



宮崎大学学術情報リポジトリ

University of Miyazaki Academic Repository

リン酸・マグネシウムを用いた焼却飛灰中セシウム・鉛の不溶化に関する研究

メタデータ	言語: jpn 出版者: 宮崎大学工学部 公開日: 2020-06-21 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 諸岡, 龍, 土手, 裕, 関戸, 知雄, Morooka, Ryo メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10458/5868

リン酸・マグネシウムを用いた焼却飛灰中セシウム・鉛の不溶化に関する研究

諸岡 龍^{a)}・土手 裕^{b)}・関戸 知雄^{c)}

Simultaneous Insolubilization of Cesium and Lead in Incineration Fly Ash Using Phosphoric Acid and Magnesium Solution

Ryo MOROOKA Yutaka DOTE Tomoo SEKITO

Abstract

In order to obtain the knowledge on simultaneous insolubilization of cesium and lead in incineration fly ash using phosphoric acid and magnesium solution, the insolubilization experiments of cesium in aqueous solution by the addition of phosphoric acid and magnesium solution and leaching test of stabilized fly ash were conducted. pH less than 12 was necessary to insolubilize cesium as CsMgPO₄ using phosphoric acid and magnesium. It was necessary to add the amount of phosphorus in P/Cs of 1000 in a molar ratio to fly ash to reduce lead concentration in leachate to the landfill standard of 0.3mg/L or less. At P/Cs of 1000, Mg/Cs of 20, and addition rate of P and Mg solution of 40%, the dissolution rate of the cesium could be less than 20%. These results indicated that it was possible to simultaneously insolubilize of cesium and lead in incineration fly ash using phosphoric acid and magnesium solution.

Keywords: cesium, lead, phosphoric acid, magnesium, incineration fly ash, insolubilization

1. はじめに

2011年3月に起こった東日本大震災に起因して、福島第一原子力発電所から放射性物質が環境中に放出される事故が発生した。放出された放射性物質による環境汚染は、福島県をはじめとする東日本全体に深刻な問題をもたらした。特に放射性物質の中でも放射性セシウムは、震災瓦礫などへの付着を通して一般廃棄物に混入した。震災瓦礫の処理は、終了し、有機性のものは焼却処分された。また、発生する除染廃棄物のうち腐敗性除染廃棄物も減容化のため焼却処理される。焼却処理され発生した焼却飛灰中には放射性セシウムが濃縮される。放射性セシウムが濃縮された焼却飛灰は、環境省の定める管理が必要である。環境省が示す「事故由来放射性物質により汚染された廃棄物の処理等に関するガイドライン」等(1)(2)によると、放射性濃度が100,000Bq/kgを超える焼却灰は放射線を遮断できる施設、例えば遮断型最終処分場での保管するように、また8,000~100,000Bq/kgの焼却灰は隔離層の設置や長期間の耐久性のある容器、屋根付きの処分場などの対策を施して処分するように定められている。8,000Bq/kg以下の焼却灰については、廃棄物層の下に厚さ50cm以上の土壌を敷設すること等の条件が加えられているが、通常の管理型

最終処分場での埋立処分をするよう定められている。

しかし、放射性セシウムは半減期が30.1年と非常に長く、クリアランスレベルの100Bq/kgとなるには、長期間の管理が必要である。国立環境研究所(3)によると、都市ごみ焼却飛灰に含まれる放射性セシウムは無処理物で64~89%程度が溶出し、従来のセメント添加による方法でも固化した処理物を粉砕すると、無処理物と同等の溶出挙動を示す。そのため、長期間の管理、焼却飛灰中の放射性セシウムの水溶性の高さから、飛灰を管理している間に吸湿や結露、あるいは外部からの水の流入によって焼却飛灰中の放射性セシウムが漏出し、環境汚染を引き起こす恐れがある。そこで、最終的な処分場である埋め立て処分場に搬入する前にセシウムの不溶化処理を行うことが重要であると考えられる。

焼却飛灰中の放射性セシウムの不溶化や溶出防止に関する研究として、プルシアンブルーやフェロシアン化ニッケル、ゼオライト、ジオポリマーを用いて放射性セシウムを吸着させて不溶化(4)(5)させる技術が報告されている。しかし、これらの技術は焼却飛灰の体積を増やし、埋め立て処分場の寿命を短くする恐れや、不溶化対象が放射性セシウムのみであるといった問題点がある。これら以外の放射性セシウムの不溶化方法として、リン酸マグネシウムを用いてリン酸マグネシウムセシウムとして沈殿させ不溶化するという報告がある(6)。しかし、この技術は液体中の放射性セシウムが対象の研究であり、飛灰中に含まれて

a) 土木環境工学専攻大学院生

b) 社会環境システム工学科教授

c) 社会環境システム工学科准教授

いると言われている Ca や K の影響が検討されていない。また、pH10 での条件下でのみ実験が行われており、焼却飛灰の溶出液の pH11~12 での適用が可能かもわかっていない。

一方、焼却飛灰中には環境に影響を及ぼす鉛が含まれている。現在、無機系の鉛不溶化剤のひとつとして、リン酸やリン酸系化合物が検討されている。これまでに鉛汚染された土壌や各種排水、焼却飛灰などにリン酸やリン酸化合物を添加することにより鉛を不溶化できることが報告(7)されている。飛灰にリン酸を添加することで飛灰中の重金属と反応し、鉱物を生成(8)して不溶化反応が起こる。特に $Pb_{10}(PO_4)_6X(X=Cl,OH)$ のアパタイト系の難溶性化合物を生成する。リン酸は、コストも安く、幅広い pH 値で鉛不溶化もできるため、鉛処理剤としての化学添加剤の中でも最も優れた処理剤と言われている。

リン酸マグネシウムが液体中の放射性セシウムを不溶化することとリン酸化合物が鉛を不溶化することから、焼却飛灰にリン酸とマグネシウムを加えることで、焼却飛灰中の鉛と放射性セシウムを同時に不溶化することができる可能性があると考えられた。

そこで本研究では、リン酸およびマグネシウム溶液を用いて焼却飛灰中の鉛とセシウムを同時に不溶化するための基礎的な知見を得ることを目的とし、セシウムを含む溶液にリン酸・マグネシウムを加えて反応させる実験を行い、セシウムを不溶化させる最適な pH を検討した。また、焼却飛灰にリン酸・マグネシウムを加えて実験を行い、セシウムと鉛を不溶化させるための最適な条件を検討した。

2. 実験方法

2.1 液体中セシウム不溶化実験

セシウムをリン酸・マグネシウムで不溶化するために最も効果のある pH を調べることを目的として、液体中のセシウム(初期濃度 100mg/L)を 4 段階の pH(pH=11, 11.5, 12, 12.5)で攪拌、反応実験を行った。蒸留水 1 L に CsCl, $Na_2HPO_4 \cdot 12H_2O$, $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ をモル比で Cs:P:Mg=1:10:10 になるように加えて、溶液を作成した。作成した溶液 100mL を自動滴定機(STAT ティトリーノ 718 型)で pH を一定に保ちながら、6 時間攪拌した。pH 調製には 1M の NaOH を用いた。反応後の溶液は、0.45 μ m のメンブレンフィルターでろ過し、ろ液を検液とした。

2.2 焼却飛灰実験試料

実験で用いた焼却飛灰は、2015 年 5 月に A 市の一般廃棄物焼却施設から消石灰と活性炭の吹き込みにより排ガス処理を行われた焼却飛灰を用いた。(以下、焼却飛灰 A と呼ぶ。)また、飛灰採取日は異なるが同じ A 市の一般廃棄物焼却施設から消石灰と活性炭の吹き込みにより排ガス処理を行われた焼却飛灰(以下、焼却飛灰 B と呼ぶ。)も用いた。

2.3 処理飛灰作成

焼却飛灰 A200g に CsCl を Cs 初期含有量 100mg/kg となるように添加し、自動混練り機(ウィップミックス社製 VPM2 パキュームパワーミキサー)を用いて 2 度混合を行った。飛灰中の Cs に対して所定の P/Cs, Mg/Cs となるように 75% H_3PO_4 , $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ 溶液(濃度 98,300mg-Mg/L)を混合した溶液を飛灰 50g に添加し、自動混練り機を用いて混合した(以下、処理飛灰と呼ぶ)。リン酸・マグネシウム混合溶液添加量は、飛灰に対して 40~100%とした。処理飛灰の養生は 1 日行った。

また、養生期間の検討を行う実験は、焼却飛灰 B にリン酸・マグネシウム溶液(モル比で Cs:P:Mg=1:10:10 の混合)を添加をした。混合溶液は、飛灰に対して 40%加え、自動混練り機を用いて混合し、養生を 1~7 日行った。

2.4 溶出試験

セシウムを加える前の焼却飛灰 A および、養生後の処理飛灰に対し、環境省告示 13 号試験に準じて溶出試験を行った。試料 20g に蒸留水を L/S=10 で加えて、200rpm で 6 時間振とう試験後、上澄み液の pH を測定後、0.45 μ m のメンブレンフィルターでろ過し、ろ液を得て、検液とした。P, Mg 添加比を変えた実験では、同じ条件で処理飛灰を 2 つ作成し、それぞれに溶出試験を行った。添加水比を変えた実験では、処理飛灰を 1 つ作成し溶出試験を行った。結果を平均値で示した。

2.5 含水率測定実験

養生後の処理飛灰に対し、含水率の測定を行った。養生後の処理飛灰を約 40g を用い、105°C で 2~3 日乾燥させ、乾燥前重量と乾燥後重量から含水率を算出した。

2.6 含有量試験

セシウム混合前の飛灰及びセシウムを添加した飛灰を 105°C で乾燥させた。また、含水率測定後の試料を粉碎した。これらに含有量試験に用いた。試料 0.5g に蒸留水 30 mL, 濃硝酸 5mL を加えた。その後 250°C で熱し、溶液が 20mL 前後になったところで放冷した。放冷後、ガラスフィルター GF/B を用いてろ過し、ろ液を 50mL にメスアップしたものを検液とした。

2.7 分析方法

Cs, Mg, Ca, Na, K はフレイム原子吸光光度法(HITACHI Z-2000 シリーズ)で、Pb は濃度に応じてフレイムレス原子吸光光度法で分析を行った。フレイムレス原子吸光光度法の場合、マトリックスモディファイアとして、パラジウム・マトリックスモディファイア 10%+硝酸 10%溶液を用いた。Cs は、NaCl の干渉による感度低下を防ぐために、検液及び標準溶液に 2%硝酸カリウム溶液を 10%加えて分析に用いた。P に関しては島津シーケンシャル形プラズ

マ誘導発光分析装置(ICP-8100)を用いて分析した。

焼却飛灰Aにセシウムを添加する前に行った溶出試験結果を表1, 含有量試験結果を表2に示す。蒸留水のみでの溶出試験を行うと鉛は42mg/Lと高い濃度で溶出した。また, 飛灰には多くのCaが含まれていた。これは消石灰を吹き込んで処理しているためである。

3. 実験結果および考察

3.1 飛灰の性状

表1 焼却飛灰溶出濃度(mg/L)

Na	K	Ca	Mg	Pb
2,830	2,890	5,630	0	42

表2 焼却飛灰含有量(mg/kg)

Na	K	Ca	Mg	Pb
51,500	46,000	212,000	5,140	1,470

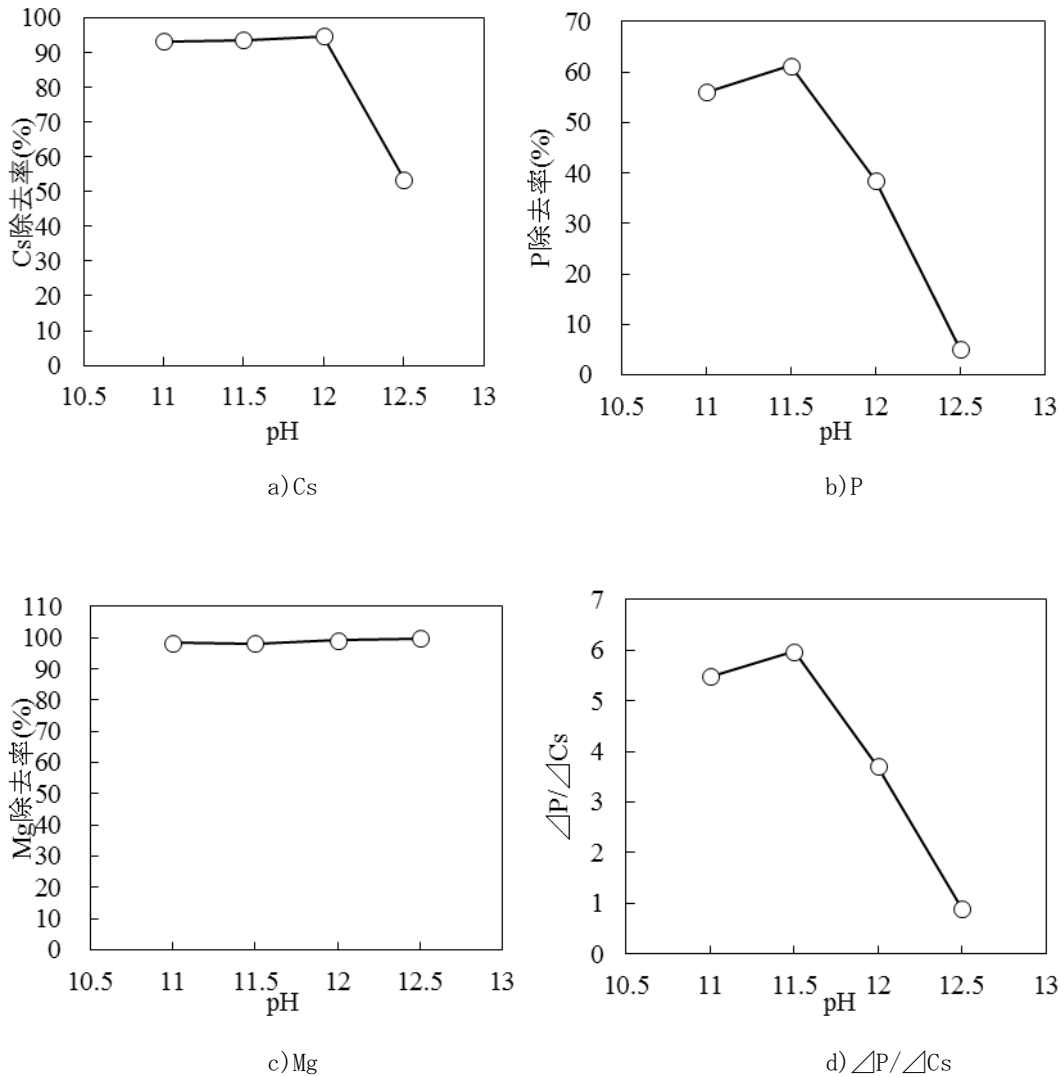


図1 液体中Cs不溶化実験結果(Cs:P:Mg=1:10:10 Cs, 初期濃度 100mg/L)

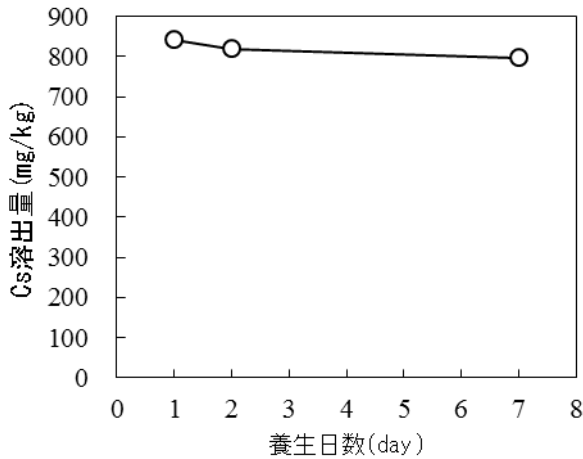


図2 処理飛灰養生日数

3.2 液体中セシウム不溶化実験結果

液体中のCsに $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を添加し、4段階のpHで6時間攪拌、反応実験を行った結果を図1に示す。Cs除去率はpHが11から12に増加しても、除去率はほぼ90%前後で一定を保ったが、pH12.5で50%まで減少した。Cs除去率の最大はpH12で95%であった。P除去率はpH11~11.5では50%~60%で、pHが増加すると除去率は減少し、pH12.5では5%であった。Mg除去率はどのpHでも95%以上の高い値を示した。セシウムの減少量とリンの減少量の比をとるとPの除去率に近い挙動を示した。また、pH12.5のときCsの除去率とPの除去率が1:1となっていることからCsの不溶化には CsMgPO_4 を形成して沈殿しているのではないかと考えられた。また、Csを除去するためpH12以上は適切でないことがわかった。

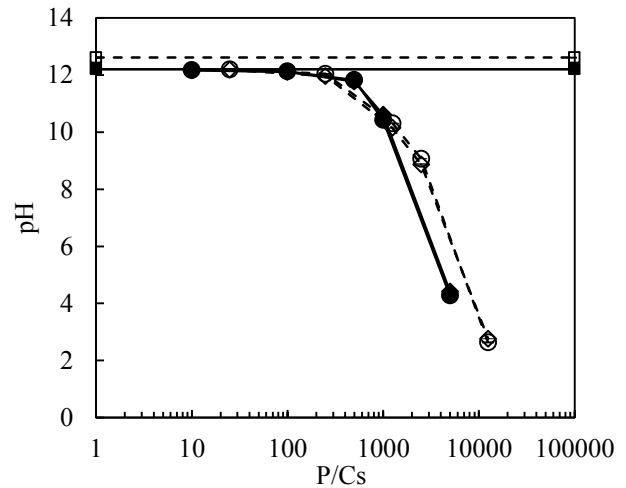
3.3 養生日数の影響

焼却飛灰中のCsを不溶化させるためにP, Mgを加え、反応に必要なとする時間を調べた。結果を図2に示す。養生日数が増加するとCs溶出量は減少したが、養生1日目の溶出量に対して7日目でも3%しか溶出量は減少しなかった。このことから、飛灰中のCsを不溶化させるために必要な日数は1日でよいと考えられた。

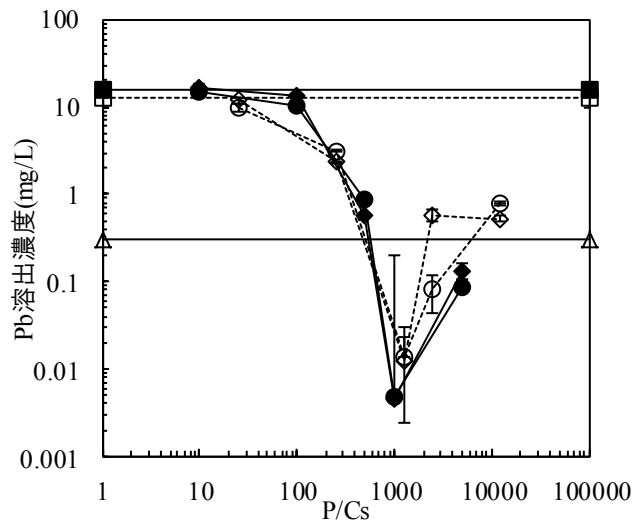
3.4 P/Cs比の影響

3.4-1 P/Cs比が処理飛灰溶出液pHへ与える影響

図3 a)に処理飛灰溶出液のpHを示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%および水添加率100%ともにpH12.2とpHは高く、P/Cs100まではほぼ一定のpHを示した。P/Cs100~1000まではpHが緩やかに減少し、P/Cs1000を超えるとpHは5.5と急激に低下した。また、今回の実験ではMg添加率がpHの変化に及ぼす影響は見られなかった。



a) pH

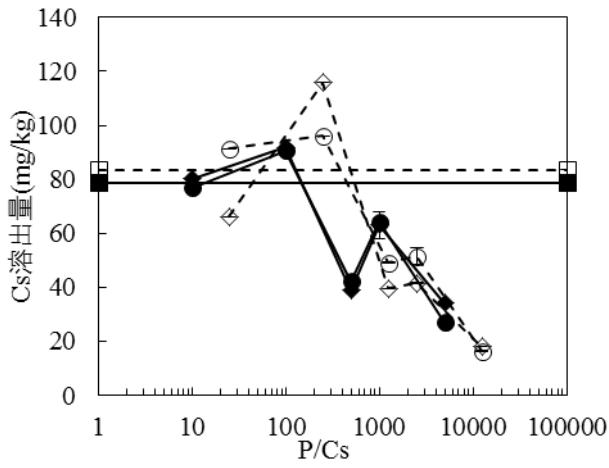


b) Pb 溶出濃度

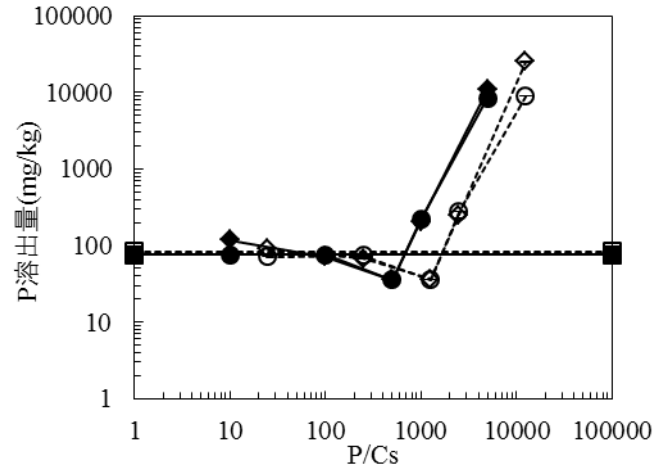
図3 P/Cs比が処理飛灰溶出液へ与える影響 (■:未処理 添加水率 40% □:未処理 添加水率 100% ●:Mg/Cs0 添加水率 40% ○:Mg/Cs0 添加水率 100% ◆:Mg/Cs10 添加水率 40%◇:Mg/Cs10 添加水率 100% △:埋立基準濃度)

3.4-2 P/Cs比が処理飛灰中Pb溶出濃度へ与える影響

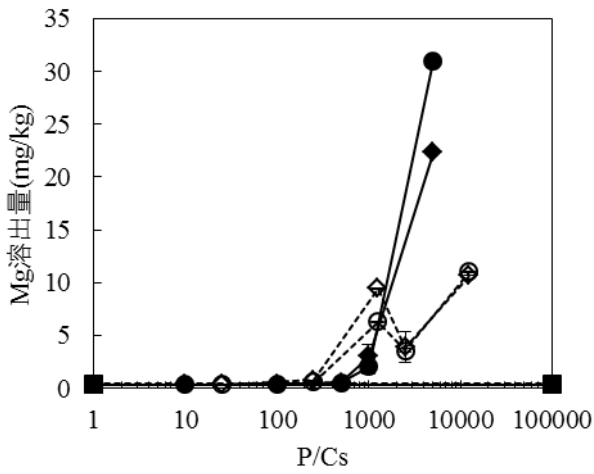
図3 b)にPb溶出濃度の結果を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%および水添加率100%ともにPbの溶出濃度は15mg/L程度であった。今回の実験ではMg添加の有無による違いは見られなかった。P添加による影響として、P/Csが増加するにつれ、鉛濃度は低下したがP/Csが1000を超えると逆にPb溶出濃度は増加した。これは、焼却飛灰中のpHが低下し、酸性側になったことが原因だと考えられた。添加水率が40%から100%に増えると、P/Cs1000付近で添加水率100%のほうがPb溶出濃度が高くなった。P/Cs1000での条件下では添加水率40%と100%ともにPb溶出濃度は埋立基準の0.3mg/Lを



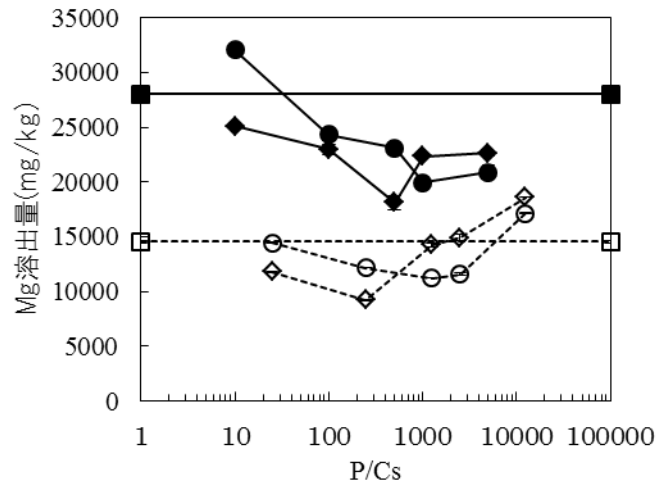
c) Cs 溶出量



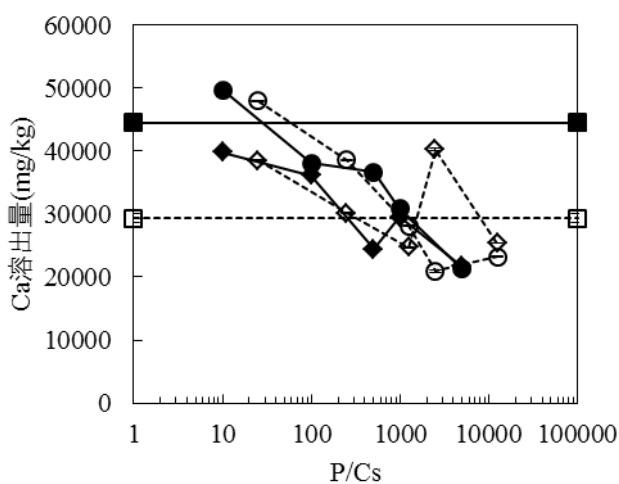
d) P 溶出量



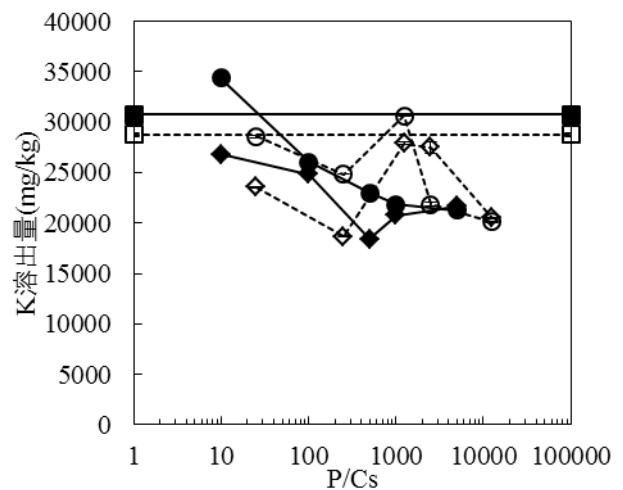
e) Mg 溶出量



f) Na 溶出量



g) Ca 溶出量



h) K 溶出量

図 3 P/Cs 比が処理飛灰溶出液へ与える影響(続き) (■:未処理 添加水率 40% □:未処理 添加水率 100% ●:Mg/Cs0 添加水率 40% ○:Mg/Cs0 添加水率 100% ◆:Mg/Cs10 添加水率 40% ◇:Mg/Cs10 添加水率 100%)

が最適と考えられた。

3.4-3 P/Cs比が処理飛灰中Cs溶出量へ与える影響

図3 e)にCsの溶出量を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%および水添加率100%ともに80mg/kg程度の溶出量であった。今回の実験ではMg添加の有無や添加水率による違いはあまり見られなかった。P添加による影響として、P/Cs100までだとCsの溶出量は増加し最大で100mg/kg程の溶出量を示した。P/Cs100を超えると、Csの溶出量は低下し、最低で20mg/kgほどの溶出量を示した。このことから、Csの溶出量は添加するPを増やすことで低下することが分かった。しかし、単純にP濃度を増やして不溶化処理を行おうとするとpH、Pb溶出濃度に影響を及ぼすので添加量の制御が必要であると考えられた。

3.4-4 P/Cs比が処理飛灰中P溶出量へ与える影響

図3 d)にPの溶出量を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%および水添加率100%ともに100mg/kg程度の溶出量であった。今回の実験ではMg添加の有無や添加水率による違いはあまり見られなかった。P添加による影響として、P/Cs1000まではPの溶出量は一定であった。しかし、P/Cs1000を超えるとP溶出量は急激に増加し、P溶出量は最大で10000mg/kg程度を示した。これはPを過剰に添加し過ぎたためCsなどと反応せずに溶出してきたものと考えられる。

3.4-5 P/Cs比が処理飛灰中Mg溶出量へ与える影響

図3 e)にMgの溶出量を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%および水添加率100%ともに溶出はほとんどなかった。Mgを加えると添加水率40%ではMg/Cs10に比べMg/Cs0が10mg/kg程度溶出量が高かった。しかし、Mg添加の有無は添加水率100%の条件では違いが見られなかった。P添加による影響としてP/Cs500までMgの溶出量はほとんどなかった。P/Cs500を超えるとMgの溶出量は増加した。Mgは飛灰にも多く含まれているため添加量は少ないがモル比でP/Cs10,000の条件ではpHが低いと低いため溶出量が増加したのではないかと考えられた。

3.4-6 P/Cs比が処理飛灰中Na溶出量へ与える影響

図3 f)にNaの溶出量を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%では約2800mg/kg、水添加率100%では約1500mg/kgの溶出量を示した。添加水率40%の条件ではP/Csが増加するにつれNa溶出量は減少傾向にあったが、バラつきが非常に大きかった。添加水率100%ではP/Csが増加するにつれNa溶出量は増加傾向にあった。

3.4-7 P/Cs比が処理飛灰中Ca溶出量へ与える影響

図3 g)にCaの溶出量を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%では約45000mg/kg、水添加率100%では約3000mg/kgの溶出量を示した。Mg添加の有無では溶出量の変化に大きな違いは見られなかった。Pの添加による影響として添加量を増加させると低下する傾向が見られた。これは難溶性のリン酸カルシウムができたためだと考えられた。しかし、P/Cs1000の条件での溶出量は添加水比100%の蒸留水のみで安定化を行った溶出量とほぼ同じ値であった。これは、Caの溶出量や飛灰の組成でもCaは多く含まれているため溶出にバラつきが発生し、P/Csが低い条件で蒸留水のみでの処理飛灰の溶出量よりも増えてしまった可能性が考えられた。

3.4-8 P/Cs比が処理飛灰中K溶出量へ与える影響

図3 h)にKの溶出量を示す。PおよびMgを加えずに蒸留水のみで安定化させた場合、水添加率40%および水添加率100%ともに30000mg/kg程度の溶出量であった。添加水率40%の条件ではP/Csの増加とともにK溶出量は緩やかに減少した。添加水率100%の条件ではP/Cs1000付近で溶出量は一度上昇するが更に高くすると溶出量は低下した。P添加量を増加させたことでKの溶出量が低下した要因としてPとMgがKと反応しKMgPO₄を形成したことが考えられた。

3.4-6と3.4-7から飛灰中のCaはPと、KはPおよびMgと反応し不溶化することが考えられた。特にCaはセメントに多く含まれている元素であるため飛灰をセメント固化する際にCsとPの反応に影響を及ぼし、不溶化を妨げる可能性がある元素ではないかと考えられた。

3.5 添加水率およびMg/Csの影響

鉛溶出濃度が埋立基準を満足するP/Cs1000の条件で、添加水率、Mg/Csの影響を詳細に検討した。

3.5-1 添加水率およびMg/Csが処理飛灰溶出液pHへ与える影響

図4 a)に処理飛灰のpHの変化を示す。検討した条件の範囲ではpHはほぼ一定で、添加水率、Mg/CsがpHに与えている影響は少ないと考えられた。

3.5-2 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Pbの溶出濃度へ与える影響

図4 b)にPbの溶出濃度結果を示す。Pbの溶出濃度は全ての条件で埋立基準である0.3mg/Lを下回った。P/Cs1000の条件下では添加水率によらず埋立基準を下回ったことから、鉛を不溶化する際に添加水率は最低でも40%であれば問題ないと考えられた。

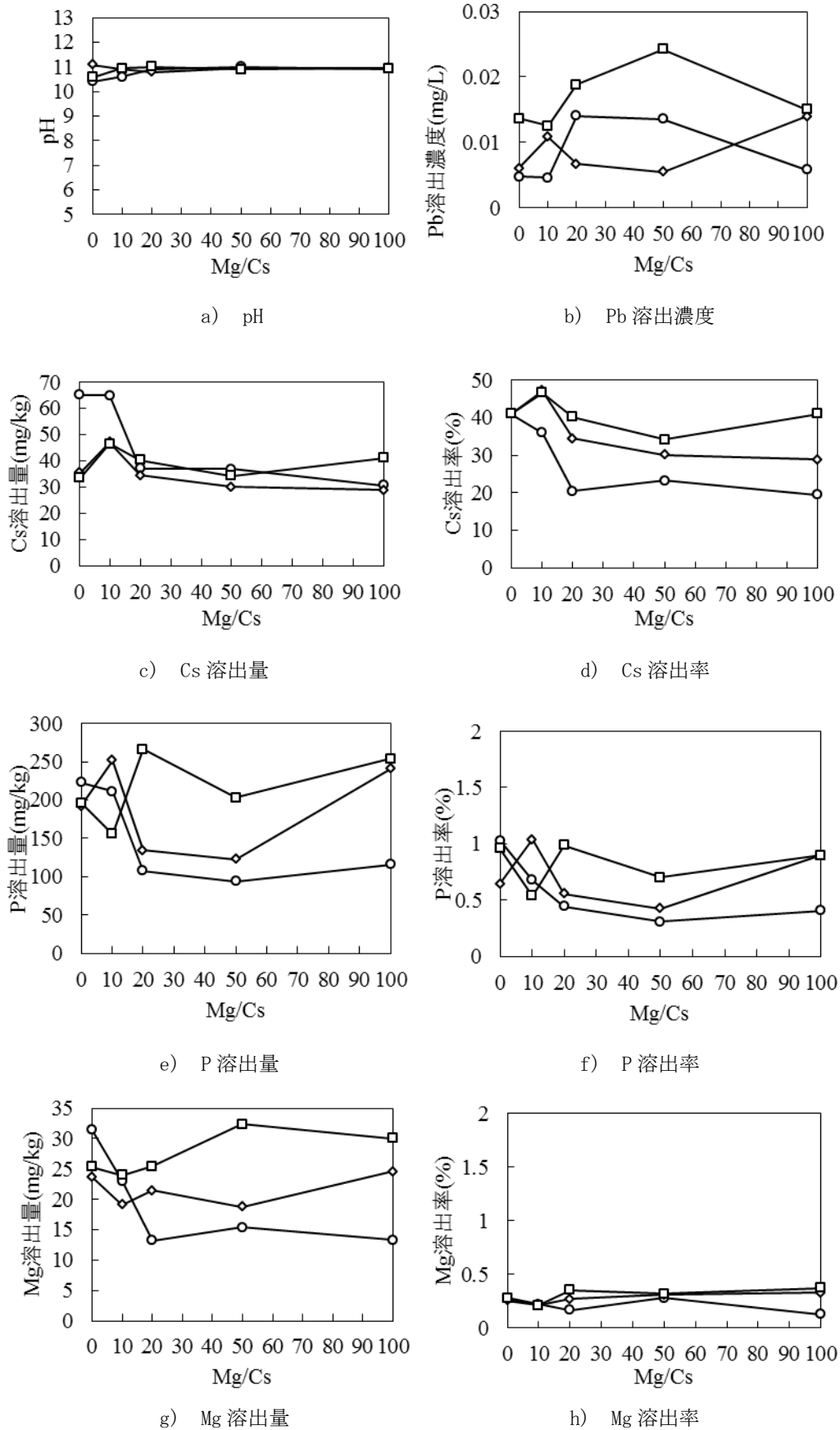


図4 添加水率およびMg/Csの影響(P/Cs1000) (○:添加水率40% ◇:添加水率70% □:添加水率100%)

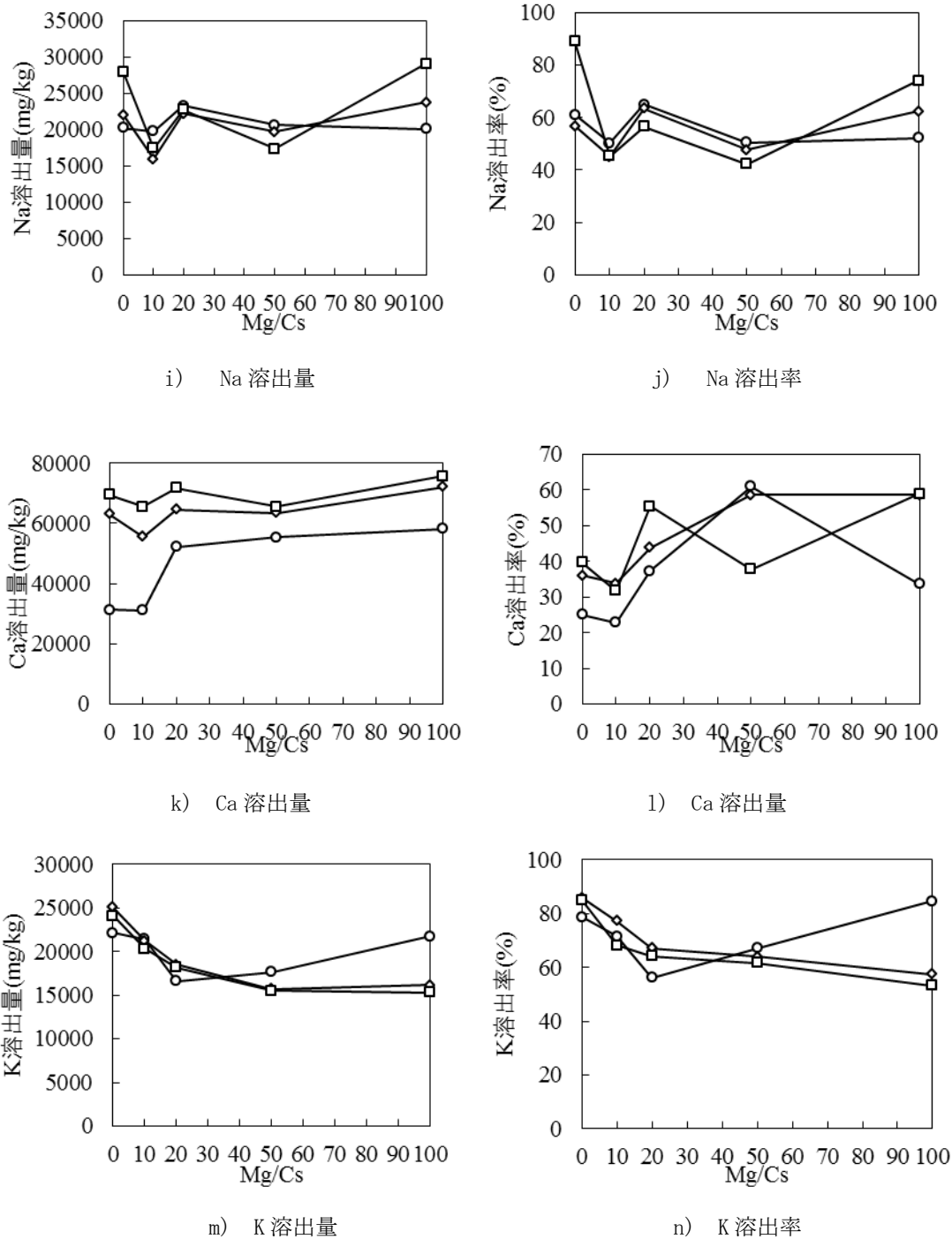


図4 添加水率およびMg/Csの影響(P/Cs1000) (続き) (○:添加水率40% ◇:添加水率70% □:添加水率100%)

3.5-3 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Csの溶出量・溶出率に与える影響

図4 c)にCsの溶出量を示す。Mg/Cs20以下で添加水率40%の方が70%、100%よりも溶出量が低くなった。また、Mg/Cs20以上では添加水率の違いは小さかった。添加水率が40%の場合は、Mg/Cs10以下では溶出量は一定ではあるが、Mg/Cs10を越えると約1/2に溶出量が減少し、Mg/Csによらずほぼ一定であった。添加水率が70%以上ではセシウムの溶出量は、Mg/Csによらずほぼ一定であった。また図

4 d)にCsの溶出率を示す。Cs溶出率は添加水率が低いほど溶出率は低かった。この理由は添加水率40%での条件ではCsがKやCaより優先的にP、Mgとの反応が行われたからだと考えられた。また、Mg/Csが増加すると溶出率も減少したが、Mg/Cs20以上ではほぼ一定となった。Mg/Csが増加することにより溶出率が減少する理由は外から加えられたMgがPとCs反応しCsMgPO₄を形成しやすくしていたためだと考えられた。この結果から、P/Cs1000の条件下でCs溶出率を最小にするためには、Mg/Cs20かつ添加水率40%

の条件が適切であると考えられた。

3.5-4 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Pの溶出量・溶出率へ与える影響

図4 e)にPの溶出量を示す。Mg/Cs10のとき添加水率100%が添加水率40%、70%よりも溶出量が低かった。しかし、Mg/Cs20のときMg/Cs100の条件のとき添加水率100%のみ溶出量が増加し、添加水率40%、70%よりも溶出量が高くなった。また添加水率40%、70%の場合、Mg/Cs10を越えると約1/2に溶出量が減少した。添加水率40%のときMg/Cs10を越えるとMg/CsによらずPの溶出量はほぼ一定となった。また図4 f)にPの溶出率を示す。Pの溶出率は全ての条件で1%前後で一定となった。Pを添加しているにも関わらず溶出率が低い理由として、Pが飛灰中のCsやK、Caと反応し、使用されたことが要因として考えられた。

3.5-5 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Mgの溶出量・溶出率へ与える影響

図4 g)にMgの溶出量を示す。添加水率40%の条件のときMg/Cs20まで溶出量は低下し、Mg/Cs20を越えるとほぼ一定となった。添加水率70%の条件ではMg/Csによらずほぼ一定となり、添加水率100%ではわずかではあるが上昇傾向となった。添加水率40%の条件でMg/Cs20まで溶出量が低下した理由として、Csとの反応によりMgの溶出量が低下したと考えられた。また図4 h)にMgの溶出率を示す。Mgの溶出率は添加水率を変化させても大きな違いは見られず、全て1%以下となった。今回の実験では、添加Mg量も変化させているが添加量を変化させても大きな違いは見られなかった。Mgは様々な元素と反応することやpHがアルカリ側での反応であり飛灰から溶け出しにくいことため溶出率が低かったのではないかと考えられた。

3.5-6 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Naの溶出量・溶出率へ与える影響

図4 i)にNaの溶出量を示す。Naの溶出量は非常に高い値を示すので偏差が大きいとされる。そのため添加水率、Mg/Csによらずほぼ一定であると考えられた。Naの溶出率を図4 j)に示す。Naの溶出率は添加水率100%、Mg/Cs0の条件以外ほぼ一定を示した。添加水率100%、Mg/Cs0で溶出率90%と高い値を示し、Mg/Cs10になると40%ほど低下した。

3.5-7 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Caの溶出量・溶出率へ与える影響

図4 k)にCaの溶出量を示す。Caの溶出量は添加水率が高いほど溶出量が多くなった。添加水率によらずMg/Cs10以下では一度低下し、Mg/Cs10を越えると溶出量は増加し、Mg/Cs20を超えるとほぼ一定となった。図4 l)にCaの溶出率を示す。添加水率によらずMg/Cs10以下では溶出率は低

下しMg/Cs10を越えると増加した。添加水率40%、70%の条件ではMg/Cs50まで上昇した。添加水率100%の条件ではMg/Cs20まで上昇し、Mg/Cs50まで低下した。Mg/Cs10以下で溶出率が低下した理由は、Pと反応しリン酸カルシウムを生成したことが考えられる。

3.5-8 添加水率およびMg/Csが処理飛灰中Kの溶出量・溶出率へ与える影響

図4 m)にKの溶出量を示す。添加水率によらずMg/Cs20まで低下した。また添加水率70%、100%の条件ではMg/Cs50まで溶出量は低下し、Mg/Cs50を越えるとほぼ一定となった。また、添加水率40%の条件ではMg/Cs20を越えると溶出量は上昇した。図4 n)にKの溶出率を示す。Kの溶出率はKの溶出量と同じ挙動を示した。しかし、添加水比40%では溶出量が増加した。Kの溶出率についても溶出量と同じ挙動を示した。Mg/Cs20以下で溶出量や溶出率が低下することおよび添加水率が高いとKはP、Mgと反応し、KMgPO₄を形成することがはないかと考えられた。

4. 結論

本研究では、リン酸およびマグネシウム溶液を用いて焼却飛灰中の鉛とセシウムを同時に不溶化するための基礎的な知見を得ることを目的とした。得られた結果を以下に示す。

- (1) 液体中のセシウムの除去率はpH11~12で高い値を示したが、pH12を越えると除去率は急激に低下し適切ではないと考えられた。また、リン酸マグネシウムセシウムの形成によってセシウムが不溶化されたと考えられた。
- (2) 飛灰中の鉛を不溶化するためにはリン添加はP/Cs1000での条件が適切であり、P/Cs1000での条件下では添加水比やMg添加量に関わらず埋立基準の濃度である0.3mg/Lを下回った。
- (3) 飛灰にリン酸・マグネシウムを加えるとセシウムの溶出率は低下し、セシウムを不溶化することができた。P/Cs1000の条件下でMg/Cs20かつ添加水率40%の条件にすることでセシウム溶出率を最小の20%以下まで抑えることができた。
- (4) リンを加えることで飛灰中のカルシウムの溶出率は低下する傾向が見られた。また、カリウムもリン・マグネシウムによって溶出量が低下する傾向があった。これらの結果から、飛灰中にリン酸・マグネシウムを添加することでセシウムと鉛を同時に不溶化することが可能だと考えられた。しかし、飛灰中に多量に含まれるカルシウムやカリウムがセシウムとリン酸・マグネシウムの反応を妨害する可能性があると考えられた。カルシウムとカリウムの問題を解消することでセシウムの溶出率を更に低くすることが可能ではないかと考えられた。

参考文献

- 1) 環境省：8,000Bq/kg を超え 100,000Bq/kg 以下の焼却灰等の処分方法に関する方針について，2011.8.31
- 2) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター、放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分
- 3) 環境省:焼却灰等からの放射性セシウムの溶出挙動に関する検討,第 5 回災害廃棄物安全評価検討会資料 3-1 2011.
- 4) 中村尊郁 高岡昌輝 大下和徹 塩田憲司:都市ごみ焼却飛灰中セシウムのジオポリマー化による不溶化処, 京都大学工学研究科 .
- 5) 市川恒樹 山田一夫 大迫政浩 放射性セシウムを含む焼却飛灰からのセシウム溶出防止剤の開発, 第 24 回 廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集, 2013
- 6) S.E.Vionokurov Yu.M.Kulyako O.M.Slyuntchev S.I.Rovny B.F.Myasoedov : Low-temperature immobilization of actinid and other components of high-level waste in magnesium potassium phosphate mateices , Journal of Nuclear Materials 385,pp.189-192,2009
- 7) 古川清治 内保顕 内田敏仁 伊藤一郎 吉田恒行 上林史郎 阿部清一 古角雅行: リン酸処理した熔融飛灰の重金属の溶出挙動と処理飛灰中の生成物,廃棄物学会論文誌,Vol.10,No5,pp.276-283 1999
- 8) T.taylor Eighmy:Characteruzatuin and phosphate stabilization of dusts from the vitrification of MSW combustion residues,Vol18,pp.513-524,1998