気降水物の採取風景
 左手前：ダストジャー法、右奥：デポジットゲージ法

表 3.2-6 大気降水物の採取時期

採取地点	H25 2/3 月	H25 9/10 月	H25 11/12 月	H26 2/3 月	H26 6/7 月	H26 9/10 月	H26 11/12 月	H27 2/3 月	H28 2/3 月
つくば市	○ DJ	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DJ
福島市 A 地点	○ DJ	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DJ
福島市 B 地点	○ DJ	○ DG		○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DJ
福島市 C 地点	○ DJ	○ DG		○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DJ
福島市 D 地点	○ DJ	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DJ
福島市 E 地点		○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DG	○ DJ

DJ：ダストジャー法で採取、DG：デポジットゲージ法で採取

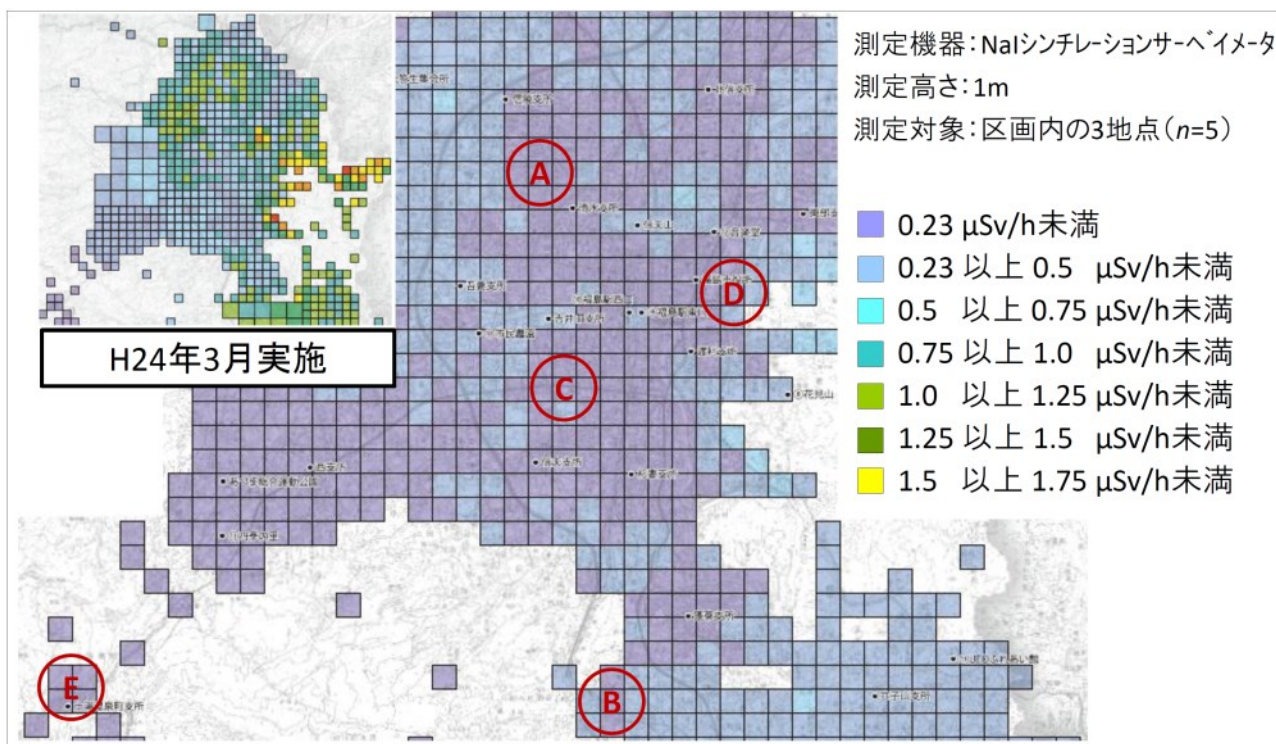


図 3. 2-7 福島市放射線量測定マップにおける大気降下物採取地点

②試料前処理

大気降下物には、ダストや土壌等の不溶性成分と、硫酸イオンや塩素イオン等の水溶性成分がある。本研究では、不溶性と水溶性の大気降下物を雨水等と共にダストジャーやデポジットゲージから捕集ビンに回収した。積雪のある冬季の回収時には、蒸留水による容器の洗い込みも行った。植物等の異物を除去した後、回収した大気降下物を含む水溶液は、秤量して容量を求めた。さらに孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のセルロース混合メンブレンフィルター（以下、ろ紙）を通して、大気降下物の不溶性成分をろ紙上に回収した。ろ液には、大気降下物の水溶性成分が含まれている。ろ紙は、炭酸カリウム飽和水溶液によって密閉容器（デシケータ）内を約 **50%**の湿度に調整した雰囲気下で、一晚放置後秤量したものを使用した。不溶性成分を含むろ紙上残留物は風乾した後、先述の **50%**湿度雰囲気デシケータに入れ、一晚放置後秤量した。秤量したろ紙上残留物は、全ての採取試料について放射性 Cs (^{134}Cs と ^{137}Cs) を対象とした核種濃度分析に供した。

本研究では、初期調査で採取した平成 **25** 年 **2/3** 月期の大気降下物について、ろ紙上不溶性成分およびろ液の放射性 Cs を測定した¹⁾。その結果、放射性 Cs の大気降下量は、ろ液と比較してろ紙上不溶性成分で圧倒的に高く、**96%~98%**が不溶性成分由来であった。そこで本研究では、ろ紙上不溶性成分を評価対象とした。

③放射性セシウムを対象とした各種濃度分析

ろ紙上不溶性成分の放射性 Cs は、秤量したろ紙を重ねてねじり U 型容器 (U-8 容器) 若しくはポリエチレン袋に封入し、ゲルマニウム半導体検出器 (ORTEC、SEIKO EG&G 社製) を用いたガン

マ線スペクトロメトリーによる核種分析法で測定した。ろ紙上残留物の放射性 Cs 濃度は、50%湿度霧囲気下で求めた重量あたりで求めた。本調査で得られた測定値は、放射性 Cs の半減期 (^{134}Cs [2.0652 年]、 ^{137}Cs [30.1 年]) を考慮して試料採取終了時に減衰補正した。また、大気降下物の採取および前処理に使用したジエチレングリコールおよびろ紙については、U-8 容器に入れてゲルマニウム半導体検出器で測定し、放射性 Cs が検出されていないことを確認した。

2) 大気降下物中の放射能濃集粒子 (ホットパーティクル) を対象とした粒子解析

① イメージングプレートによる試料中放射能の面的分布の測定

放射性 Cs は、主なベータ線エネルギー (^{134}Cs [0.658 MeV]、 ^{137}Cs [0.514 MeV]) を放出するベータ線核種である。従って、放射性 Cs から放出されるベータ線から画像 (オートラジオグラフ) を作成する手法 (オートラジオグラフィ) を用いることで、測定面に分布している試料中放射性 Cs の存在状態の確認が可能である²⁾。本研究では、採取試料のうち、大気降下物の不溶性成分を捕集したろ紙 (47 mmφ) をポリエチレン袋 (厚さ 0.08 mm) に封入し、イメージングプレート (以下、IP、FUJI FILM 社製 BAS IP MS 2040E 或いは BAS IP SR 2040E) を用いるオートラジオグラフィによって放射能分布を測定した。IP は、鉛で遮蔽されたバックグラウンド放射線が低い試料室内で、放射性 Cs を含むろ紙上不溶性成分表面に接触させて 1 週間曝露した。曝露後の IP を画像解析装置 (GE Healthcare 社製 Typhoon FLA 7000 IP) で測定して、試料表面の放射能分布画像を取得した。本研究では、曝露時間に対して IP が吸収した放射線量 (以下、PSL [Photo-Stimulated Luminescence] 輝尽性蛍光量) を対象として、単位時間当たりの PSL を測定した。

② 試料中のホットパーティクルの個別粒子分析

IP を用いて試料表面にホットパーティクルの偏在が確認された試料は、個別のホットパーティクルの無機成分分析および放射能測定を行った。本研究では、Adachi et al.³⁾の先行研究に基づき、試料上のホットパーティクルは、IP で位置情報を確認しながら、マニピュレータ (Micro Support 社製) を用いて取り出し、走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分析装置 (以下、SEM-EDX, JEOL 社製 JSM-7600F 或いは JSM-7800F) による無機成分分析に供した。取り出したホットパーティクルの放射能は、ゲルマニウム半導体検出器で測定した。

(3) 結果と考察

1) 放射性セシウムの大気降下量評価

本研究では、平成 27 年 2/3 月期と平成 28 年 2/3 月期に、福島市及びつくば市で大気降下物調査を実施した。大気降下物調査は、平成 25 年 2 月から継続して実施しており、これまでにつくば市及び福島市 A 地点から D 地点で 9 回、福島市 E 地点で 8 回、それぞれ放射性 Cs を対象とした大気降下物調査を実施している。なお、つくば市については、平成 28 年 2/3 月期の試料が検出下限以下であったため、当該データを記載していない。福島市 B 地点と C 地点については、採取時等のトラブルのため、平成 25 年 11/12 月期で試料の欠損が生じている (表 3.2-6)。ここでは、平成 27 年 2/3 月期と平成 28 年 2/3 月期に取得した結果を含む全ての結果を報告する。

平成 25 年 2 月から平成 28 年 3 月にかけて取得した各採取期間における大気降下物の放射性 Cs

濃度と放射性 Cs の大気降下量を表 3.2-7 に示す。中央値ベースで比較すると、不溶性成分の放射性 Cs 濃度 ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 、Bq/kg) の順位は、福島市 D 地点>福島市 B 地点>福島市 A 地点>福島市 C 地点>福島市 E 地点>つくば市の順であり、つくば市と福島市では 4.2 倍～13 倍程度の濃度差がみられた。また、放射性 Cs の大気降下量 ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 、Bq/m²/day) の順位は、中央値ベースで福島市 D 地点>福島市 B 地点>福島市 C 地点>福島市 A 地点>福島市 E 地点>つくば市の順であり、つくば市と福島市では 2.5 倍～19 倍程度の降下量の差がみられた。大気降下物中の放射性 Cs 濃度が高いと、放射性 Cs の大気降下量も多くなる傾向であることがわかる。

表 3.2-7 採取期間における大気降下物の放射性セシウム濃度と放射性セシウムの大気降下量

採取地点	試料数	$^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)			$^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ (Bq/m ² /day)		
		中央値	最小値	最大値	中央値	最小値	最大値
つくば市 ^a	8	1,720	819	3,490	0.0455	0.0175	1.12
福島市 A 地点	9	13,900	5,340	55,300	0.286	0.0940	4.25
福島市 B 地点	8	15,900	3,200	54,000	0.481	0.104	7.10
福島市 C 地点	8	10,500	8,160	28,300	0.361	0.120	4.11
福島市 D 地点	9	21,900	7,200	165,000	0.844	0.222	52.4
福島市 E 地点	8	7,130	3,520	35,800	0.115	0.0440	2.38

^a つくば市で H28 年 2/3 月に採取した大気降下物は ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 共に検出下限以下であった

平成 25 年 2 月から平成 28 年 3 月にかけて取得した各採取期間における大気降下物中の放射性 Cs 濃度を図 3.2-8 に、放射性 Cs の大気降下量を図 3.2-9 に示す。地点間の比較では、調査期間を通じて福島市 A 地点から福島市 D 地点が高い傾向であり、中でも福島市 D 地点が高い傾向であった。採取時期別にみると、先述の通り、概ね大気降下物中の放射性 Cs 濃度が高いと放射性 Cs の大気降下量も多くなる傾向であるが、昨年度報告した通り、風が強くなり大気降下物量の増える 2/3 月期に放射性 Cs の大気降下量が増える傾向であると考えられる¹⁾。2/3 月期については、平成 25 年から平成 28 年にかけて継続して大気降下物調査を実施している。2/3 月期における大気降下物中の放射性 Cs 濃度と放射性 Cs の大気降下量の推移をみても (図 3.2-8 と図 3.2-9)、平成 25 年から平成 27 年にかけて放射性 Cs 濃度と放射性 Cs の大気降下量が共に年々低減している。これは、 ^{134}Cs の自然減衰 (物理的半減期：2.0652 年) による低減に加え、震災以降に実施された表層土壌等の除染の寄与が大きいと考えられる。放射性 Cs の大気降下量については福島市内で同様の傾向が報告されている。福島市方木田における放射性 Cs の大気降下量については、平成 23 年 4 月期に 13,800 Bq/m² (460 Bq/m²/day) であったのが、平成 27 年 12 月期に 29.4 Bq/m² (0.980 Bq/m²/day) となっており⁴⁾、放射線量が低下した。福島市内では震災初期から除染が実施されており、福島第一小学

校（福島市杉妻町 1 丁目）の事例では、平成 23 年 4 月に 3.20 $\mu\text{Sv/h}$ であったのが、平成 28 年 3 月末に 0.11 $\mu\text{Sv/h}$ となっている⁵⁾。これらの結果は、放射性 Cs を含む土壌等の除染によって環境放射線量を低減することで、大気降下物の放射線量も低減することを示唆している。

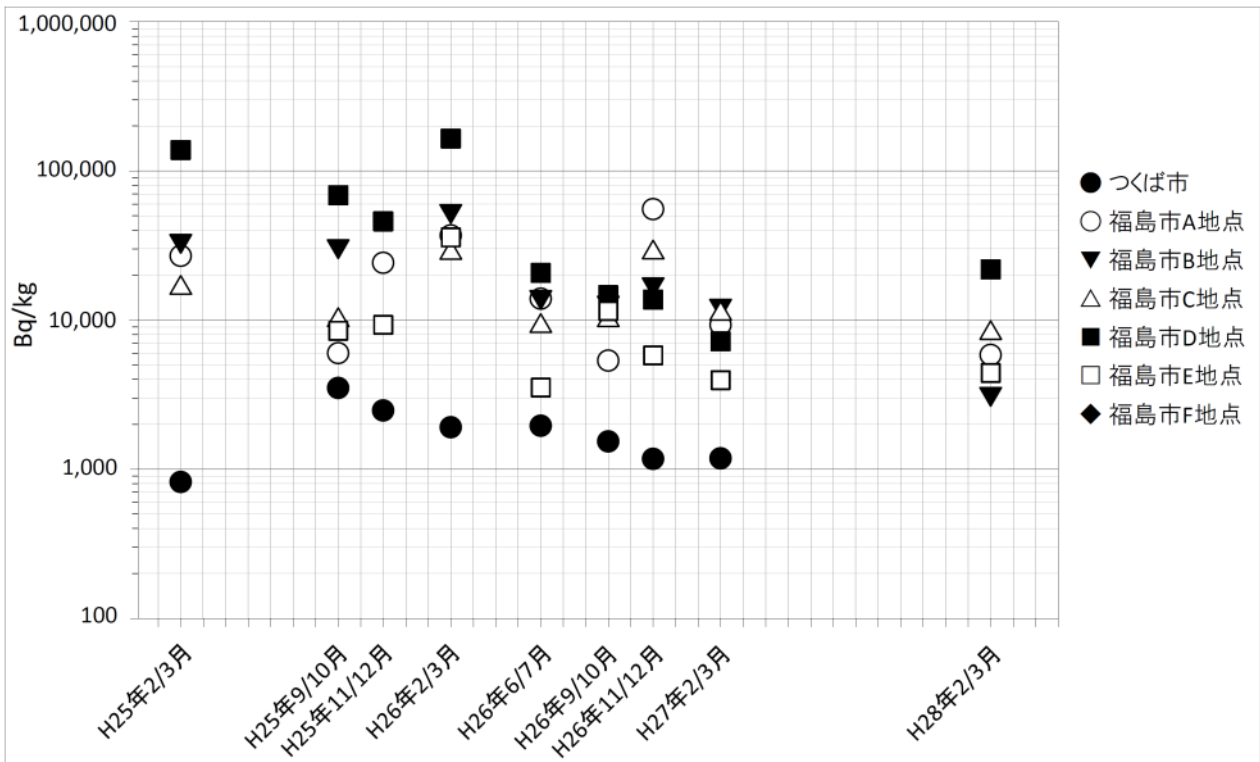


図 3. 2-8 各採取期間における大気降下物中の放射性セシウム濃度

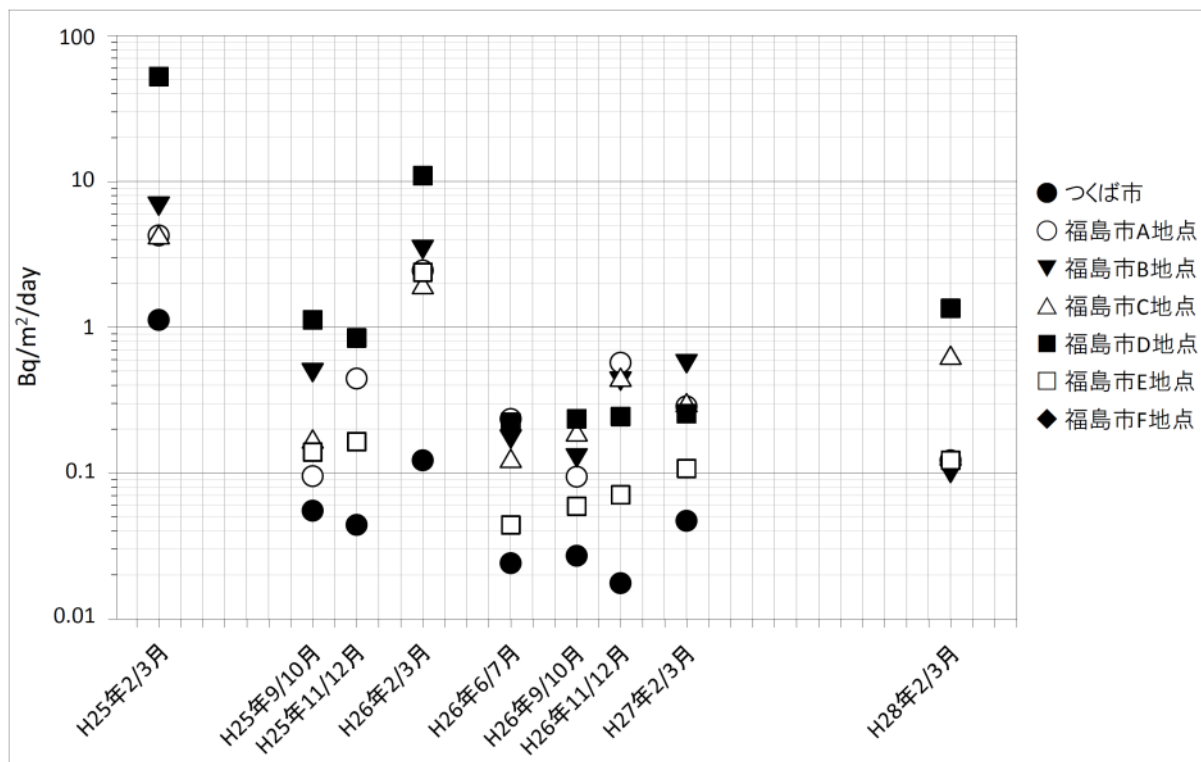


図 3.2-9 各採取期間における放射性セシウムの大気降下量

一方、平成 27 年から平成 28 年にかけては、大気降下物中の放射性 Cs の低減がみられておらず、福島市 D 地点で濃度上昇がみられる。これは、除染効果の低下、 ^{134}Cs の自然減衰効果の寄与の減少、大気降下物中放射性 Cs の偏在性に起因すると考えられる。除染効果については、環境放射線量の低減化において、震災当初と比較して低下していると考えられる。 ^{134}Cs 由来の放射能の自然減衰率は、2 年後に 50%、4 年後に 26%、5 年後に 19%程度であると計算できる。従って、自然減衰率による低減効果も低下していると考えられる。また、大気降下物中の放射性 Cs は、後述するように、ホットパーティクルとして偏在しているため、ホットパーティクルを含む土壌粒子等が多く巻き上げられ大気降下物となった場合に、大気降下物中の放射性 Cs 濃度や放射性 Cs の大気降下量が増えると考えられる。実際に、福島市 C 地点と福島市 D 地点の大気降下物量は、平成 27 年 2/3 月 (0.0263 g/m²/day と 0.0354 g/m²/day) と比較して、平成 28 年 2/3 月 (0.0750 g/m²/day と 0.0617 g/m²/day) に多い。

まとめ

本研究の実施によって、現状の福島市内の放射性 Cs の大気降下量は、震災当初 (平成 23 年 4 月) の福島市方木田の測定値 (13,800 Bq/m² [460 Bq/m²/day]) と比較すると、少なくとも 400 分の 1 以上まで低下していることがわかった。今後、福島市内の放射性 Cs の大気降下量は、ホットパーティクルを含む土壌等の環境媒体の巻き上げによって増加する場合もあると考えられるが、基本的に放射性 Cs の自然減衰に伴って減少していくと推察される。

2) 大気降下物中の放射能濃集粒子 (ホットパーティクル) を対象とした粒子解析

①イメージングプレートによる試料中放射能の面的分布の測定

本研究では、デポジットゲージを用いて採取した大気降下物試料のろ紙上不溶性成分を対象とした。ろ紙上不溶性成分は、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射エネルギーを評価した後、IP を用いて面的放射能分布画像を取得した。ろ紙は、一枚ごとポリエチレン袋（厚さ 0.08 mm）に封入し、合計 9 試料を 1 枚の IP（20 cm × 40 cm）にセットした（図 3.2-10）。曝露後の IP を読取り、9 試料の面的放射能分布を、1 ピクセル〔50 μm × 50 μm〕の画像分解能の PSL 値として取得した（図 3.2-10）。IP 取得画像では、PSL 値が大きくなると、黒色→青色→緑色→黄色→赤色→白色となるように色調変化にて表現した。結果として、放射能強度の強い白色点（以下、ホットスポット）の位置を確認することができた。

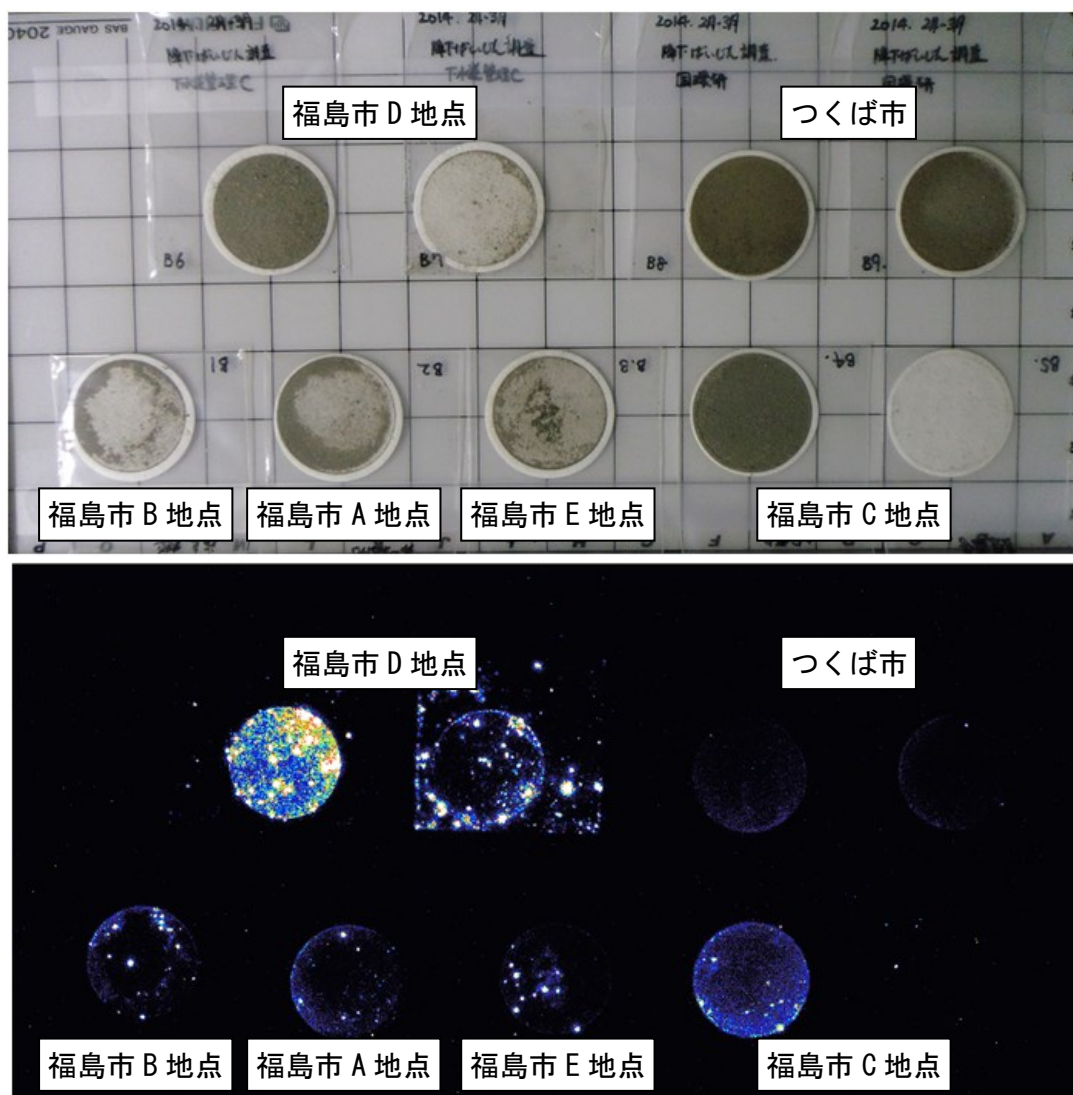


図 3.2-10 ろ紙上の大気降下物（不溶性成分）の試料画像（上）とイメージングプレート取得

平成 25 年 2 月から平成 27 年 3 月にかけて採取した大気降下物試料（不溶性成分）を対象として、IP による面的放射能分布画像から得られた PSL 値を表 3.2-8 にまとめた。試料と IP との接触面が吸収した 1 週間当たりの放射線量を合計 PSL 値（PSL/week）で表し、1 週間当たりで 1 ピクセル当たりの最も強く吸収した放射線量を最大 PSL 値（PSL/week/pixel）とした。つくば市および福島市の合計 PSL 値

は、それぞれ 82,600～2,190,000 PSL/week および 49,500～71,900,000 PSL/week であった。放射性 Cs 量 ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 、Bq) は、つくば市で 0.0375～0.234 Bq、福島市で 0.235～23.0 Bq であり (表 3.2-9)、つくば市と福島市の降下物の質の違いやろ紙上不溶性成分の個別粒子の違いがあるものの、PSL 値と放射性 Cs 量には関連性があると推測された。最大 PSL 値は、試料中で最も放射性 Cs が濃集しているスポットの PSL 値を指す。つくば市の最大 PSL 値は 109～290 PSL/week/pixel の範囲であった。一方で、福島市では、300 PSL/week/pixel 以下の試料が、平成 25 年 11/12 月に 2 地点、平成 26 年 6/7 月に 1 地点のみであった。これら 3 地点以外の試料は 330～28,000 PSL/week/pixel であった。これらの結果は、福島市で放射性 Cs を濃集する粒子が降下していることを示唆する。

表 3.2-8 大気降下物（不溶性成分）中放射性セシウムの PSL 値及び最大 PSL 値の比較

採取地点	H25	H25	H26	H26	H26	H26	H27
	9/10 月	11/12 月	2/3 月	6/7 月	9/10 月	11/12 月	2/3 月
つくば市	2,190,000	82,600	1,260,000	245,000	966,000	378,000	590,000
	189	156	290	109	152	163	236
福島市 A 地点	49,500	814,000	3,330,000	730,000	1,240,000	4,710,000	6,560,000
	330	191	7,800	1,530	625	10,500	1,160
福島市 B 地点	6,820,000		4,670,000	1,110,000	1,960,000	2,840,000	8,020,000
	13,700	NA*	6,080	1,980	3,070	6,890	8,520
福島市 C 地点	175,000		7,550,000	426,000	1,750,000	1,780,000	5,520,000
	906	NA*	1,380	129	1,210	4,170	4,540
福島市 D 地点	3,980,000	2,190,000	71,900,000	640,000	2,640,000	1,990,000	7,320,000
	6,350	3,290	19,200	1,100	10,800	2,950	5,530
福島市 E 地点	1,830,000	236,000	4,360,000	558,000	974,000	971,000	3,700,000
	641	270	15,800	984	2,950	3,170	1,310

上段：試料合計 PSL 値(PSL/week)、下段：試料中最大 PSL 値(PSL/week/pixel)

*採取試料の一部不足の可能性があり計数せず

表 3.2-9 大気降下物（不溶性成分）中放射性セシウムの放射能及びホットスポット数の比較

採取地点	H25	H25	H26	H26	H26	H26	H27
	9/10 月	11/12 月	2/3 月	6/7 月	9/10 月	11/12 月	2/3 月
つくば市	0.1174	0.0866	0.2337	0.0375	0.0628	0.0381	0.1225
	0	0	0	0	0	0	0
福島市 A 地点	0.2345	0.3839	1.4786	0.3630	0.2184	1.2498	0.7265
	0	0	5	2	1	3	6
福島市 B 地点	1.5832		1.7327	0.2787	0.3101	0.9475	1.4936
	11	NA*	14	2	1	5	10
福島市 C 地点	0.4349		2.6232	0.1775	0.4115	0.9171	0.7367
	1	NA*	12	0	1	4	4
福島市 D 地点	2.7671	1.2341	23.0063	0.3288	0.5645	0.5518	0.6311
	9	8	116	2	3	2	5
福島市 E 地点	0.1286	0.0686	1.3571	0.0567	0.1374	0.1551	0.2725
	1	0	11	2	2	2	3

上段： $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ (Bq)、下段：ホットスポット数 (PSL > 300/week/pixel)

*採取試料の一部不足の可能性があり計数せず

次に、福島市とつくば市の大気降下物の不溶性成分を対象として 300 PSL/week/pixel 以上のスポット（ホットスポット）の数を計測した。大気降下物（不溶性成分）中の放射性 Cs の放射能（ $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ Bq）及びホットスポット数を表 3.2-9 に示す。試料中の放射性 Cs の放射能が高くなると、ホットスポット数も増える傾向にあり、いずれの地点においても 2/3 月期に採取した試料でホットスポット数が多かった。大気降下物（不溶性成分）の放射性 Cs 量、ホットスポット数と大気降下物量の関連性を図 3.2-11 に示す。大気降下物（不溶性成分）の放射性 Cs 量は、試料量が増えると高くなる傾向であったが、ホットスポット数とより強い正の相関関係を示した。これは、大気降下物の不溶性成分の放射性 Cs の放射能が、ホットパーティクルに起因することを示している。

本研究では、大気降下物のろ紙上不溶性成分中に放射性 Cs が濃集するホットパーティクルが存在することを、IP で得られる面的放射能分布画像によって確認した。また、大気降下物中にホットパーティクルの数が増えると、含有放射性 Cs 量も増えることを定量的に示した。これらは、調査期間内における福島市内の放射性 Cs の大気降下量の増減が、不溶性成分に含まれるホットパーティクルの数に起因することを示しており、一般環境中に存在するホットパーティクルの評価重要度を示唆している。

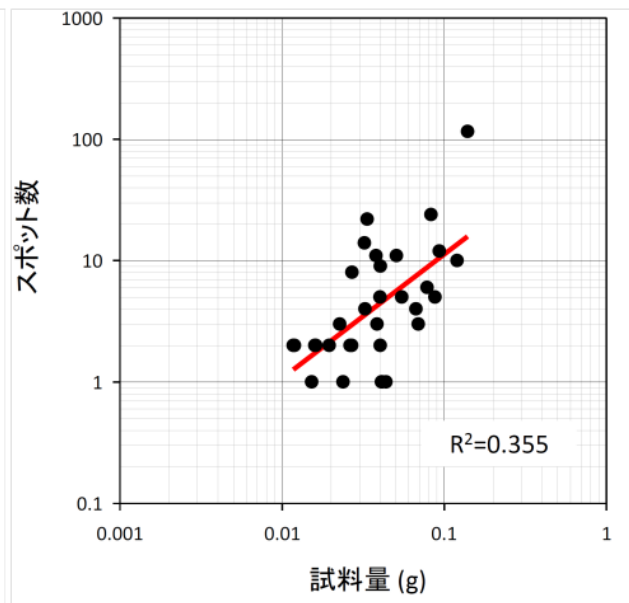
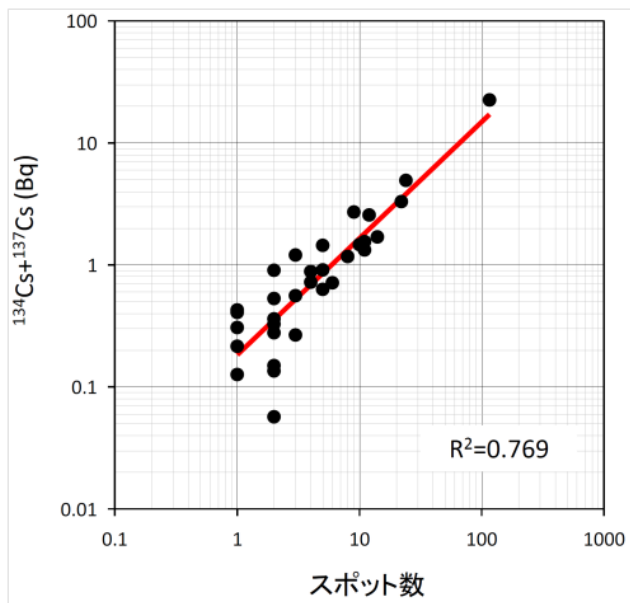
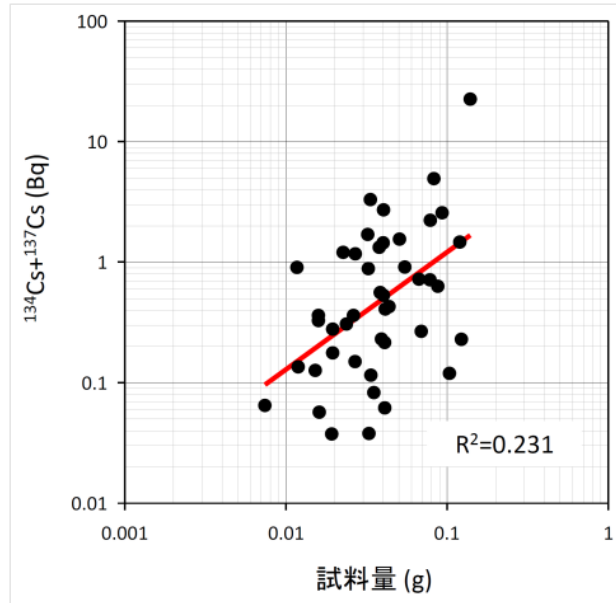


図 3.2-11 大気降下物（不溶性成分）の放射性セシウム量、ホットスポット数と試料量の関連性

② 試料中のホットパーティクルの個別粒子分析

本研究では、ろ紙上不溶性成分を対象として、IP の面的な放射能分布からホットスポットの位置及び数量を確認した後、その位置に対応するホットパーティクルの取り出しを試みた(図 3.2-12)。ホットスポット付近の粒子をカーボンテープに吸着させ、IP を用いて放射能を有する粒子であることを確認しながら、ホットパーティクルの絞り込みを行った。絞り込みを終えた後、マニピュレータを用いてホットパーティクルの取り出しを行い、カーボンテープへ固定して、IP による位置確認を行った。この操作も繰り返し行い、放射能強度の強いホットパーティクルの絞りこみを行った(図 3.2-13)。カーボンテープ上に固定したホットパーティクルは、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能を確認し、SEM を用いて粒径を、EDX を用いて含有元素を確認した。

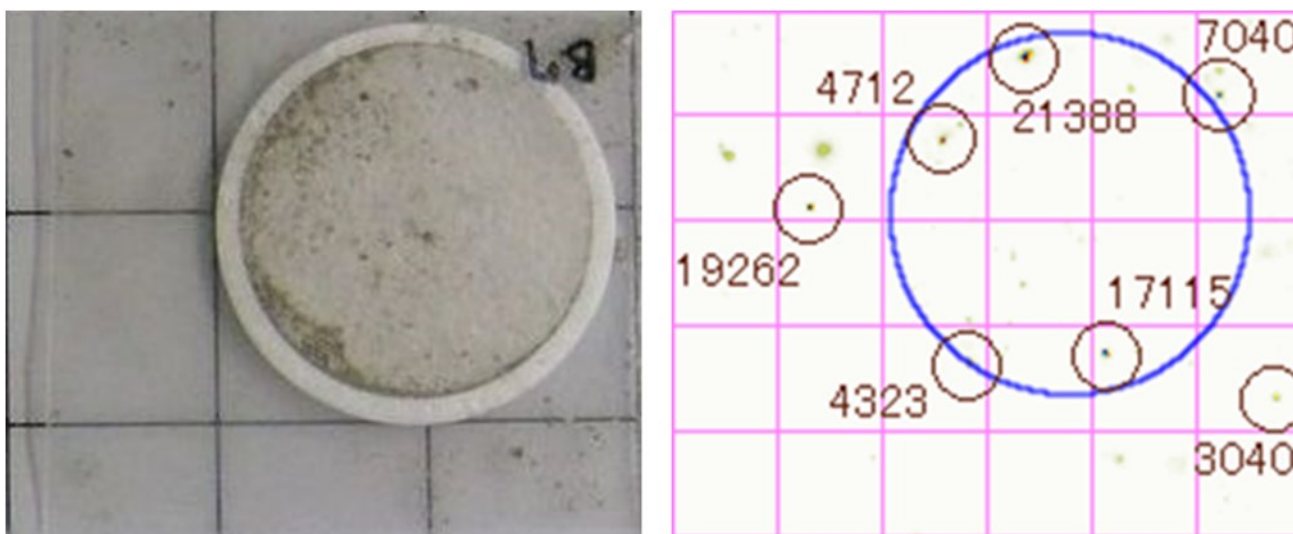


図 3.2-12 大気降下物試料のろ紙上不溶性成分の試料画像とホットスポット確認例

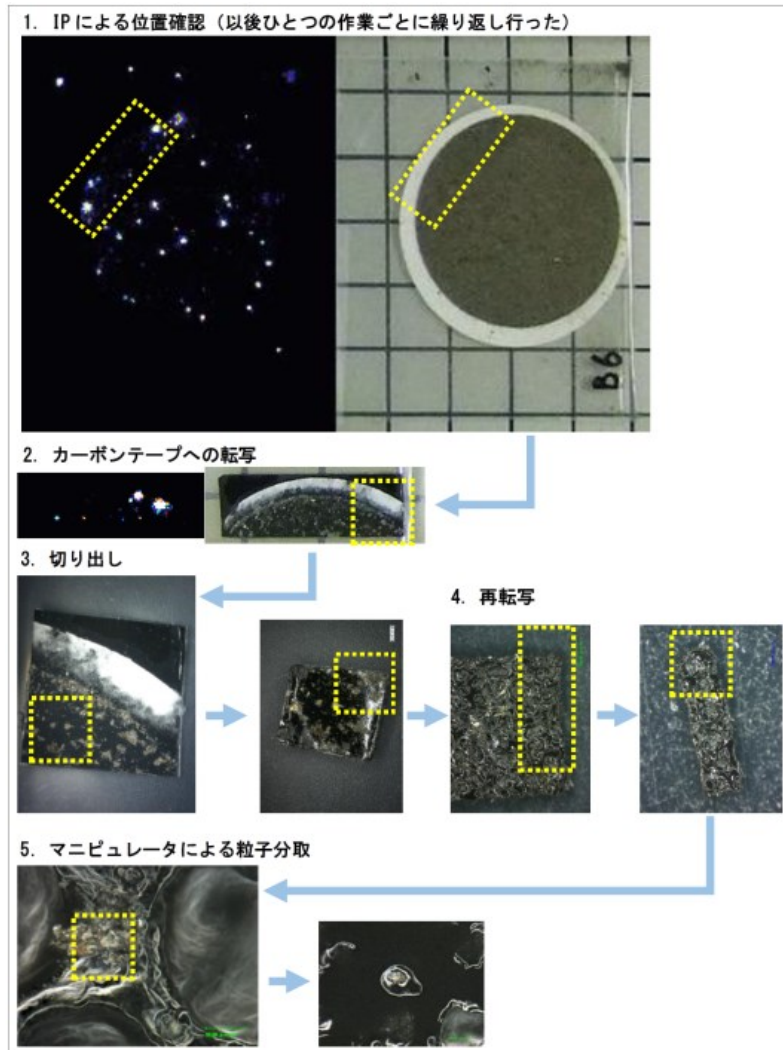


図 3.2-13 大気降下物試料のろ紙上不溶性成分に含まれるホットパーティクル転写確認例

取り出したホットパーティクルは、40～200 μm 程度であり、マニピュレータによる操作で、容易に破砕する粒子もあれば、試料固定用グリップシート上で強く押し付けても粉砕しない粒子も存在した。SEM-EDX 分析で Cs を含むことを確認した粒子 4 試料を図 3.2-14) に示す。SEM-EDX による反射電子組成像は、原子番号の大きな元素を白色に識別することが可能である。識別できた粒子のうち SEM-EDX を用いて Cs の X 線スペクトルを確認できた粒子は、球形に近く、推定粒径 1.0～1.5 μm、放射能 0.3～1.1 Bq であった (表 3.2-10)。Cs 以外では、Fe、Zn (その他、Al、Si、O、Cl、K、Ca、Sn) の元素が共通で検出された (図 3.2-15)。Adachi et al.³⁾および Abe et al.⁶⁾の先行研究で確認されている “Spherical Cesium-bearing Particle” (Cs ボール) の元素組成に類似していた。これらの結果は、IP で得られた面的放射能分布画像上に放射能強度の強いホットスポットが存在する場合、Cs ボールに類似したホットパーティクルが存在する可能性が高いことを示唆する。Cs を含む 4 粒子 (A1、A2、A-D6、A-F2、表 3.2-10) の総放射能は 3.1 Bq であり、取り出した不溶性成分 23.0 Bq (福島市 D 地点、平成 26 年 2/3 月期採取試料、表 3.2-9) に対し 13.5% を占めていた。4 粒子の総放射能は、福島市やつくば市で採取したその他の大気降下物の不溶性成分の放射性 Cs 量 (0.0866～2.77 Bq) よりも高い (表 3.2-9)。これは、大気降下物 (不溶性成分) 中放射性 Cs の放射能に占

めるホットパーティクルの寄与の大きさを示している。

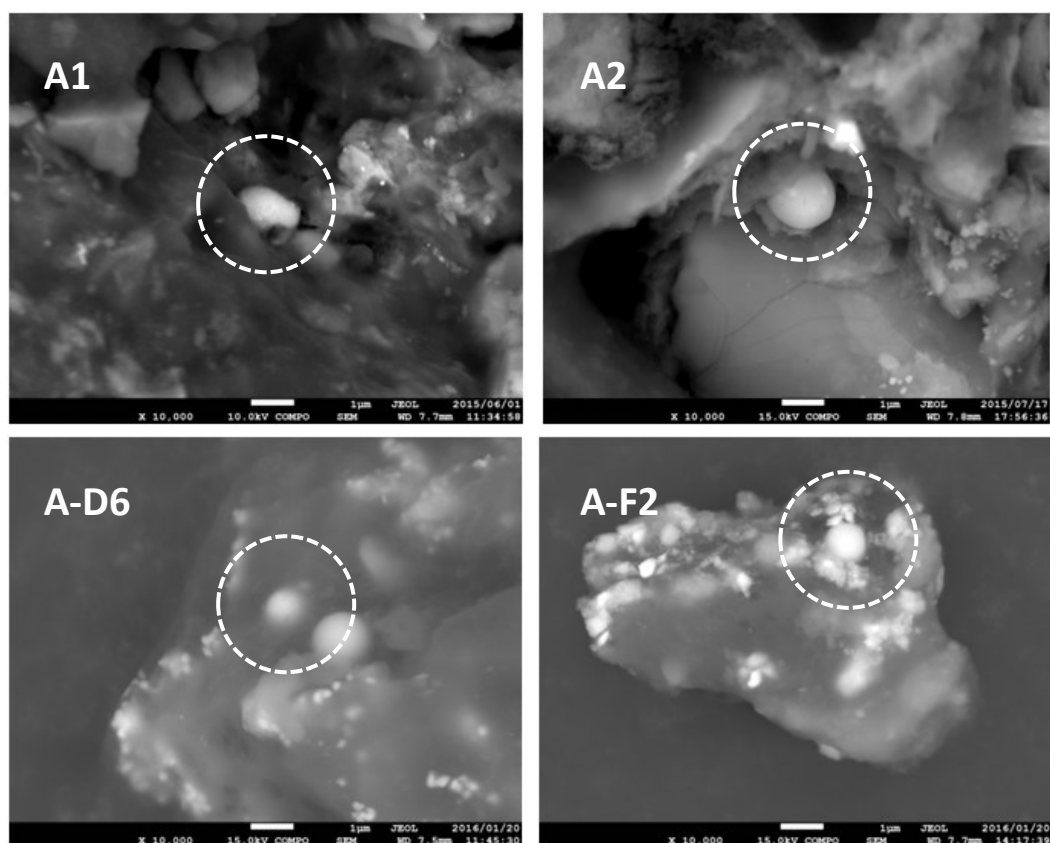


図 3.2-14 大気降水物（不溶性成分）から採取したホットパーティクルの反射電子組成像

表 3.2-10 大気降水物（不溶性成分）から採取したホットパーティクルの放射能と推定粒径

試料名	$^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}^*$	推定粒径
	(Bq)	(μm)
粒子 A1	1.1	1.5
粒子 A2	0.98	1.6
粒子 A-D6	0.66	1.1
粒子 A-F2	0.33	1.1
粒子 A2-5	0.51	NA
粒子 A-D1	0.37	NA
大気降水物（不溶性成分）	23	-

NA: Not available

*) 大気降水物（不溶性成分）の測定日に合わせて減衰補正した

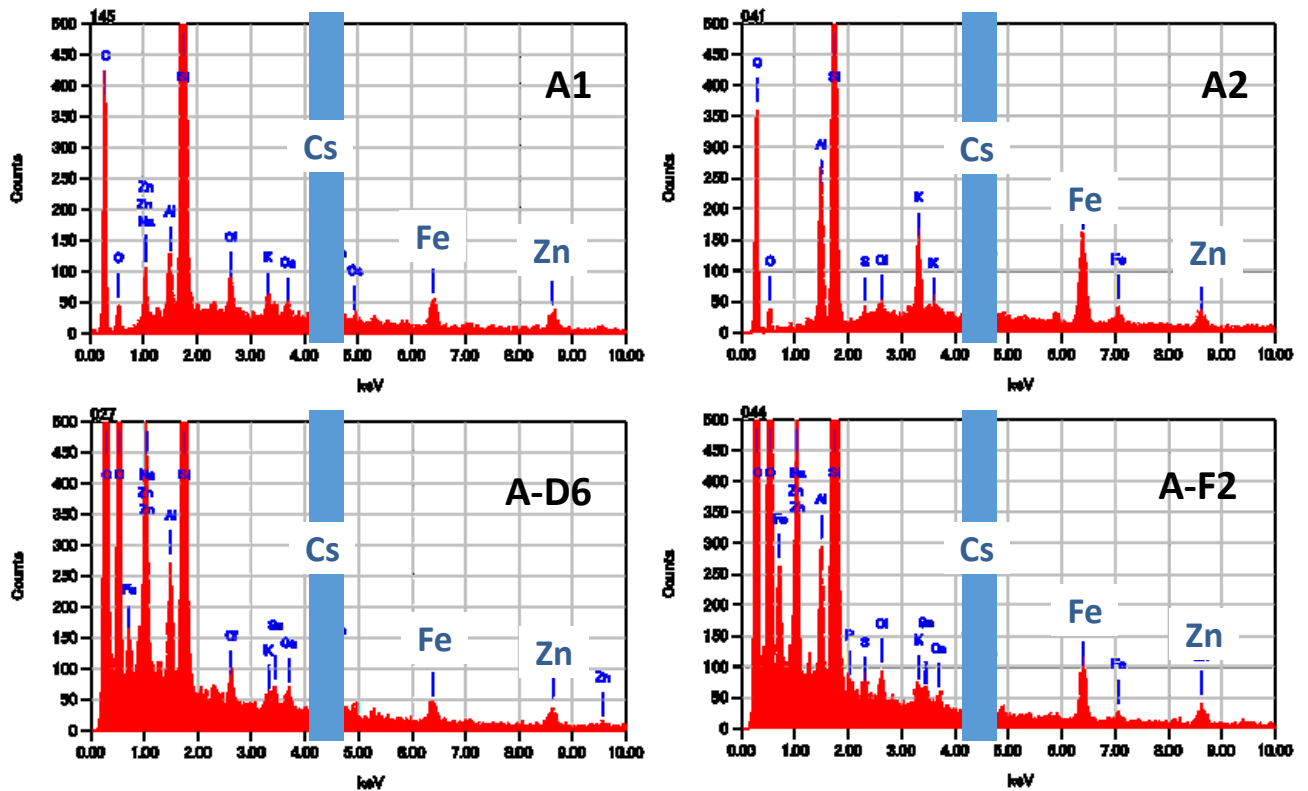


図 3.2-15 大気降下物（不溶性成分）から採取したホットパーティクルのEDS スペクトル

Cs を含む粒子が付着していた母体粒子（粒径 $40\ \mu\text{m}\sim 200\ \mu\text{m}$ ）の元素分析を行った結果、共通して O、Al、Si、Ca、Fe、K、Mg、Na（その他、P、S、Ti）が検出された。母体粒子の主要な構成元素は、O、Al、Si、Fe、Ca であり、全体の 90% 程度を占めていた。このうち、Al、Ca、Fe は、大気降下物や表層土壌の主要元素でもある。これらの結果は、放射性 Cs を含む粒子が表層土壌として存在しており、風等で土壌粒子と共に巻き上げられて、放射性 Cs を含む大気降下物となっていることを示唆しており、これまでの結果の解釈と矛盾しない。

③ イメージングプレートによるホットパーティクルの放射性セシウム評価における注意点

IP を用いたベータ線の検出は、面的な位置同定に有効である。一方で、ベータ線はガンマ線よりも遮蔽される放射線であるため、IP を用いて定量を行う際には深さ方向の遮蔽に注意が必要である。そこで、ホットパーティクルの放射性 Cs のベータ線がどの程度遮蔽されているのかを評価するため、 ^{134}Cs や ^{137}Cs とベータ線エネルギーが近い ^{36}Cl (0.709 [MeV]) の面線源を用いて、ポリエチレン袋による遮蔽効果を確認した。面線源のベータ線の直接計数と、面線源をポリエチレン袋 0.08 mm 厚に入れた場合の計数を比較すると、袋に入れることによって約 10% の計数が減少した。ベータ線が微小な物質を通過する場合、ベータ線が遮蔽されることで検出値に差異が生じることが分かった。

即ち、ホットパーティクルと IP との間にある母体粒子等による遮蔽によって、得られる測定値に差が生じることにも留意する必要がある。一例として、ホットパーティクル (A-D6) で得られた結果を図 3.2-16 に示す。これは、当該ホットパーティクルを絞り込む際に得られ

た結果であるが、測定面の違いによって得られる合計 PSL 値と最大 PSL 値を示している。図 3.2-16 をみると、D は、A と比較して、合計 PSL 値で 2 倍程度、最大 PSL 値で 14 倍以上高い値を示している。IP で取得した面的放射能画像の比較では、A は放射能の低い暗紫色から青色の放射線検出面積が広がっているのに対し、D は放射線検出面積が狭くなっているが、試料の中央は高い放射能を示す白色で占められていた。A は、Cs を含む粒子と IP の間に母体粒子やカーボンテープがあるため、放射性 Cs のベータ線エネルギーが拡散または遮蔽され、減衰して IP まで到達した結果によるものと推測される。一方、D は、Cs を含む粒子と IP の間に遮蔽がないため、含有放射性 Cs のエネルギーが拡散することなく IP に到達することで最大 PSL 値が強く検出されたものと推測される。

IP による放射性 Cs を含有するホットパーティクルの評価に際しては、遮蔽効果によるベータ線の減衰に起因する測定値の違いを考慮する必要がある。

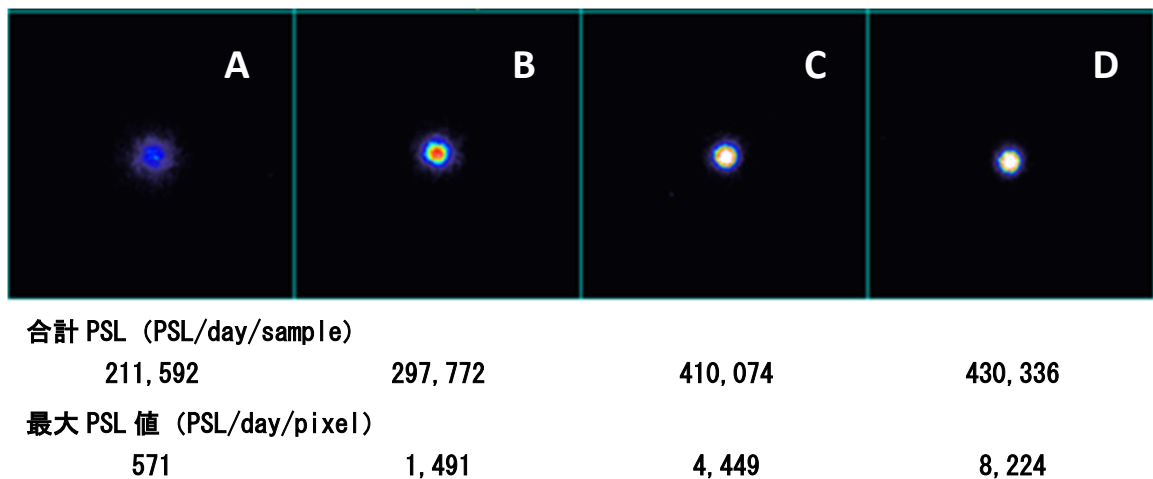


図 3.2-16 ホットパーティクル (A-D6) の測定面の違いによる合計 PSL 値と最大 PSL 値

④ イメージングプレートによるホットパーティクルの放射性セシウム評価

上述の注意点を踏まえて、表 3.2-10 に示す不溶性成分から取り出したホットパーティクルが付着する母体粒子を対象として、IP を用いて母体粒子 1 つ当たりの合計 PSL 値 (PSL/week/sample) と最大 PSL 値 (PSL/week/pixel) を測定した。測定値は、母体粒子の向きによって PSL 値が最大になるように測定し、対応する放射性 Cs 量 ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 、Bq) との関連性を評価した (図 3.2-17)。また、表 3.2-10 の採取試料に加え、同じ調査地点付近の表層土壌等環境試料から採取したホットパーティクルも含め、各試料の合計 PSL 値と最大 PSL 値と放射性 Cs 量の関連性を評価した (図 3.2-18)。

結果として、比放射能の高いホットパーティクルは、合計 PSL 値と最大 PSL 値の何れについても、放射性 Cs 量との正の相関性が確認された (図 3.2-17~18)。上記のホットパーティクルは、IP を用いた面的放射能分布上では明らかなホットスポットとして検出されるため、IP による PSL 値から、同様な性状のホットパーティクルの放射能の推定が可能であると示さ

れた。

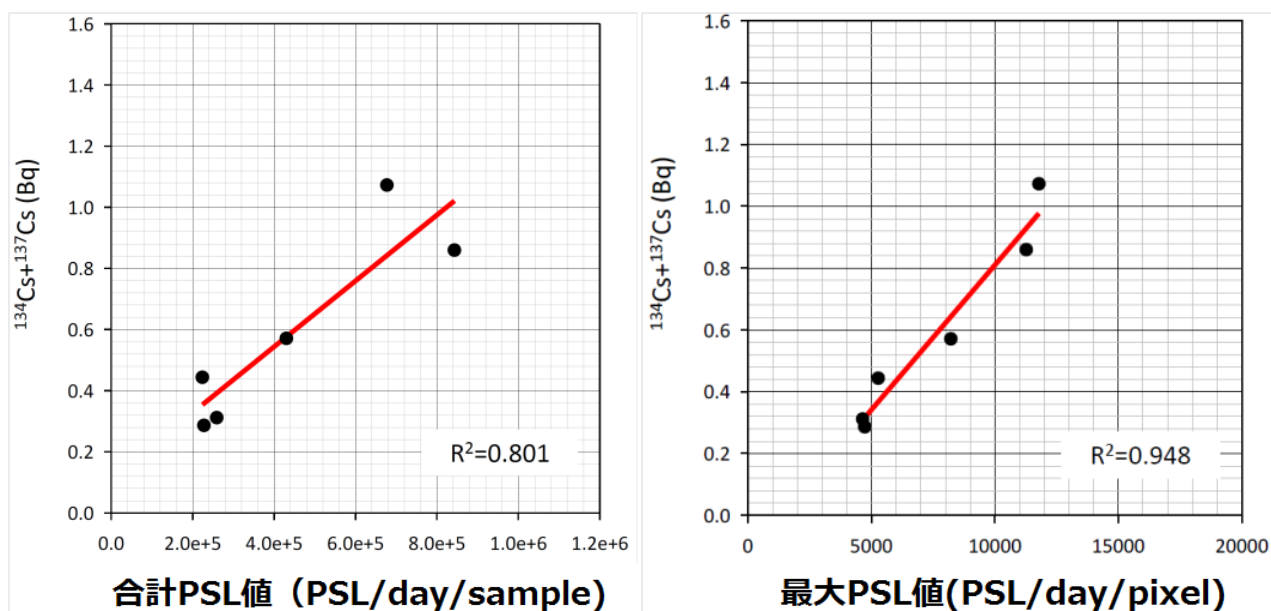


図 3.2-17 大気降下物（不溶性成分）から取り出したホットパーティクルの放射能（Bq）と合計 PSL 値（PSL/day/sample）及び最大 PSL 値（PSL/day/pixel）の関連性

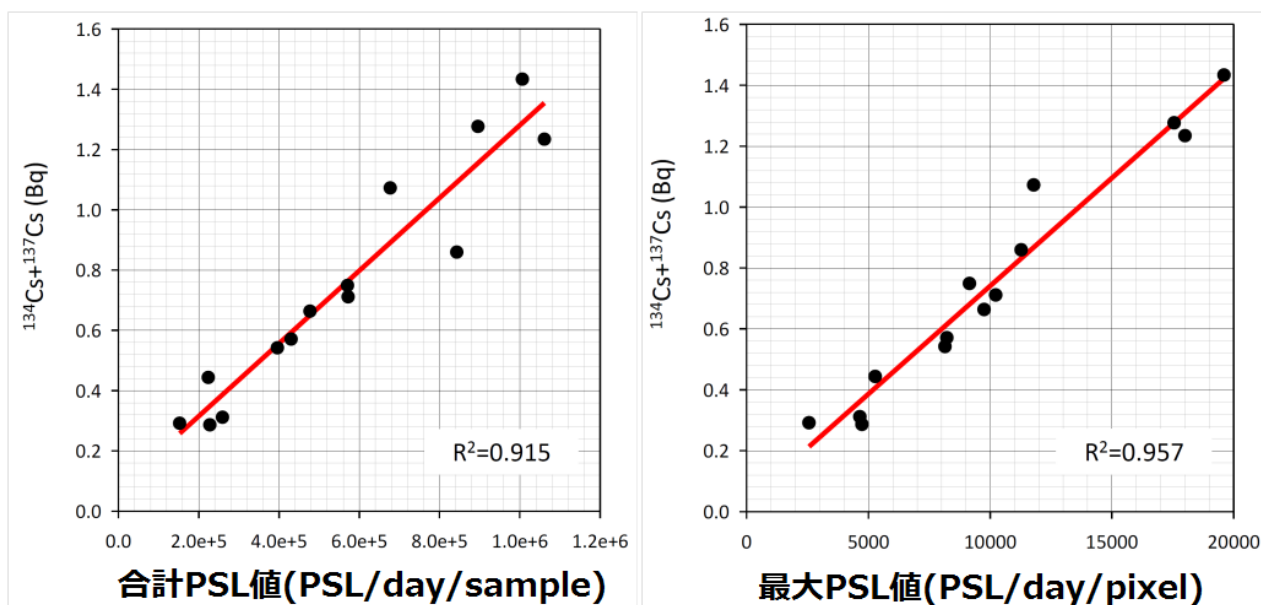


図 3.2-18 大気降下物（不溶性成分）、表層土壌及び下水流入水（不溶性成分）から取り出したホットパーティクルの放射能（Bq）と合計 PSL 値（PSL/day/sample）及び最大 PSL 値（PSL/day/pixel）の関連性

まとめ

本研究では、これまでの放射能測定の手法と異なる IP を用いた面的放射能測定、面的放射能分布から個別粒子の放射能測定の定量法、個別粒子分析法を評価した。ホットパーティクルのような比放射能の高い粒子については、粒子 1 つの放射能の定量、粒子 1 つの粒径と含有元素の測定が可能であり、PSL 値と放射性 Cs 量の関係から、IP の PSL 値から放射能の推定が可能であることが示された。これらの評価方法は、本研究で評価した試料と類似するものであれば、放射性 Cs を含有する廃棄物関連試料を対象とした粒子解析にも適用可能である。一方、本研究で言及していない微量の放射能を含む不溶性成分の個別粒子分析への対応は、今後検討が必要である。

参考文献

- 1) 国立環境研究所. 平成 26 年度災害環境研究成果報告書 第 2 編, 環境回復研究 1 –放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発–, 2015 年 9 月
- 2) 公益社団法人 日本アイソトープ協会, バイオサイエンスのためのアイソトープ測定機器: 第三シリーズ ラジアルミニグラフィ (RLG、放射線測定ルミネッセンス輝尽性技術), <http://www.jrias.or.jp/report/cat2/306.html> (平成 28 年 4 月 25 日閲覧)
- 3) Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y. and Y., Igarashi, 2013, Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident, Scientific Reports 3, Article number: 2554 (2013), doi:10.1038/srep02554
- 4) 降下物モニタリング結果情報, <http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec/16025d/teiji-kokabutsu.html>, (平成 28 年 4 月 25 日閲覧)
- 5) 福島県放射能測定マップ, <http://fukushima-radioactivity.jp/pc/>, (平成 28 年 4 月 25 日閲覧)
- 6) Abe, Y., Iizawa, Y., Terada, Y., Adachi, K., Igarashi, Y. and I., Nakai, 2014, Detection of Uranium and Chemical State Analysis of Individual Radioactive Microparticles Emitted from the Fukushima Nuclear Accident Using Multiple Synchrotron Radiation X-ray Analyses, Analytical Chemistry, 2014, 86 (17), pp 8521–8525, doi: 10.1021/ac501998d

3.2.3 焼却灰等に含まれる放射性ストロンチウム等他核種の評価

(1)はじめに

1) 背景

2011 年 3 月の福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性核種のうち、放射性物質汚染対処特措法では放出量が多く半減期の比較的長いセシウム 134 と 137 (Cs-134、Cs-137) を対象としている。福島第一原発に近い地域で進められる災害廃棄物の処理や除染、また中間貯蔵施設の造成や運用において、それ以外の長寿命核種の濃度や減容化等での挙動を把握し、適切に対応することも重要と考えられる。そのような核種の例として、半減期が Cs-137 と同程度であり、大気放出量と土壌沈着量が放射性 Cs のそれぞれ 1/100 程度、1/1,000 程度と見積もられているストロンチウム 90 (Sr-90) が挙げられる¹²⁾。

放射性 Cs と同様、放射性 Sr もそれを含有する廃棄物の焼却過程で焼却灰に濃縮されると

みられるが、焼却灰中の放射性 Sr の測定事例はごく少ない。環境省が 2012 年 2 月に実施した福島県内の一般廃棄物焼却施設の調査では、放射性 Sr 濃度は飛灰が 9.7 Bq/kg (Sr-89 と Sr-90 の和)、主灰が 13.9 Bq/kg (同) であった³⁾。また、国立環境研究所の平成 24 年度環境省委託業務において、同一施設で 2012 年 12 月に採取した焼却灰試料を公定法により測定したところ、Sr-90 の濃度は飛灰が 11.0 Bq/kg、主灰が 9.2 Bq/kg であった⁴⁾。新潟県柏崎市が 2012 年に実施した災害廃棄物の試験焼却では、試験焼却前の濃度が 2.6 Bq/kg、試験焼却中の濃度が 2.9 Bq/kg であった⁵⁾。放射性 Sr の焼却過程での挙動や焼却灰中濃度の地域差、採取時期による濃度変化等を議論するには、測定事例が不足している。このため、我々は、平成 26 年度に焼却施設 8 施設から採取した焼却灰試料 14 試料中の Sr-90 濃度を調査した⁶⁾。Sr-90 濃度は 2.3~7.75 Bq/kg と既往の調査結果と同程度であった。また、放射性 Cs は焼却時に揮散して飛灰に濃縮される傾向があるのに対し⁷⁾、放射性 Sr の飛灰への濃縮傾向は確認されなかった。

2) 目的

上述の背景を踏まえ、さらに Sr-90 の測定データの収集を進めること、上述の前年度調査結果と合わせて焼却施設の立地や試料採取時期による Sr-90 濃度の差違等について考察することを目的として研究を行った。

(2) 方法

1) 試料

今回、測定した焼却灰試料 8 試料を表 3.2-11 に示す。No.1~3 は平成 26 年度に簡易法⁶⁾により Sr-90 の測定を行った際に不検出であった試料である。焼却施設 6 施設の炉の形式は流動床炉の 1 施設を除きストーカ炉であり、立地は福島県中通りが 1 施設、浜通りが 2 施設、栃木県が 1 施設、千葉県が 2 施設であった。ほとんどは一般廃棄物焼却施設であるが、1 施設は災害廃棄物仮設焼却炉である。焼却灰は 2011 年 7 月~2015 年 8 月の期間に採取した。

表 3.2-11 焼却灰試料の一覧

No.	焼却施設	炉の形式	焼却施設の立地	試料種類	採取日	放射性 Cs* (Bq/kg)
1	A	ストーカ	千葉県	主灰	2012/4/25	3,091
2	B	ストーカ	栃木県	飛灰	2012/12/21	4,934
3	C	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2011/7/27	13,445
4	D	ストーカ	福島県浜通り	主灰	2015/8/4	77,872
5				飛灰		92,280
6	E	流動床	千葉県	混合灰固化体	2013/1/8	11,941
7				混合灰		12,316

*放射性 Cs 濃度は Cs-134 と Cs-137 の濃度の和である。

2) 方法

焼却灰試料中の放射性 Sr の測定は、文部科学省の公定法⁸⁾に準拠して行った。焼却灰試料は Sr と同族元素であるカルシウムを大量に含んでおり測定妨害となるため、炭酸塩分離としゅう酸塩分離を反復して行い、また水酸化物分離を追加することでこれを除いた。

①公定法

(乾燥・篩い分け・酸分解) 送付された試料をアルミ容器に分取し、乾燥・ふるい処理した。送付された試料量に応じて灰試料を分取し、Sr 担体を 50 mg 添加後、王水、過酸化水素により酸分解した。分解後、希塩酸にて溶解し、不溶物を吸引ろ過した。

(炭酸塩分離・しゅう酸塩分離) ろ液に水酸化ナトリウムを加えて pH>10 とし、炭酸ナトリウムを加えて炭酸塩沈殿を生成して Cs 等を除去した。沈殿を塩酸に溶解し、炭酸塩分離を繰返した。炭酸塩沈殿を遠心分離後、塩酸に溶解ししゅう酸を加え、水酸化アンモニウムにより pH を 4.0~4.2 に調節してしゅう酸塩沈殿を生成し、Fe 等を除去した。沈殿を塩酸に溶解し、再度しゅう酸塩分離を繰返した。しゅう酸塩沈殿は吸引ろ過後、600 °Cで一晩以上灰化した。

(水酸化物分離によるカルシウム除去) 灰化物を塩酸で溶解・ろ過し、ろ液に水酸化ナトリウムを加えて pH を 13.5 に調節し、水酸化物沈殿を生成した。傾斜法及び遠心分離により上澄み液と水酸化物沈殿に分け、水酸化物沈殿に温水酸化ナトリウムを加えて洗い、沈殿物中に残った Sr を回収し、水酸化物沈殿 (Ca 等) を除去した。回収液は先の上澄みに合わせ、炭酸ナトリウムを加えて炭酸塩沈殿を生成・一晩静置した。

(発煙硝酸処理・クロム酸処理・スカベンジング) 炭酸塩沈殿をガラスフィルター (1G4) でろ過、硝酸で溶解し、発煙硝酸を用いて硝酸塩を生成・分離した。さらにクロム酸バリウムの沈殿を生成して Ra 等を除去し、水酸化鉄 (III) 共沈により Y-90 を除去した (スカベンジング)。

回収率は、前処理溶液から少量分取して ICP 発光分光分析 (ICP-AES) により求めた。また、回収率計算に必要な試料に含まれる安定 Sr 濃度は、灰 1 g を酸分解し、適当な濃度に希釈して ICP-AES にて測定して求めた。

(測定) スカベンジングから 2 週間以上経過後、Sr-90 から生成し放射平衡に達した Y-90 を水酸化鉄 (III) と共沈させ (ミルクキング)、低バックグラウンド 2π ガスフローカウンタにより測定時間 100 分にて β 線計測を行った。また、測定は複数回行い、Y-90 の減衰を確認した。

(計算) Sr の回収率は次式により求めた。

$$\text{回収率 (\%)} = \frac{\text{(前処理済み溶液中の Sr 量 (mg) - 回収率用に分取した溶液分は差引く)}}{\text{(添加した担体 Sr 量 (mg) + 供試した灰試料中に含まれる Sr 量 (mg))}} \times 100$$

測定時点における Sr-90 濃度 (Bq/kg-乾重) は次式から算出し、採取日時まで減衰補正した。

$$\text{Sr-90 (Bq/kg)} = (\text{正味計数率 (cps)}) \div (\text{計数効率 (\%)}) \times 100 \times 100 \div (\text{回収率 (\%)}) \times 1000 \text{ (g/kg)} \div (\text{供試量 (g)})$$

(3) 結果及び考察

1) Sr-90 の測定結果

焼却灰試料中 Sr-90 濃度の測定結果を表 3.2-12 に示した。Sr 単体の回収率、Sr-90 の検出下限等から、問題なく測定できたものと判断した。

Sr-90 の濃度は 1.42~53.94 Bq/kg であり、施設 D で採取した No.4、5 を除くと既往の報告例と大差ない値であった。施設 D は福島県浜通り地方に立地する焼却炉であり、家屋解体廃棄物や片付けごみ、除染廃棄物を焼却処理している仮設炉である。このことから、原発近傍で発生した災害廃棄物や除染廃棄物を焼却した場合に、放射性 Sr を含む焼却灰が発生する可能性があることが示された。

表 3.2-12 焼却灰試料中 Sr-90 濃度の測定結果一覧

No.	焼却施設	供試量 (g)	安定 Sr (mg/g)	回収率 (%)	Sr-90 濃度 (Bq/kg)	
					濃度	検出下限値
1	A	70.21	0.27	75.1	3.81±0.20	0.25
2	B	70.34	0.16	76.3	1.42±0.13	0.22
3	C	40.12	0.22	77.3	6.80±0.35	0.38
4	D	20.08	0.09	72.2	29.05±0.96	0.72
5		20.06	0.24	79.8	53.94±1.23	0.62
6	E	70.32	0.33	84.7	6.95±0.24	0.18
7		70.36	0.36	80.7	7.74±0.26	0.18
8	F	80.18	0.30	75.6	6.50±0.23	0.18

平成 26 年度の測定結果と合わせたものを表 3.2-13 に示した。施設 D を除くと Sr-90 濃度は一桁の Bq/kg であり、放射性 Cs (Cs-134、Cs-137) と比較して 2~4 桁低い濃度であった。このことから、改正電離則や「事故由来廃棄物等処分業務ガイドライン」に従い放射線障害防止のための措置がなされている事業所であれば、放射性 Sr に対する追加的な配慮は不要と考えられる。

焼却炉の形式と Sr-90 濃度との関係は特にみられなかった。また、採取時期と Sr-90 濃度との間に特段の傾向はみられなかった。Sr-90 の濃度は放射性 Cs の濃度より極めて低いため、採取時期と濃度との関係を示すために追加で経時的な焼却灰の採取測定を行う必要はないと思われた。

表 3.2-13 焼却灰試料中 Sr-90 及び放射性 Cs 濃度一覧

No.	焼却 施設	炉の形式	焼却施設の 立地	試料 種類	採取日	放射性 Cs	Sr-90
						Bq/kg	
H26-7				飛灰	2011/12/28	20,953	4.14
H26-8				主灰		3,616	3.11
H26-9	A	ストーカ	千葉県	飛灰	2012/4/25	35,700	2.48
H27-1 (H26-10)				主灰		3,091	3.81
H27-2 (H26-14)	B	ガス化熔融	栃木県	飛灰	2012/12/21	4,934	1.42
H27-3 (H26-17)	C	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2011/7/27	13,445	6.8
H27-4	D	ストーカ	福島県浜通り	主灰	2015/8/4	77,872	29.05
H27-5				飛灰		92,280	53.94
H27-6	E	流動床	千葉県	混合灰	2013/1/8	11,941	6.95
H27-7						12,316	7.74
H26-5	F	ストーカ	福島県中通り	飛灰	2013/2/20	28,600	7.75
H26-6				主灰		2,656	6.09
H27-8				主灰		2,083	6.5
H26-1	G	ストーカ	福島県中通り	飛灰	2013/1/23	59,930	5.78
H26-3	H	ストーカ	福島県中通り	飛灰	2012/3/15	8,460	2.71
H26-4				主灰		1,588	7.23
H26-16	I	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2011/8/11	18,202	3.16
H26-18	J	ストーカ	福島県浜通り	飛灰	2013/11/7	3,810	3.49
H26-19				主灰		739	3.19

2) 放射性 Sr の焼却過程での挙動

上述の通り、放射性 Cs は焼却時に飛灰へ濃縮されやすいことが知られている。Cs-137 の飛灰中濃度と主灰中濃度の比は施設 D を除くと 5.19~11.1 と、飛灰への濃縮が確認された。一方、Sr-90 の飛灰中濃度と主灰中濃度の比は施設 D を除くと 0.375~1.33 と顕著な差はなく、放射性 Cs ほどには飛灰への移行は起きていないことが分かった。

施設 D では、飛灰中濃度と主灰中濃度の比は Cs-137 が 1.18、Sr-90 が 1.86 であり、放射性 Cs、放射性 Sr とも飛灰への移行が起りにくいことが分かる。施設 D では片付けごみや除染廃棄物を焼却している。これらの廃棄物は一般廃棄物とは性状が異なり、含有する元素も異なることが考えられる。一般廃棄物（厨芥）に比較的多く含まれる塩素分は放射性 Cs の揮散を促進して飛灰への移行に寄与することが知られており、また除染廃棄物等焼却物に土壌が含まれる場合には放射性 Cs は土壌に吸着され残渣（主灰）に残る傾向にある。施設 D では、そのような理由で Cs-137 の飛灰と主灰の濃度比が小さくなったものと推測さ

れた。一方、放射性 Sr については、焼却物の性状と挙動との関係はよく知られていない。そのため、除染廃棄物等から熱的处理等により放射性 Cs を積極的に除去した際に残渣に放射性 Sr が残留し、その後の扱いに特別の配慮を要することが起こるかも知れない。よって、別に述べる焼却シミュレータの放射性 Sr への拡張、実炉での焼却物を含めた調査、また焼却灰からの溶出性の評価等を進め、放射性 Sr の挙動の予測やその制御方法を今後確立してゆく必要がある。

表 3.2-14 Sr-90 と Cs-137 の飛灰中濃度と主灰中濃度の比

焼却施設	採取日	飛灰中濃度／主灰中濃度	
		Sr-90	Cs-137
A	2011/12/28	0.651	11.1
A	2012/4/25	1.33	5.71
D	2015/8/4	1.86	1.18
F	2013/2/20	1.27	10.8
H	2012/3/15	0.375	5.26
J	2013/11/7	1.09	5.19

3) 焼却灰中放射性 Sr 濃度の地域的特徴

焼却灰中の Cs-137 濃度に対する Sr-90 濃度の比は $1.21 \times 10^{-4} \sim 7.81 \times 10^{-3}$ であり、3-2-3(1)節に述べた土壌への沈着量の比（およそ 10^{-3} ）と概ね同程度であった。福島第一原発事故由来の Sr-90 の土壌沈着量の調査結果では²⁾、他の地域が高々数十 Bq/m² のオーダーであるのに対し、福島県浜通りの原発近傍では数百～数千 Bq/m² であることから、放射性 Sr は放射性 Cs ほどには大気移送されずに原発近傍に降下沈着していると考えられている。図 3.2-19 に地域毎の焼却灰中 Cs-137 と Sr-90 の濃度比を示した。採取時期や焼却物等が異なることに注意する必要があるが、飛灰では福島県浜通りの焼却施設が大きく、次いで福島県中通り、千葉県と栃木県は同程度であった。主灰では福島県中通りの焼却施設が大きく、次いで福島県浜通り、千葉県の順であり、おおまかには放射性 Sr の土壌沈着量の大小を反映しているものと考えられた。

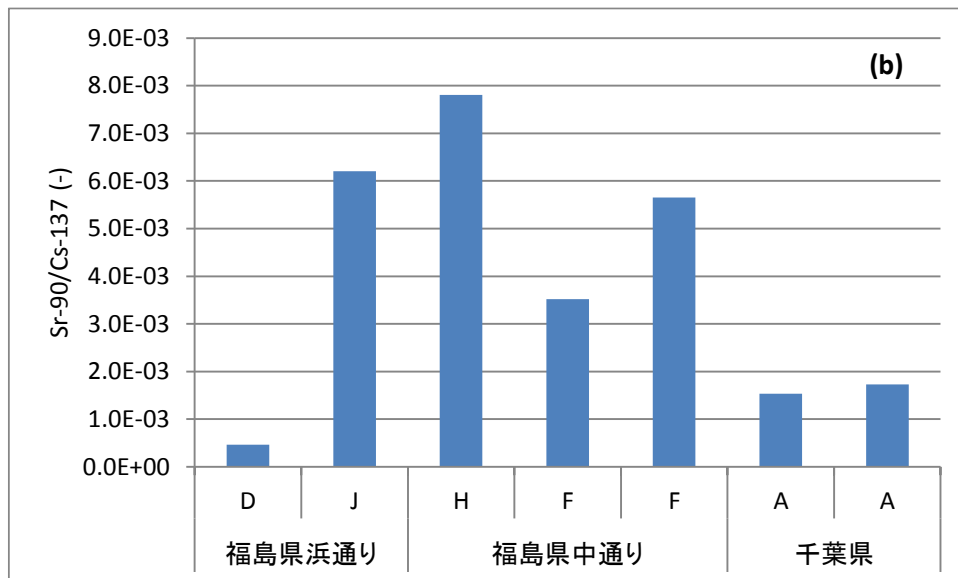
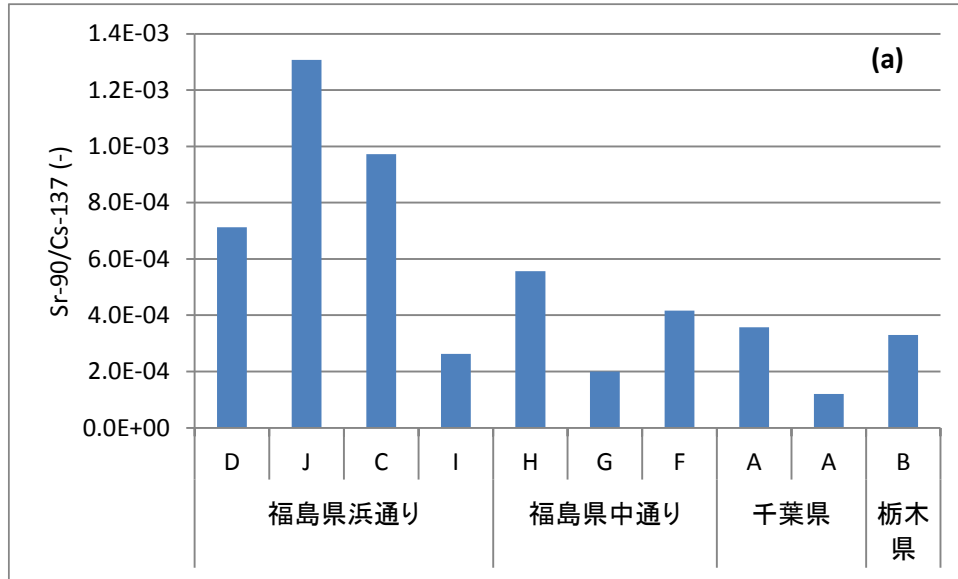


図 3.2-19 焼却灰中 Cs-137 濃度に対する Sr-90 濃度の比
(a) 飛灰, (b) 主灰

(4)まとめ

2011年7月から2015年8月に福島県、栃木県、千葉県で採取した焼却灰8試料中のSr-90濃度を測定した。Sr-90濃度は1.42~53.94 Bq/kgであり、福島県浜通りの仮設焼却炉で高濃度であった。仮設焼却炉を除いた施設でのCs-137の飛灰中濃度と主灰中濃度の比が5.19~11.1であるのに対し、Sr-90の濃度比は0.375~1.33であり、焼却過程での飛灰への濃縮傾向は見られなかった。Sr-90濃度とCs-137濃度の比は 1.21×10^{-4} ~ 7.81×10^{-3} であり、土壌沈着量の比と概ね同程度であった。Sr-90濃度とCs-137濃度の比と焼却施設の立地との関係では、飛灰では福島県浜通り>福島県中通り>千葉県、栃木県、また主灰では福島県中通り>福島県浜通り>千葉県の傾向が示され、Sr-90の土壌沈着量の大小をおおまかに反映し

ていると考えられた。

謝辞

焼却灰中放射性 Sr の測定には、(一社)九州環境協会にご協力を頂きました。深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 経済産業省 (2011) 放射性物質放出量データの一部誤りについて、
<http://warp.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/6086248/www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/20111020001.html> (2016年4月26日閲覧).
- 2) 文部科学省 (2012) 文部科学省による、①ガンマ線放出核種の分析結果、及び②ストロンチウム 89, 90 の分析結果 (第2次分布状況調査) について、
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6213/24/6213_20120912_rev20130701.pdf (2016年4月26日閲覧).
- 3) 環境省 (2012) 福島県内の焼却施設における放射性ストロンチウム及びプルトニウムの核種分析の結果について、第13回災害廃棄物安全評価検討会参考資料4、
http://www.env.go.jp/jishin/attach/haikihyouka_kentokai/13-mat_4.pdf (2016年4月26日閲覧).
- 4) 国立環境研究所 (2013) 平成24年度環境中の放射性廃棄物の動態解明および放射性物質に汚染された廃棄物等の効率的な処理処分等委託業務報告書.
- 5) 柏崎市 (2012) 東日本大震災による災害廃棄物の試験焼却に係るストロンチウム及びプルトニウムの測定結果について (報告),
http://www.city.kashiwazaki.lg.jp/haiki/kurashi/gomi/shisetsu/documents/201305091616035_1.pdf (2016年4月26日閲覧).
- 6) 国立環境研究所 (2015) 平成26年度災害環境研究成果報告書 第2編 環境回復1-放射性物質汚染廃棄物管理システムの開発-.
- 7) 国立環境研究所 (2014) 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: 第四版) 改訂版, 平成26年4月14日.
- 8) 文部科学省 (2003) 放射能測定法シリーズ2-放射性ストロンチウム分析法, 平成15年7月.

3.3 リスクコミュニケーション社会開発

3.3.1 指定廃棄物長期管理施設の候補地選定の進め方に関する一考察

(1)はじめに

放射性セシウムの濃度が8,000Bq/kgを超える、指定廃棄物の保管状況が逼迫している5県（宮城、茨城、栃木、群馬、千葉）では、国が新たに指定廃棄物長期管理施設（以下、「長期管理施設」という）¹⁾を整備する方針が決定し、平成26年度末までの施設確保を目指していた。しかし、指定廃棄物処分等有識者会議（以下、「有識者会議」という）、指定廃棄物処理促進市町村長会議（以下、「市町村長会議」という）の議論を経たうえで詳細調査の候補地となった市町では、地元自治体と住民による反対運動が起きており、平成27年9月現在、施設建設の見通しは立っていない。

そこで、本稿は、長期管理施設の候補地選定過程を整理し、リスクの観点も踏まえつつ問題点を指摘することを目的とする。

(2) 指定廃棄物とは

指定廃棄物は、福島第一原発事故により発生した、セシウム134と137の合計濃度が8,000Bq/kgを超え、環境大臣が指定した廃棄物である。この8,000という数値は、①処理・輸送・保管に伴って周辺住民の受ける線量が1mSv/年（公衆被ばくの線量限度）を超えない、②同じく、作業員の受ける線量が可能な限り1mSv/年を超えない、また、③処分施設の管理期間終了以後における周辺住民の受ける線量が10μSv/年以下（原子力安全委員会、2011.6.3）であることから定められたものであり、直接的には、試算の結果最も条件の厳しい（=被ばく量が大きくなる）埋立処分シナリオにおける作業員の被ばく量が基準の根拠となっている（大迫、2012.9.14）。このため、一般公衆を考えた場合、被ばく線量の許容限度を超えるのは8,000Bq/kgより大きな数値ということになる。

指定廃棄物の種類には、焼却灰、浄水発生土、下水汚泥、農林業系副産物（稲わら、堆肥）等があり、構成比は各県によって異なる。保管数量は、本稿で取り上げる5県においては、平成27年6月末時点で、宮城県3,404t（9市町、38か所に分散して一時保管）、茨城県3,533t（14市町、15か所）、栃木県13,533t（11市町、161か所）、群馬県1,187t（7市村、9か所）、千葉県3,690t（10市、18か所）である（毎日新聞、2015.8.10）。また、これ以外の7都県で指定廃棄物が指定されており、特に、福島県では7月末時点で136,342t（29市町村）が保管されている²⁾。

(3) 長期管理施設とは

長期管理施設は、各県内で分散して一時保管されている指定廃棄物を（県内1か所に）集約して処理する施設である。構造は、コンクリートで二重に囲んだ堅固なもの（表3.3-1）で、管理は、①国の職員が常駐、②定期的な点検・診断。必要に応じて補修、③敷地周辺の空間線量率、地下水の水質などを測定し、結果を公表（環境省、2015.9.13）するなど、ハード、ソフト両面から何重もの安全対策を講じることとしている。

表 3.3-1 長期管理施設の安全性

長期管理施設では、二重のコンクリートで遮断し、管理点検廊を設けるなど何重もの対策を講じ、雨水や地下水などが施設内に侵入することを防ぎます。水が廃棄物に接触しない構造とすることで放射性物質の漏出を防止します。これらの対策により、周辺住民の方々への健康に対する影響が生じないようにします。

1. 容器（フレキシブルコンテナ）で密封
2. すきまに土壌などをサンドイッチ状に埋設
3. 二重のコンクリートで遮断
4. コンクリートの腐食を防ぐ保護層の設置
5. ベントナイト混合土などによる遮断層の設置

出典：環境省，国が設置する長期管理施設の安全性

(4) 長期管理施設の候補地選定方針

1) 指定廃棄物処理の基本方針

平成 23 年 6 月、環境省は、放射性物質汚染廃棄物等の処分について福島県内での最終処分場建設を打診したが、県知事はこれを拒否した（環境省，2013.6.20）。復興に向けた取り組みを進めている福島県にこれ以上の負担はかけられないとの判断の下、平成 23 年 8 月 30 日公布の放射性物質汚染対処特措法（以下、「特措法」という）に基づく基本方針では、指定廃棄物の処理は当該指定廃棄物が保管されている都道府県内において行うものとされ、さらに、平成 24 年 3 月 30 日には「指定廃棄物の今後の処理の方針」（環境省，2012.3.30）が公表された。これにより、

- ・ 指定廃棄物は国が処分を行う
- ・ 指定廃棄物の処理は、排出された都道府県内で行う（裏返しとして、他県からのごみは持ち込まない）
- ・ 指定廃棄物の保管が逼迫している都道府県では、国が必要な処分場等を集約して設置する

という基本方針（表 3.3-2）が決定し、現在までこの枠組みは変わっていない。

この方針に則り、国は、宮城、茨城、栃木、群馬、千葉の各県に候補地選定の協力を要請、作業を開始した。その結果、平成 24 年 9 月に茨城県高萩市、栃木県矢板市が候補地として提示された（宮城県、群馬県、千葉県では未提示）が、地元の反発が非常に強く、地元への説明ができない状況となった。

表 3.3-2 関係 5 県における指定廃棄物の処理に関する経緯（選定方法見直し前）

-
- (1) **放射性物質汚染対処特措法（平成 24 年 1 月 1 日完全施行）**
放射性セシウム濃度が 8,000Bq/kg を超える焼却灰等の指定廃棄物は、国が処分。
- (2) **特措法に基づく基本方針（平成 23 年 11 月 11 日閣議決定）**
指定廃棄物の処理は、排出された都道府県内で行う。
- (3) **指定廃棄物の今後の処理の方針（平成 24 年 3 月 30 日 環境省公表）**
指定廃棄物が多量に発生し、保管がひっ迫している都道府県では、平成 26 年度末を目途として、国が必要な処分場等を集約して設置。
-

（太字、下線原文）

出典：環境省，指定廃棄物の最終処分場候補地の選定に係る経緯の検証及び今後の方針

2) 指定廃棄物処理の基本方針

先の結果を踏まえ、平成 25 年 2 月、環境省は、「指定廃棄物の最終処分場候補地の選定に係る経緯の検証及び今後の方針」（環境省，2013.2.25）を公表した。検証結果として、①選定作業の実施や選定結果の共有にあたり、市町村との意思疎通が不足、②候補地の提示にあたっての詳細な調査、専門的な評価の不足、③各県の状況を踏まえた対応が不十分であることが指摘され、今後の方針が示された（表 3.3-3）。ここで、見直しがあったのは候補地の選定方法であって、(4)1)で示された基本方針には変更がないことには注意を要する。

表 3.3-3 関係 5 県における指定廃棄物の処理に関する新たな選定プロセス

-
- ① **市町村長会議の開催を通じた共通理解の醸成**
- ・ 指定廃棄物処理に向けた共通理解の醸成
 - ・ 地域の実情に応じて考慮すべき具体的な事項についても、選定作業において十分配慮
- ② **専門家による評価の実施**
- ・ 3 月に専門家で構成される検討会を立ち上げ
 - ・ 施設の安全性の確保に関する考え方の議論
 - ・ 候補地の選定手順、評価項目・評価基準の議論
- ③ **候補地の安全性に関する詳細調査の実施**
- ・ 候補地の安全性に関する詳細調査（ボーリング等による地盤、地質、地下水等）の実施、評価
-

（太字、下線原文）

出典：環境省，指定廃棄物の最終処分場候補地の選定に係る経緯の検証及び今後の方針

(5) 市町村長会議における議論

1) 市町村長会議、有識者会議の開催状況

有識者会議は、現在までに 8 回開催されている。一方、市町村長会議は県によって 2～7 回の開催であり、進捗状況にかなりの差がみられる。以下では、市町村長会議の議論に焦点を絞り記述する³⁾。

2) 市町村長会議の議事録分析

長期管理施設の候補地選定手法が確定した 3 県（宮城、栃木、千葉）については手法確定までの会議（全県第 4 回まで）を、今現在確定していない 2 県（茨城、群馬）については現在までに開催された会議を分析対象とした。この 17 回分⁴⁾の会議議事録（環境省，2013-

2014) より、市町村長、県知事等の意見を切り出した結果、市町村・県合わせて 500 強の意見を抽出された。市町村ごとの発言数、発言内容に関する定量的分析は別稿に譲り、ここでは定性的に発言内容を概観する。

発言内容を類似意見に分類した結果を表 3.3-4 に示す。表に記載した以外にも、「迅速な施設整備」「国の姿勢・責任」「会議の進め方」「評価項目・指標」「風評被害対策」「地域振興策」「信頼・合意形成」「8,000Bq/kg 以下の廃棄物処理」等さまざまな論点が存在した。以下では、特徴的な 3 つの論点について記述する。

①「基本方針」

これは、(4)1)に示した「各県に 1 か所ずつ長期管理施設を整備する」方針であり、有識者会議も含めて全ての議論の前提となっている。しかし、いずれの県でも発言数は多く、全体としては最大の論点となっている。現行方針以外には、「福島県・東電敷地に集約」「全国で 1 か所に集約」「各県で複数個所に分散」「現地で継続保管」等が議論の中で挙げられ、特に福島県での集約処分が強く主張された。会議の回数が進んでも必ずしも議論は収束しなかったことから、議論の前提条件である基本方針について合意は不十分であったといえる。

②「保管状況の反映」

ここでは、指定廃棄物の保管状況を評価項目として採用する、すなわち指定廃棄物を保管していると点数が高くなる(=候補地に選ばれやすくなる)ことを容認するかどうかに焦点に当たっている。既に負担を負っているため追加的負担が相対的に小さく、また、廃棄物の移動費用やリスクが小さいことを重視するか、被害の集積を避けるかが論点であるが、そもそも指定廃棄物の「発生」を否定する意見も根強い(表 3.3-4「指定廃の位置付け」)。この結果、県により対応は分かれ、宮城県では保管量の評価の重み付けは 0 (=考慮しない)、栃木県では重み付けは 1/2、千葉県では重み付けは 1 (=他の評価項目と同等の扱い)となった。

③「政治責任」

これは政治家を構成員とする市町村長会議ならではの意見であり、「首長は全員落選」「政治生命に対する死刑宣告」等の発言がみられ、その是非はともかく、偽らざる本音であろう。このことは、表 3.3-4「市町村の同意」における同意の有無に関する矛盾(手続き上は同意は必要と考えるが、同意を求められると国と首長の連帯責任になるので困る)、「会議の位置付け」「施設の受入拒否」などを通じて非常に大きな影響を持つものと考えられる。

(6) 考察

有識者会議、市町村長会議を経て、宮城県では平成 26 年 1 月に加美町、栗原市、大和町の 3 か所、栃木県では平成 26 年 7 月に塩谷町の 1 か所、千葉県では平成 27 年 4 月に千葉市の 1 か所が詳細調査候補地として公表された(茨城県、群馬県では候補地選定手法が未確定)。しかし、はじめに述べたように、いずれの候補地でも地元と国の対立は解消されていない。そこで、市町村長会議と有識者会議の議論を通して、候補地選定過程のどこに問題があったのかについて若干の考察を加える。

表 3.3-4 市町村長会議における意見（一部抜粋）

意見分類	意見内容
基本方針	<ul style="list-style-type: none"> 8,000Bq/kg 以下にも苦勞しており、各自治体での処理の原則に則り、施設を各自治体に造るべき（県内分散） 5 県分でも福島への追加分は少ないので、国はもう一度受け入れの努力をしてほしい（福島・東電（合意形成）） 各県に責任を押し付けるのではなく、発生した場所に持って行ってもらいたい（福島・東電（発生者責任）） 現実的に 1 か所に絞るのは非常に難しいので、安全な形で現地保管継続を支持（現場保管）
問題共有・共通理解	<ul style="list-style-type: none"> 受け入れた市町村だけに責任を押し付けない旨を初めに記載すべき この会議には、保管量の多いところが相撲を取って、他は観客席で「頑張れ」という構図がある
会議の位置付け	<ul style="list-style-type: none"> 問題に正面から向き合わねばならず、有識者会議、市町村長会議の開催は一步前進 負の遺産をどうするかはこのような会議に馴染まず、環境省のアリバイ作りではないか
情報提供	<ul style="list-style-type: none"> 安心には閾値がないということで合理性のない感情論の数値が出回る状況を終わらせてほしい 施設に問題がないことを国が国民に説明し、報道も同じトーンでないと、市町村が説明するのは無理 住民に対する科学的知識に基づく説明を国の責任の中でお願ひしたい
安全・安心	<ul style="list-style-type: none"> 安全性は十分なものと納得するが、科学的な説明ばかりでは住民は理解できないことを前提としてほしい 安全のことだけを前面に押し出し納得しろという進め方には反対 処分場がここまで嚴重だということはかえってリスク、不安を強く抱かせる
指定廃の位置付け	<ul style="list-style-type: none"> 指定廃棄物は発生ではなく集積しているものであり、発生源だとされるのは困る 指定廃棄物の「発生」という言葉はおかしいので消してほしい
保管状況の反映	<ul style="list-style-type: none"> 町内の汚泥は広域的な公共事業から出たものなので割り戻して計算してほしい 保管量を指標に入れるのは、被害者に対してさらに加害することであり取り消してほしい 東電が発生事業者であるので、保管量を発生自治体に割り振るといふ発想は間違い
選定方法	<ul style="list-style-type: none"> 1 か所に絞ってから提示するのではなく、複数候補地を示し、現地調査をしたうえで 1 か所にすべき 費用の制約がないため、造れない場所はないという前提で考えているものと理解している
市町村の同意	<ul style="list-style-type: none"> 選定手順は理解できるが、最終的には市町村の同意を求めてもらいたい 国が責任を持ってやるのであれば市町村の同意は要らないのではないか 評価項目を了承したら、選定されたら受け入れなければならないように聞こえる
政治責任	<ul style="list-style-type: none"> 首長は権限を持つが、住民から選ばれたのであって、話を持ち帰って説明をする必要がある 首長には選挙があつて話が進められないので、国が処分場選定することを明確化すべき 候補地として提示された首長にとっては政治生命に対する死刑宣告に近い
施設の受入拒否	<ul style="list-style-type: none"> 廃棄物がゼロの自治体が選定された場合、より強い住民の反対で理解が得られない 8,000Bq/kg 以下でさえ苦慮している現状で、市町村長会議で話しても引き受け手はない 国有地が多いが、農業が基本の町であり、絶対に受け入れないとの町民の声がある

1) 議論の問題点

① 基本方針の堅持

繰り返しになるが、「各県に 1 か所ずつ長期管理施設（当初は最終処分場）を国が整備する」という基本方針は、候補地選定方法が見直され、有識者会議、市町村長会議が始まる前から決定されていた事項であり、現在に至る議論の前提である。この方針自体は、福島県も含めて各県内で指定廃棄物を処理するという、福島県の意見を踏まえつつ、公平性に重きを置いた妥当な方針であろう。

しかしながら、各県の市町村長会議においては異論が頻出した。論点は主として二点（表 3.3-4 「基本方針」「指定廃の位置付け」）で、一つは、福島には住めない場所があり、5 県の廃棄物を追加しても影響は小さいという、効率性、合意形成の面からの意見である。もう一

つは、発生者（発生場所）責任を問う、より原理的な主張である。いずれも一定程度の理解が得られる主張であり、例えば、前者については、5 県の指定廃棄物約 25,000t は、福島県の指定廃棄物 14 万トン弱の約 2 割、中間貯蔵施設約 1,600 万 m³～2,200 万 m³ の分を含めれば 0.1%程度に過ぎない。

このような声を受け、環境省は平成 25 年 6 月、福島県への集約について照会したが、回答は否定的であり、環境省は「特措法に基づく基本方針の見直しはせず、各県ごとに処分を進めることが現実的」（環境省，2013.6.20）とした。

ここで問題となるのは、基本方針の内容自体よりも、その変更が困難なことである。基本方針は、議論の中で効率性と公平性など複数の評価軸の兼ね合いにより決定されるべきであるが、初期から議論の自由度が減じられており、それが市町村長会議における「各県に処分場を造るという入り口の問題が首長に合意されていないと理解している」等の発言につながっている。当初の決まりごとを堅持することは信頼関係を維持するうえで重要ではあるが、除染の基準が実質的に 1mSv/年となった経緯などを振り返れば、変更できない前提は議論を難しくさせると言わざるを得ない。

②リスク概念の欠如

有識者会議の委員である米田（2014）は、有識者会議の議論を、

- ・（施設構造について）放射能が漏れた場合のリスクを定量的に評価するという考えではなく、実現可能な範囲で、できるだけリスクを減らそう、リスクの大きさを誰が見ても無視できる程度にしようという方針のように思われる
- ・有識者会議では、「様々な事故が発生した場合の周辺環境への影響を考慮するため、シナリオ評価を行い、リスクの程度を明らかにし、対策を講じられるようにすべき。」といった、リスクベースでの意見も出たが、定量的評価の検討には至っていないと評価し、「結論」を次のように結んでいる。
- ・指定廃棄物最終処分場の候補地選定で、現段階で住民に示そうとしている、あるいは住民から求められているのは、定量的リスク評価とは異なる、もっとシンプルなものなのかもしれない

これは市町村長会議でも同様であり、リスクを論じた意見はほぼ見られず、議論は(5)2)の論点以外では風評被害対策や地域振興策に偏りがちであった。首長は政治家であることから尤もといえるが、このような状況は今般の放射性物質汚染廃棄物問題に限らず、従来の廃棄物処理施設でもリスクは必ずしも正面から言及されてきた訳ではない。これは廃棄物処理施設が典型的な迷惑施設であることを考えると不思議であるが、施設を立地する側（推進者）と受け入れる側（受容者）が別の主体であり、推進者はあくまで受容者にお願いをするという構図である以上、リスクという理解が困難な概念ではなく、地元への配慮を形にした安全性が強調されるのは自然なことである。

しかし、このことが、候補地選定プロセスが見直されて 2 年以上経過した今に至っても、「長期管理施設はどのような施設なのか」、換言すれば、「指定廃棄物はどのように扱われるべきものなのか」についての共通理解を阻んでいるように見える。なぜならば、米田のいう

「リスクの大きさを誰が見ても無視できる程度にしようという方針のように思われる」状況においては、自覚的な目標値が設定し得ないからである。これは、しばしば問題となっている 8,000Bq/kg 以下の廃棄物の受入拒否問題と同根である。これは、民間処分場等が独自基準として 4,000Bq/kg 等を設定している問題であるが、この 4,000 には 8,000 の半分であること以上の意味はなく、したがって、国の基準が 4,000Bq/kg になれば、さらに半分の 2,000Bq/kg が新たな独自基準になるであろう。

リスクと正面から対することなく、「8,000Bq/kg による追加リスクは長期管理施設に相当するか（過剰か不足か）」⁵⁾に答えることはできない。本来は原発事故の文脈がなくても、この問いは成立するはずであるが、現状では大変困難な状況である。誠意を見せるというのでも解決策の一つではあることを否定はしないが、短期的には、心理的、政治的リスクを安全性の追求で低減することには限界があるうえ、長期的には、リスク評価によるある種の合理性を意思決定に活かすという精神からますます遠ざかるのではないかと懸念される。この問題が「政治責任（政治生命）」という枠組みで語られるのは、果たして正しい姿であろうか。

2) リスク研究者、リスク学会の役割

前項では、長期管理施設の候補地選定の問題点を二点に絞って考察した。最後に、リスク研究者、リスク学会の役割について考えてみたい。

指定廃棄物の問題に関しては、法律上国に責任があり、そこでの一連の問題は、第一義的には国が解決すべきなのは言うまでもない。例えば、選定経緯の結果である茨城県高萩市、栃木県矢板市における反発（(4)1）と、新たな選定プロセス（(4)2）の公表の間には政権交代があった。これは、それまでの約束事を再検討する、悪く言えば反故にする機会ともいえしたが、結果的に（賛否はともかく）見直しが行われることはなかった。

次に、市町村長会議と有識者会議について、市町村長会議では、結論から言うと影響力が限定的ではあったものの、基本方針に対する議論が活発に行われた。一方、リスク概念の取り扱いについては、理屈からして有識者会議の役割であったと考えられる。しかし、審議会、委員会は、段階的に合意を取っていく会議形式である以上、今回の有識者会議に限らず、前提をひっくり返す議論を行っていくのが現状であり、過度の役割分担を求めるのは（理想論はともかく）現実的ではない。

そこで、強調したいのは、リスク研究者、リスク学会の役割である。第三者であるからこそ、上記のいずれの主体も発言できないことを、「素朴な疑問・批判」「今更の疑問・批判」として発信することが可能である。発言をするからには批判を受ける覚悟が必要となるが、リスクの概念が軽んじられる風潮に異議を唱えないのであれば、リスク研究の意義も軽んじられるであろう。

注

- 1)指定廃棄物を保管する施設の名称は、当初「最終処分場」であったが、放射線量が下がった後に廃棄物の再利用や再処理を進めて施設を撤去し原状回復する案を環境省が提示（2015.4）したことを受け、現在では「長期管理施設」に変更されている。そのため、本稿

でも長期管理施設を用いる。

- 2)福島県の指定廃棄物は、既存の民間管理型最終処分場を国有化し、環境省の事業として埋立処分を行う方向で関係者との協議が進んでいる。
- 3)有識者会議の議論については米田（2014）を参照。
- 4)宮城県第1回会議は、有識者会議開始前であり、議事録が公開されていないので分析対象から除外した。
- 5)福島県民向けパンフレット（環境省,2015.6）では、「10万 Bq/kg以下の廃棄物は、既存の管理型処分場で安全に処分することができます。（中略）フクシマエコテックを活用して、速やかに埋立処分を行いたいと考えています。」とある一方、県民向けフォーラム（宮城県、栃木県）、地元への説明会（千葉県）資料によれば、宮城県、千葉県の指定廃棄物の大半、栃木県の約9割が放射能濃度8,000～30,000Bq/kgである。

参考文献

- 原子力安全委員会（2011.6.3）東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故の影響を受けた廃棄物の処理処分等に関する安全確保の当面の考え方について、
<http://www.env.go.jp/council/former2013/03haiki/y030-49/ref02-2.pdf>。
- 大迫政浩（2012.9.14）災害・放射能汚染廃棄物の処理における現状と課題、
<http://www.jie.or.jp/recycle/katudou/seminar%2012-9-14/kouen%209-14-3.pdf>。
- 毎日新聞（2015.8.10朝刊）クローズアップ2015：行き場ない指定廃棄物 処分場計画、東電敷地でも反発、
<http://mainichi.jp/shimen/news/20150810ddm003040081000c.html>。
- 環境省、国が設置する長期管理施設の安全性、
http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_other/disposal_site_safety/。
- 環境省（2015.9.13）指定廃棄物の課題解決に向けたフォーラム 説明用資料、
https://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_other/tochigi/pdf/forum_tochigi_150913_setsumei.pdf。
- 環境省（2013.6.20）指定廃棄物の県内処理について、
http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_other/conference/pdf/conference_05_05.pdf。
- 環境省（2012.3.30）指定廃棄物の今後の処理の方針について（概要）、
https://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/memo20120330_waste-shori_gaiyo.pdf。
- 環境省、指定廃棄物の最終処分場候補地の選定に係る経緯の検証及び今後の方針、
http://shiteihaiki.env.go.jp/initiatives_other/miyagi/pdf/conference_miyagi_02_01.pdf。
- 環境省（2013.2.25）指定廃棄物の最終処分場候補地の選定に係る経緯の検証及び今後の方針、
https://www.env.go.jp/jishin/rmp/attach/waste_fds-candidate_20130225-2.pdf。
- 米田稔（2014）放射能汚染廃棄物処分場の選定とリスク知覚，日本リスク研究学会第27回年次大会講演論文集。
- 環境省（2013-2014）指定廃棄物処理促進市町村長会議 議事録（宮城県：第2-4回、茨城県：第1-4回、栃木県：第1-4回、群馬県：第1-2回、千葉県：第1-4回）。
- 環境省（2015.6）特定廃棄物の埋立処分事業、
https://shiteihaiki.env.go.jp/pamphlet/pdf/landfill_disposal_pamphlet_var2.pdf。

3.3.2 情報源と信頼度からみるリスクコミュニケーションの課題

(1)はじめに

東日本大震災、および東京電力福島第一原子力発電所の事故から5年が経過した。筆者は

これまで、原発事故発災直後の混乱期に飛び交った不確実な情報、過度に危険を強調した情報、デマ情報などがその後の状況判断にどのような影響を与えているのかを調査してきた¹²⁾。特に、メディアの報道によってリスクが広く一般に知られるようになると、リスク認知に大きな影響を及ぼし³⁾、リスクに対する不安が偏って増幅されることを指摘してきた。相対的に小さなリスクであっても、繰り返し報道されることで、人はそれを過度に恐れるようになる⁴⁾。かつては、このような情報を伝える役目は新聞、テレビ、ラジオなどの限られた媒体に限られていたが、状況は大きく変わってきている。インターネットや SNS が普及して、個人の何気ない発言が、他者による十分な校閲・議論等を経ないまま、他人の目に触れる機会が増えている。これはすなわち、すべての人が「情報源」となりうることを意味する。不確実な情報、過度に危険に寄った情報が容易に、しかも迅速に広範囲に流布する状況が、リスク認知にも影響を与えている可能性は否定できない。

2014 年度は、こういった過度に危険を強調した（多くは科学的な根拠がない）言説の認知度および信頼度を Web アンケートによって調査した結果を基に、初期の報道の影響が事故から 2 年半(当時)を経た段階でリスク認識にどのような影響を与えているのかを考察した⁵⁾。また、2014 年度は、放射能や放射性物質の情報に限らず、普段の情報源として利用している媒体（人や組織など含む）の信頼度と普段からの印象を元に、信頼される情報媒体に必要な要素を検討した⁶⁾。

2015 年度は、15 項目の情報源の信頼度、普段からの印象に加えて、情報源に期待する印象について調査したので報告する。

(2) 方法

1) 調査対象

株式会社インテージリサーチの Web モニターに対し、「情報の信頼度に関するアンケート」と題した Web アンケート調査を行った。調査実施期間は 2015 年 3 月 6 日～9 日。日本全国、20～60 代の男女（性別 2 区分、年代 5 区分ごとに均等割り付け、各区分当たり 200 サンプル目標）を対象とした。最終サンプル数は 4,215 だった。

2) 質問内容および分析方法

調査項目は、情報源となる人・機関・メディア 15 項目【(1) テレビ、(2) ラジオ、(3) 新聞（インターネット版を含む）、(4) 本・雑誌、(5) インターネット（ホームページ、ブログなど）、(6) SNS（Twitter、Facebook、LINE など）、(7) 家族、(8) 職場の人、(9) ママ友・パパ友、(10) 近所の人、(11) 友人、(12) 学校や保育所の先生や職員、(13) 大学や研究機関の専門家、(14) 国の機関（学会や省庁など）の刊行物など、(15) 自治体（県や市区町村）の刊行物など】を選び、それぞれに対する信頼度を 5 段階のリッカード尺度法で尋ねた。また、普段からの印象についてを 30 の形容詞【①公平である、②正確である、③速報性がある（迅速である）、④欠かせない、⑤役立つ、⑥専門性がある、⑦楽しい、⑧何度も読み返せる・聞き返せる（保存性がある）、⑨話題性がある・最先端である、⑩親しみやすさがある、⑪手に入れやすい、⑫コストがかからない、⑬分かりやすい、⑭オーダーメイドな情報・ローカ

ルな情報が得られる、⑮双方向性がある、⑯親身になってくれる、⑰権威的である、⑱頼りになる、⑲独自性がある、⑳癒される、㉑代表性がある・多くの人の意見と同じである、㉒情報量が多い、㉓情報の更新性が高い、㉔自分の意見と同じである、㉕ブランド力がある、㉖影響力が強い、㉗誠実さがある、㉘オピニオンリーダーである、㉙便利である、㉚仲間意識を抱く】の中から選ぶ複数回答方式で尋ねた。つづいて、各情報源（15種）に対する**期待する印象**についてを上記と同じ30の形容詞の中から選ぶ複数回答方式で尋ねた。

アンケート調査の結果の解析には、IBM SPSS Statistics Version 22.0 を用いた。

(3) 結果および考察

11,691 の調査依頼に対し、4,215 の有効回答を得た。回収率は 36.1%であった。

まず、情報源 15 項目それぞれに対する、普段からの信頼度の結果を示す（図 3.3-1）。家族の信頼度が非常に高く、「とても信頼できる」（24.5%）、「ある程度信頼できる」（49.9%）を合わせると 74%に達した。次に信頼できるとされたのは新聞で「とても信頼できる」（5.1%）、「ある程度信頼できる」（54.9%）を合わせて 60%という結果となった。次に、この結果を、昨年度（2014 年度）に実施した調査結果と比較してみた。多くの項目がほぼ同じ結果になったが、(1) テレビ、(5) インターネット、(13) 大学や研究機関の専門家、(14) 国の機関の刊行物など、(15) 自治体の刊行物などで大きな差が見られたので抜粋して示す（図 3.3-2）。これを見ると、テレビやインターネットが信頼度を落としているのに対し、専門家、国の刊行物など、自治体の刊行物などが信頼度を上げているのがわかる。専門家、国、自治体は、「とても信頼できる」「ある程度信頼できる」を合わせた値がいずれも 15 項目の情報源のうちでも、家族、新聞に次ぐ結果となっている。東日本大震災後、国や自治体、専門家の信頼度が著しく下がっていたが、徐々に回復しているのではないかと推察される。

次に、信頼度と印象との関係を、SPSS 統計解析ソフトを用いてコレスポンデンス分析を行った（図 3.3-3）。

15 項目の情報源ごとの特徴を、印象の形容詞とともに図示すると、2次元のグラフ上に合わせてプロットしている。

横軸は、自分に対して親しみがあるかどうかの関係が強く、ここでは「感情的側面、論理的側面」を示す「感情的／論理的」としている。一方の縦軸は、昔から存在する手法や、堅いイメージという意味の「伝統的」と、近年多用されるようになった進歩的な手法や速報性のある流動的手法を意味する「先進的」とに分類した。また、これらの形容詞の分類データをもとに Ward 法による階層クラスタ分析を行ったところ、6つのグループに分かれた。

テレビ、インターネット、ラジオ、SNS 対しては、㉙便利である、㉓速報性がある、㉓情報の更新性が高い、㉒情報量が多い、を感じていることがわかった（水色）。このグループの結果は、2014 年度の調査とほぼ同じ結果であるが、2014 年度は、㉚コストがかからない、と近接しており別のグループに分かれていた SNS が、本年度の調査では同じグループに吸収された。逆に、前回同じグループだった、新聞、本・雑誌と自治体の刊行物は、自治体の刊行物がグループを外れ別グループに分かれた（紫）。自治体の刊行物には、㉑代表性がある、㉒独自性がある、㉑公平である、などの印象があることがわかった。一方の新聞、本・雑誌に対

しては、②⑥影響力が強い、⑧何度も読み返せる・聞き返せる（保存性がある）、印象を抱いていることが分かった。

国の機関の刊行物や大学・研究機関の専門家は、⑥専門性がある情報という印象が強い（緑）。情報源の中でも人を示す項目の多くが入ったグループ（赤）では、⑮双方向性がある、⑯親身になってくれる、⑲自分の意見と同じである、⑳仲間意識を抱く、2014年と同様のグルーピングになった。信頼度が高かった、家族（赤グループ）、自治体の刊行物（紫グループ）、専門家、国の刊行物（緑グループ）の結果と併せて考えると、⑯親身になってくれる、⑩親しみやすさがある、⑳仲間意識を抱く、は重要ではあるが、㉑代表性がある、⑥専門性がある情報が、より信頼されるようになってきたと考えられる。これは、本来の情報源の信頼度の在り方に近い結果であり、2011年3月に失われ混乱していた信頼に対する考え方が、徐々に正常化してきたのではないかと考えられる。

次に、情報源に対する期待度に対する結果を示す（図 3.3-4）。市民が、普段からの印象と比較し、情報源に対してどのような期待を持っているのかを調べたグラフで、右側に伸びているものほど、市民が求めている印象であることを示す。これをみると、情報源に対しては、⑥専門性がある、⑰権威的である、⑳ブランド力がある、㉒オピニオンリーダーである、ことよりも、⑫コストがかからない、⑲自分の意見と同じである、⑮双方向性がある、㉓誠実さがある、㉔癒される、などの印象が求められていることがわかる。

これは、ひとつ前の結果（専門家や自治体の信頼度が高い結果）と相反するように見えるが、専門性の高い情報の「情報そのもの」に対する信頼が高まっていることを意味していると考えられる。

情報源に対して期待しているのがより感情的で自分に寄り添ったものであるのに対し、専門的で公平性の高い情報が結果としては信頼度が高いことを示している。

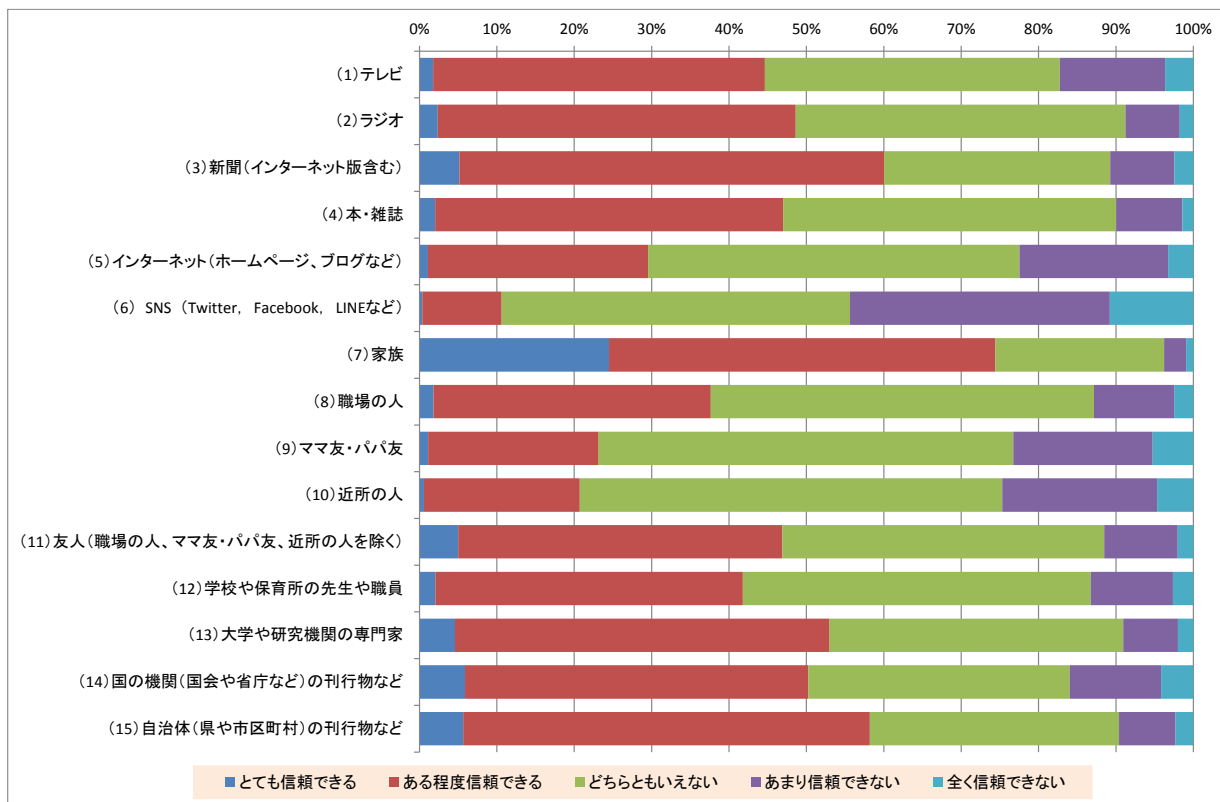


図 3.3-1 情報源の信頼度

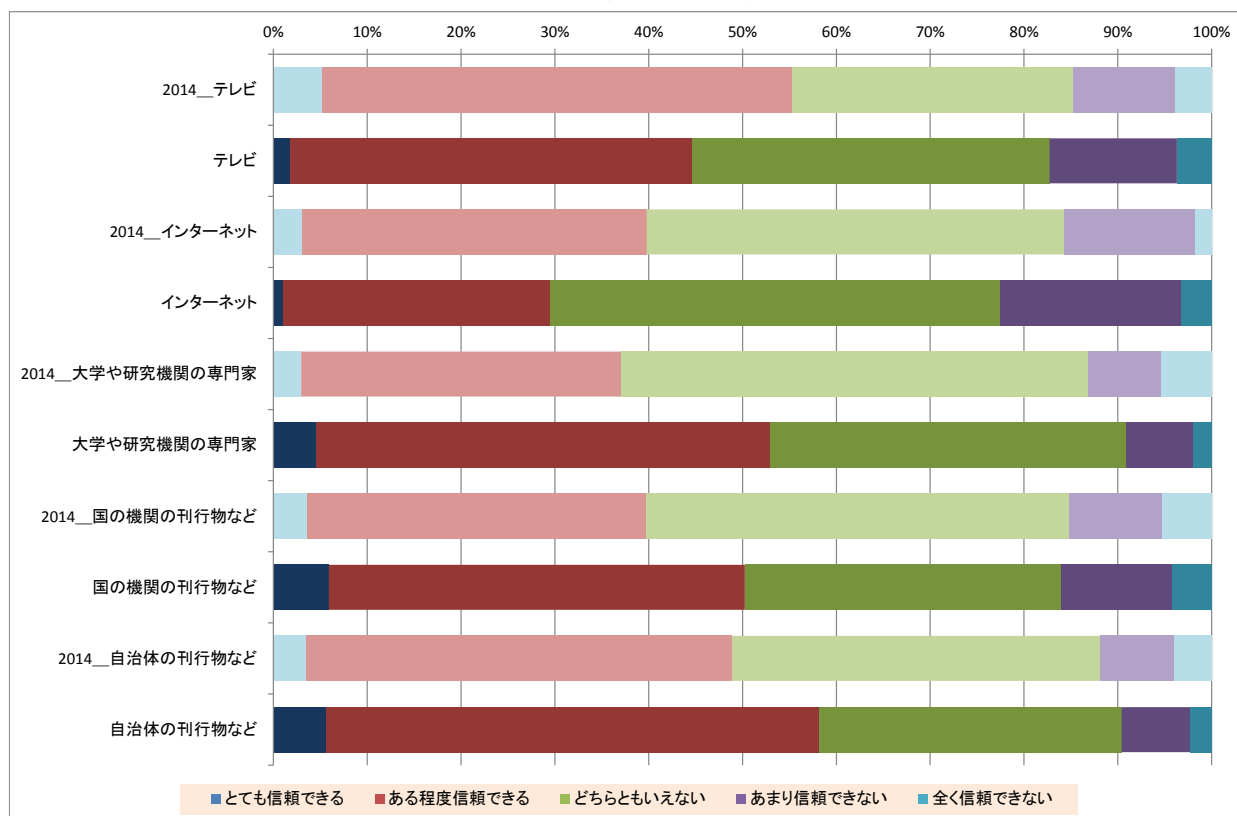


図 3.3-2 信頼度の変遷 (2014年度と2015年度の結果の比較)

(4) 課題

災害等が起きた場合、迅速かつ正確な情報提供は不可欠である⁷⁾が、情報は利用されなければ意味が無い。また、未知のリスクに対しての不安は、既知のリスクに対する不安よりも大きくなるため、情報源に対する不信感が少しでもあれば、その情報源は利用されにくくなる。

今回の調査で、大学や研究機関の専門家、国や自治体から発信される情報に対する信頼は、専門性が高く正確な情報であることや公平性が担保されている安心感からか、回復傾向にあることが読み取れた。我々の情報が、市民にとって、利用度が高く信頼される情報となるためには、市民が目にする機会を増やしていく必要があるだろう。研究機関も、インターネットを利用したり、冊子を作成配布したり、シンポジウム等のイベントを行ったりして積極的に社会に発信する努力を行い始めている。しかしながら、相手のニーズを無視した独りよがりの発信であることも少なくない。市民の細かな情報ニーズの全てに丁寧に対応していくことは困難ではあるが、ある程度、双方向のやり取りを可能とするような情報提供を行う窓口の設置など、今後の検討課題としていくべきではないだろうか。特に、緊急時の情報発信の迅速性については、さらに力を入れて取り組んでいくべき課題だろうと考えられる。

また、市民が情報源に期待する感情的な側面、いわゆる、身近な情報、双方向のやり取りを通じて感じる「自分のことを心配してくれているという安心感」にどこまで寄り添えるかは重要な課題のひとつであろう。

本調査は、情報源から発信される内容を限定していない。例えば環境問題に限ってみても、人々の関心は社会情勢等に応じて頻繁に変化する⁸⁾。さらに、扱われる内容によって、情報源の信頼度は大きく変わることもわかっている⁹⁾¹⁰⁾¹¹⁾。事故直後の緊急時と、比較的状況が安定してきた現在とでは、情報源に求めるニーズも違うだろう。2014年も言及した通り、大きな災害が起こった場合、リスクコミュニケーションは、緊急時を抜け出した後すぐから必要となる。同時に、リスクに対する知識そのものが社会に不足している状況では、リスク教育も不可欠である。今回の福島第一原子力発電所の事故に関連した放射能問題においては、まさにこの、放射能に対する知識の不足、リスク教育の不足が、リスクコミュニケーションを難しくしたと考えられている。リスクのトレードオフは、市民自らが、自分なりのものさしを持ってリスクを判断することで可能になる。

科学コミュニケーションという広い視点でとらえた時、科学者が市民に情報を伝えていく際には、信頼感の構築も大事な視点となる。今回の調査で、専門性の高い情報の信頼度が回復傾向にあることがわかったので、我々専門家、研究機関が発信する情報が情報源としての利用度（接触度）をあげていくために、今後も、情報発信の工夫をしていく必要がある。積極的な情報発信の方法や、相手のニーズをくみ取る双方向のやり取りの工夫については、科学コミュニケーションの課題として、これからも検討していきたい。

(5) まとめ

情報源の信頼度がどのような要因で醸成されるのかを調べるため、情報源となる人・機関・

メディア 15 項目【(1) テレビ、(2) ラジオ、(3) 新聞（インターネット版を含む）、(4) 本・雑誌、(5) インターネット（ホームページ、ブログなど）、(6) SNS（Twitter、Facebook、LINE など）、(7) 家族、(8) 職場の人、(9) ママ友・パパ友、(10) 近所の人、(11) 友人、(12) 学校や保育所の先生や職員、(13) 大学や研究機関の専門家、(14) 国の機関（学会や省庁など）の刊行物など、(15) 自治体（県や市区町村）の刊行物など】を選び、それぞれに対する利用度、信頼度を 5 段かの指標で調査した。また、普段からの印象についておよび期待する印象についてを 30 の形容詞の中から選ぶ Web アンケート調査を実施した。

その結果、以下のようなことがわかった。

- ・ 情報源の信頼度は、家族が非常に高く、「とても信頼できる」、「ある程度信頼できる」を合わせると 74%に達した。次に高かったのは新聞である。
- ・ 2014 年度まで高かったテレビやインターネットの信頼度が低下し、代わりに、自治体の刊行物、国の機関の刊行物、大学や研究機関の専門家の信頼度が上昇した。
- ・ 新聞、本・雑誌と自治体の刊行物には、保存性、公正さ、代表性などの印象を抱いていることが分かった。
- ・ 自治体の刊行物も、新聞や本と同じような印象を抱かれている。
- ・ 国の機関の刊行物や大学・研究機関の専門家は、専門的な情報であることが信頼されている。
- ・ 信頼される情報というのは、当然のことであるが、正確性や公正性などを担保した上で、個人にとって役に立つと感じられる情報、身近な情報であることが求められていることが示唆された。

参考文献

- 1) 佐野和美、菊池誠（2012）、福島第一原発事故に関わる科学的問題を週刊誌はどのように報じたか、第 25 回日本リスク学会講演論文集、 274-279.
- 2) 佐野和美（2014）、福島第一原子力発電所事故後の週刊誌報道の分析と情報の扱われ方、日本マス・コミュニケーション学会 2014 年度春季研究発表会発表論文集、pdf オンライン
- 3) 福田充(2010)、リスクコミュニケーションとメディア：社会調査論的アプローチ、北樹出版
- 4) Kasperson, R. R., O. Renn, P. Slovic, H. S. Browan, J. Emel, R. Goble, J. X. Kasperson and S. Rtick. 1988. The social amplification of risk: A conceptual framework. Risk Analysis , 8: 177-187.
- 5) 佐野和美（2013）、放射能についての「リスク不安と情報ニーズ」に関する調査、第 26 回日本リスク学会講演論文集
- 6) 佐野和美（2014）、情報源と信頼度からみるリスクコミュニケーションの課題、第 27 回日本リスク学会講演論文集
- 7) 中谷内一也・編（2012）、リスクの社会心理学、有斐閣
- 8) 松橋啓介、森口祐一、寺園淳、田辺潔（2000）、問題領域と保護対象に基づく環境影響総

合評価の枠組み、環境科学会誌、13(3):405-419

- 9) 楠見孝、三浦麻子、小倉加奈代 (2011)、福島第一原発事故による食品の放射能汚染情報の信頼性評価(1): 批判的思考とメディアリテラシーが及ぼす効果、日本心理学会第 52 回大会発表論文集、19
- 10) 楠見孝、三浦麻子、小倉加奈代 (2011)、福島第一原発事故による食品の放射能汚染情報の信頼性評価(3): 大学生における 1 ヶ月毎 4 カ月後の比較調査、第 24 回日本リスク研究学会講演論文集
- 11) 楠見孝、三浦麻子、小倉加奈代 (2012)、食品放射能リスク認知に及ぼす批判的思考態度と高次リテラシー: 震災後の市民パネル調査データによる検討(2)、日本社会心理学会第 53 回大会発表論文集、372