

塩化揮発法を用いたセシウムの濃度低減

木下 哲一 浅田 素之 川口 正人
(技術研究所) (技術研究所) (技術研究所)

Reduction of cesium concentration using chlorination vaporization process

Norikazu Kinoshita, Motoyuki Asada and Masato Kawaguchi

福島原発事故により発生した放射性セシウムを含む莫大な量の廃棄物の中で、放射能レベルの高いものには何らかの熱処理が適用され、生石灰等を用いた実証事業等が行われている。塩化揮発法は、化学反応を用いて塩化物になった目的元素を揮発させることにより濃度低減する手法である。本研究では、小型の炉を用いて、石炭灰に塩化揮発法を適用し、添加剤に CaCl_2 を用いたときの様々な元素の揮発率を測定した。また、添加剤として CaCl_2 、 MgCl_2 、 CaCl_2 と CaO の混合物を用いたときの、Cs 揮発率と Cs が揮発するまでの化学反応過程を明らかにした。

A thermal treatment will be applied to reduce amount of high-level radioactive waste contaminated by radio-cesium from the Fukushima nuclear power plant accident. A chlorination vaporization process allows us to decrease the radiation level in the waste. Elements of the chloride produced by chemical reactions are vaporized in the process. We investigated the vaporization rates of various elements from ash samples treated with CaCl_2 as an additive. In addition, we investigated the vaporization rates of the Cs and its processes of chemical reactions by interacting with CaCl_2 , MgCl_2 , or mixture of CaCl_2 and CaO .

1. はじめに

2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震により発生した福島第一原子力発電所事故では、核燃料が損傷すると共に、炉内から揮発性の高いセシウム(Cs)やヨウ素(I)、キセノン(Xe)などの核分裂生成核種が環境中に放出された。これらの核種は、降雨と共に地表に沈着した。中通り地方と富岡町、大熊町、双葉町、浪江町、葛尾村、飯館村では沈着量が特に多い¹⁾。環境中に放出された放射性核種の中で、IやXeの同位体は半減期が2週間以下であるため数ヶ月後には無視できる量にまで壊変するが、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の半減期は、それぞれ2.06年と30.2年で、長期にわたり残存し、空間線量を上昇させる要因となる核種である。 ^{134}Cs と ^{137}Cs に由来する空間線量を下げるため、2012年より除染が実施されてきた。草木の刈り取り、表層土壌のはぎ取り、高圧水ジェット等による道路除染などが行われた。これらの除染による除去物はフレコンバッグに詰めて、仮置き場に保管されており、最近では中間貯蔵施設への輸送が始まっている。

刈り取った草木などの可燃性廃棄物は、焼却による減容が進められている。

地表に降下したCsは土壌粒子に強固に吸着し、強酸中で加熱しなければ溶出されない²⁾。これまで、吸着状態に関する様々な研究が行われてきた。超音波で土壌粒子表面を剥離することで土壌から放射性Csの濃度低減が可能である³⁾。これより、Csは土壌粒子の極表面に薄く吸着していることは明らかである。その一方で、草木などの可燃物を焼却した際に発生する焼却主灰では、全体に均一にCsが分布しているものと推定される。

放射性Csの濃度が20000 Bq/kgを超える除去土壌は、分級処理し、更に、熱処理や化学処理等を用いた濃度低減処理が検討されている⁴⁾。また、8000 Bq/kgを超える焼却灰に対しても熱処理を用いた濃度低減処理が検討されている。

熱処理は、融点を下げるための添加剤を加え、加熱により廃棄物を熔融することで、空隙がなくなり、体積を減らすことができる。また、添加剤に、Csと化学反応を引き起こす薬剤を用いれば、Csを揮発させ、熔融した残留物(スラグ)中のCsの濃度低減処理を行うことができる。廃棄物を

表-1 石炭灰とドープ灰および地球科学標準試料 JB-1 に含まれる主要元素と Cs の濃度

化合物	石炭灰	ドープ灰	JB-1
SiO ₂	43.3 %	47.8 %	52.4 %
Al ₂ O ₃	22.1 %	36.1 %	14.5 %
Fe ₂ O ₃	9.12 %	5.60 %	8.99 %
CaO	16.3 %	2.47 %	9.25 %
MgO	2.36 %	0.86 %	7.71 %
Na ₂ O	1.41 %	1.13 %	2.77 %
K ₂ O	1.18 %	0.53 %	1.43 %
Cs	7.6 ppm	4160 ppm	1.23 ppm

CaCl₂ などの Cl を含む添加剤と混ぜ合わせ、1000℃以上で熱処理する塩化揮発法は、廃棄物中の有害元素や貴金属を回収する手法として、既に実用されている^{5),6),7)}。Cs に対しても塩化揮発法が適用可能ならば、熔融の効果による体積量の削減と揮発による Cs 濃度低減の 2 つの効果が期待される。また、乾式法であるため、煩わしい排水処理作業が不要である。現在では、添加剤として生石灰を焼却灰や除去土壌に混ぜ合わせた熱処理など、いくつかの実証事業が進められている。

これまで、筆者らは焼却灰の Cs 濃度低減に着目し、試料中に元々含まれる非放射性 Cs を用いて、添加物の種類と処理温度に対する Cs 揮発率の関係を明らかにした。また、熱処理に伴う試料の X 線回折スペクトルの変化より Cs の揮発過程の解明を試みてきた^{8),9),10)}。Cl を含む添加剤として一般的には CaCl₂ が用いられる。一方で、MgCl₂ を用いた場合は揮発率が低く、不適切な添加剤であり、その原因となる化学反応過程も明らかになった。塩化揮発法において Cl を含む添加剤と混ぜた試料を熱処理すると Cl₂ や HCl のガスが発生する。添加剤を多く用いれば、Cs 揮発率が高くなる反面、これらの Cl を含むガス量も多くなり、熔融炉内壁を劣化させ、排ガス処理の負担も大きくなる。そのため、Cl を含む添加剤の使用量を少なくすることが好ましい。また、塩化揮発法により除去させた元素は飛灰として回収されるが、飛灰の元素組成を推定するためには、様々な元素の揮発率が重要になる。本論文では、これまでの成果に基づき、①塩化揮発法を用いた様々な元素の揮発率、②CaCl₂ を用いた時の揮発率と化学反応過程、③MgCl₂ を用いた時の揮発率と化学反応過程、④CaCl₂ 使用量の削減、の 4 項目についてレビューする。

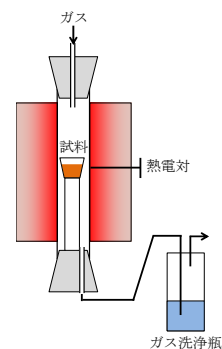


図-1 縦型炉の模式図

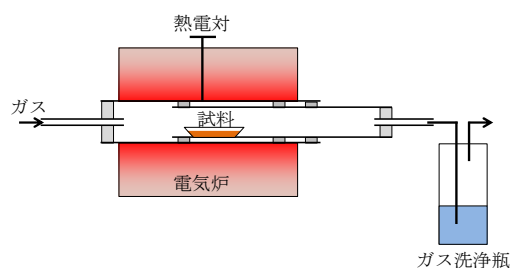


図-2 横型炉の模式図

2. 実験方法

2.1 本研究に用いた試料

模擬焼却灰試料として、石炭灰および石炭灰に非放射性 Cs をドープした試料を用いた。蛍光 X 線分析および ICP 質量分析計を用いて分析した石炭灰に含まれる主要元素と非放射性の Cs の濃度を表-1 に示す。X 線回折を用いた Cs の存在状態の分析を行う上で、ppm レベルの濃度は低すぎるため、以下に示す方法により、濃度を 0.4% 程度にまで増やした試料を調整した。

石炭灰に既知量の Cs₂CO₃ を混ぜ合わせ、900℃の電気炉内で 2 時間加熱した。加熱後、焼結した試料を 0.5mm 以下と 0.5~1.4mm にふるい分けし、0.5mm 以下の試料は乳鉢で更に細かく粉碎した。本論文では、濃度調整していない石炭灰を石炭灰、Cs 濃度調整した細かく粉碎した試料をドープ灰、Cs 濃度調整した粒径 0.5~1.4mm の試料を粒状灰と呼ぶ。Cs 濃度は試料をフッ酸+硝酸の混酸に溶解し、ICP 質量分析計を用いて分析した。

Cs をドープしていない石炭灰とドープ灰に用いた石炭灰は、入手元が異なるため、化学組成も異なる。また、表-1 では例として地球科学標準試料 JB-1 の濃度を比較のため掲載した。本研究で用いた試料は、元素により差はあるが、地球科学標準試料 JB-1 と似た元素組成である。

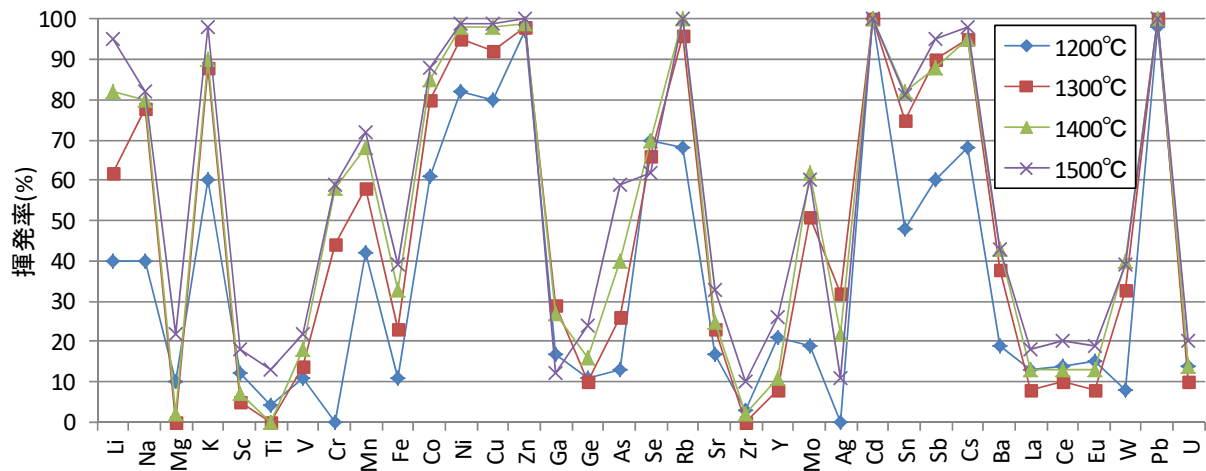


図-3 石炭灰を30%のCaCl₂と1200~1500℃で熱処理したときのLiからUまでの35元素の揮発率

2.2 電気炉のセットアップ

本研究では、図-1と図-2に示すように、1600℃まで昇温可能な横型と縦型の電気炉を用いて熱処理を行った。縦型電気炉を使用した実験では、アルミナルツボに試料を詰めて熔融実験を行った。横型電気炉を使用した実験では、アルミナ製の燃焼ボートに試料をのせて、横から試料の出し入れを行った。いずれの炉を用いた実験においても、電気炉からのガスは、ガス洗浄瓶を用いて酸性ガス成分や揮発した元素をトラップし、大気放出した。

2.3 塩化揮発法を用いた様々な元素の揮発

アルミナルツボにCs濃度調整をしていない石炭灰と添加剤として試料の重量の30%のCaCl₂を入れ、よく混ぜ合わせた。電気炉内に空気を600 mL/minの流速で通気しながら、室温から200℃/hの速度で昇温し、1200℃、1300℃、1400℃、1500℃で30分保持し、自然冷却した。スラグをフッ酸+硝酸の混酸に溶解し、ICP質量分析計を用いて図-3に示す35元素の揮発率を測定した。本論文における揮発率は、以下の式を用いて算出した。

$$\text{揮発率(\%)} = \frac{\text{熱処理前濃度} - \text{熱処理後濃度}}{\text{熱処理前濃度}} \times 100 \quad (1)$$

2.4 塩化カルシウム添加量とセシウム揮発率の関係と化学反応過程

アルミナルツボにCs濃度調整を行っていない石炭灰と濃度調整を行ったドーブ灰を詰め、試料の重量の10%もしくは30%のCaCl₂とよく混ぜ合

わせた。縦型電気炉を用いて200℃/hの速度で昇温し、400~1500℃の各温度を30分間保持し、その後、自然冷却した。常温にまで冷えた後、試料を取り出し、スラグの一部をフッ酸+硝酸の混酸に溶解し、ICP質量分析計もしくは原子吸光を用いてCsの揮発率を測定した。比較のため、添加剤を加えない同様な実験も行った。また、ドーブ灰を用いた実験において、残ったスラグよりX線回折分析を行った。

2.5 添加剤に塩化マグネシウムを用いた時のセシウム揮発率と化学反応過程

アルミナ製の燃焼ボートにドーブ灰を詰め、試料重量の10%もしくは30%のMgCl₂を添加しよく混ぜた。試料を、900~1200℃にセットした横型電気炉に入れ、30分経過したら電気炉から取り出した。スラグの一部を酸分解し、ICP発光分析を用いて揮発率を測定すると共に、残りのスラグよりX線回折分析を行った。

2.6 添加剤の節約と粒状試料への適用

アルミナ製の燃焼ボートに0.5~1.4mmのサイズにふるい分けした粒状灰を詰めた。試料重量の5%のCaCl₂と20%のCaOもしくは10%のCaCl₂と20%のCaOをよく混ぜ合わせ、横型電気炉内で30分間加熱した。30分経過後、試料を取り出した。スラグの一部を酸分解し、ICP発光分析を用いて揮発率を測定すると共に、残りのスラグよりX線回折分析を行った。またCl濃度を蛍光X線分析を用いて測定した。

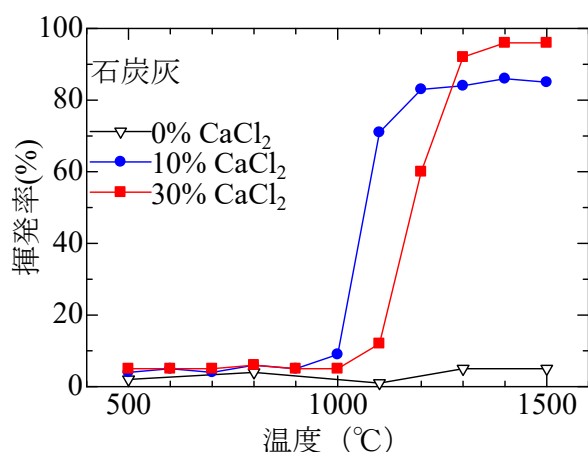


図-4 Cs 濃度調整を行っていない石炭灰を用いたときの CaCl_2 添加量と揮発率

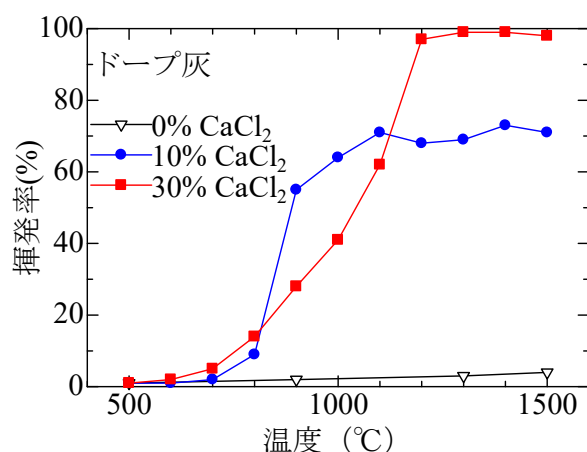


図-5 Cs 濃度を増やしたドーブ灰を用いたときの CaCl_2 添加量と揮発率

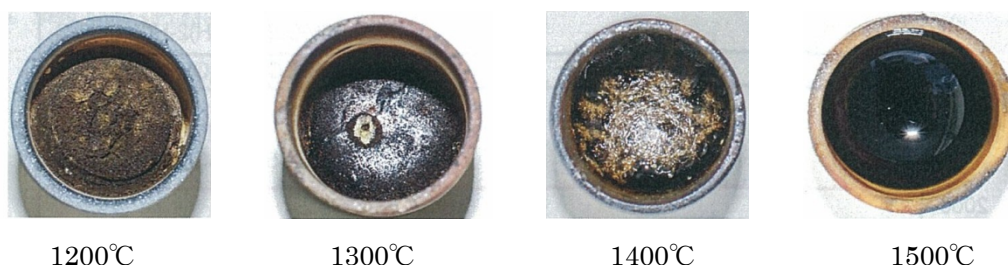


写真-1 ドーブ灰を 30%の CaCl_2 と熱処理した後のスラグの様子

3. 結果と考察

3.1 塩化揮発法を用いた様々な元素の揮発

1200~1500°CにおけるLiからUまでの35元素の揮発率を図-3に示す。全ての元素について、熱処理温度が高くなると揮発率も高くなる傾向が見られた。測定した35元素の中で、アルカリ金属とPbの揮発率が高い。また、遷移金属であるNi、Cu、Zn、Cdも揮発率が高い。その一方で、アルカリ土類元素と希土類元素、Ag、Uは揮発率が低い。

遷移金属に着目すると、原子番号22番のTiから原子番号30番のZnの揮発率は、 $\text{Zn} > \text{Ni} = \text{Cu} > \text{Co} > \text{Mn} > \text{Cr} > \text{Fe} > \text{V} > \text{Ti}$ の順であった。Cuは高い揮発率が得られているが、周期表上でCuの下に位置しているAgは塩化揮発が困難な元素であり、周期表上の一般的な性質と、塩化揮発とは大きな関連は見られない。また、アルカリ金属に着目すると、揮発率は、 $\text{Cs} = \text{Rb} > \text{K} > \text{Na} = \text{Li}$ の順で、原子番号が大きな元素ほど塩化揮発されやすい傾向が見られた。

試料中の元素は添加剤として用いた CaCl_2 と化学反応し、塩化物となり揮発する。遷移金属の塩化物の沸点は、 ZnCl_2 は732°C、 CuCl_2 は993°C、 CoCl_2 は1049°C、 MnCl_2 は1225°C、 FeCl_3 は315°C、 VCl_4

は154°C、 TiCl_4 は136°Cである¹¹⁾。 NiCl_2 は昇華し、 CrCl_3 は分解する性質がある。Zn、Ni、Cu、Co、Mnでは、塩化物の沸点の低い元素ほど高い揮発率を示している。一方で、Fe、V、Tiの塩化物の沸点は低い、揮発率が低い。 CaCl_2 とこれらの元素の化学反応のしやすさが大きく影響しているものと推測される。また、 LiCl 、 NaCl 、 KCl 、 RbCl 、 CsCl の沸点はそれぞれ1382°C、1413°C、1420°C、1390°C、1297°C¹¹⁾で、揮発率には沸点はよりも、むしろ、原子番号順の傾向が見られている。また、これらのアルカリ金属では、沸点よりも低い温度で熱処理した場合にも揮発が見られている。これは、熱処理を行った温度における塩化物の蒸気圧が無視できない程度ならば、沸点以下の温度でも徐々に揮発が進む。そのため、塩化物の沸点よりも明らかに低い1200°Cでも揮発が起こる。

3.2 塩化カルシウム添加量とセシウム揮発率の関係と化学反応過程

図-4にCs濃度調整を行っていない石炭灰を用いたときの CaCl_2 添加量と揮発率、図-5にCs濃度を増やしたドーブ灰を用いたときの CaCl_2 添加量と揮発率を示した。また写真-1に30%の CaCl_2 を

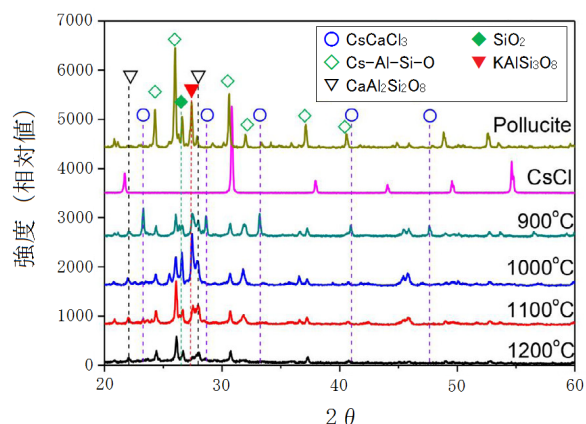


図-6 30%の CaCl_2 を添加したときの X 線回折スペクトル

添加して熱処理したときのスラグの写真を示した。30%の CaCl_2 を添加した場合、1200℃では熔融は起こらず、1300℃以上で熔融が起こった。

CaCl_2 を添加しない場合は、1500℃で熱処理した場合でも 10%以下の低い揮発率であり、Cl が存在しないと Cs の揮発は進まないことを改めて確認した。

揮発率は、処理温度の上昇と共に 1000℃付近で急激に増加し、一定の値を示す。添加剤は、多く入れた方が高い揮発率が得られた。その一方で、揮発率が急上昇する温度と一定になる温度は、10%の CaCl_2 を添加した場合では 30%添加した場合よりも、100℃程度低い。図-4 と図-5 に示したいずれの試料においても 30%の CaCl_2 を混ぜて 1400℃以上で 30 分加熱することにより 95%以上の Cs を除去できた。

900~1200℃でドープ灰を熱処理したときの X 線回折スペクトルを図-6 に示す。800℃以下ではスペクトルに変化は見られずここでは示さない。また 1300℃以上では、Cs の残存量が少ない上、試料が熔融したため、X 線回折の測定を断念した。比較のため、図-6 には Cs のアルミノシリケートの鉱物である Pollucite と CsCl のスペクトルも示した。X 線回折スペクトルでは、900℃で CsCaCl_3 が観察され、更に温度を上げると CsCaCl_3 の強度は小さくなる。

アルミノシリケートとして存在している Cs (ここでは Cs-Al-Si-O と表記) は CaCl_2 と化学反応を起こし、式(2)に示すように一旦 CsCaCl_3 を形成する。

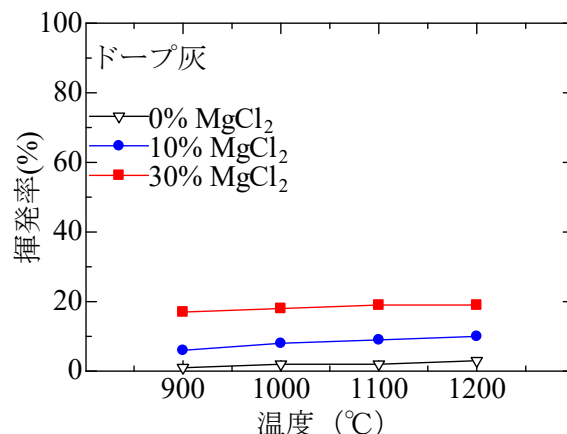
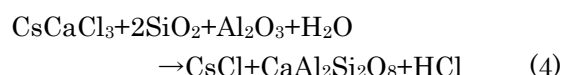
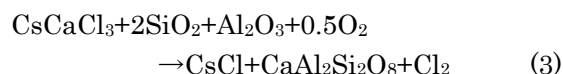


図-7 Cs 濃度を増やしたドープ灰を用いたときの MgCl_2 添加量と揮発率

形成した CsCaCl_3 は、周囲のガス成分、シリカやアルミナと式(3)と式(4)に示す化学反応を起こす。



化学平衡計算ソフトウェア FactSage を用いた計算によると、1000℃以上で式(3)に示す化学反応が支配的になる。また、水分が存在すれば、900~1200℃で式(4)に示す化学反応も起こるが、本実験では水分は存在しないため式(3)が主とした反応経路である。ここで生成した CsCl が揮発し、濃度低減が起こったものと説明できる。

3.3 添加剤に塩化マグネシウムを用いた時のセシウム揮発率と化学反応過程

添加剤として MgCl_2 を用いた時の Cs 揮発率を図-7 に示す。900~1200℃の温度では、 MgCl_2 の添加量を増やせば Cs 揮発率は上がるが、図-3~5 に示したような温度と共に Cs 揮発率が上昇する傾向は見られなかった。同じドープ灰試料を 30%の CaCl_2 と熱処理をした場合、1200℃で 96%の揮発率が得られているが、30%の MgCl_2 を用いた場合は 20%と低い揮発率であった。そのため、1300℃以上の揮発率測定の実施は断念した。

図-8 に 900~1200℃でドープ灰を熱処理したときの X 線回折スペクトルを示す。900~1200℃において Mg_2SiO_4 が検出され、900~1000℃では KAlSi_3O_8 が検出された。いずれの処理温度において

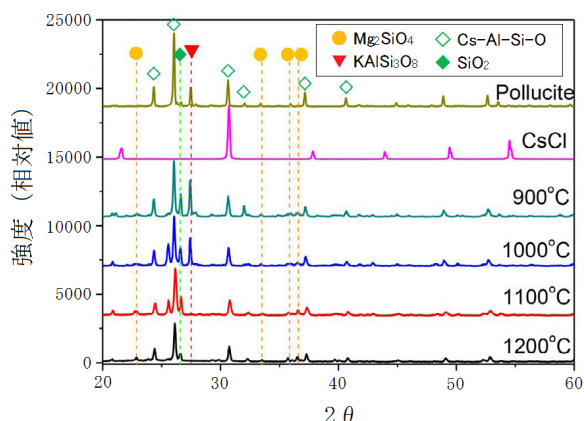
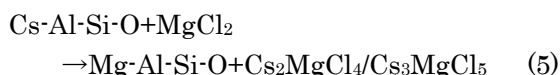


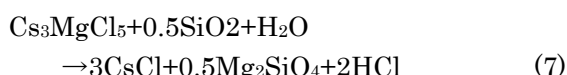
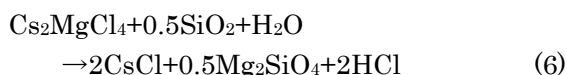
図-8 30%のMgCl₂を添加したときのX線回折スペクトル

も、Cs、Cl、Mgが関連する化学種は検出されなかった。

また、FactSageを用いた平衡計算によると、



が1ステップ目として熱力学的に可能な化学反応である。生成したCs₂MgCl₄とCs₃MgCl₅はそれぞれ式(6)、(7)に示す化学反応によりMg₂SiO₄やCsClを形成するが、水分は存在しないため、本実験系ではこれらの化学反応は起こらない。



式(8)、(9)による化学反応も想定されるが、自由エネルギーΔGが負であるため、これらの化学反応は起こらない。

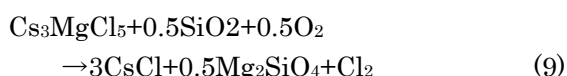
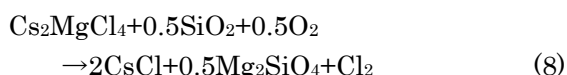


図-9に空気雰囲気下での各温度におけるCaCl₂とMgCl₂の質量減少率を示す。用いた試薬は、共に、

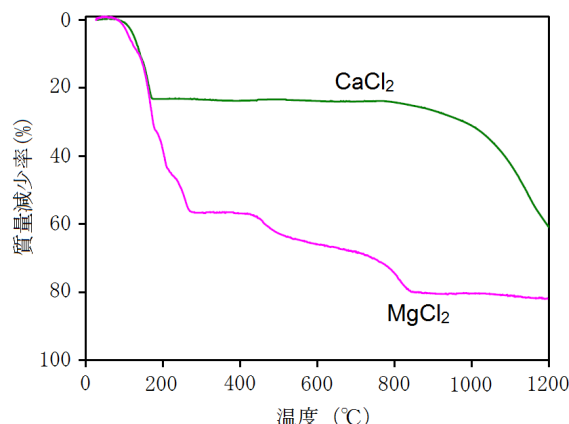


図-9 空気雰囲気下での温度と質量減少率

0°Cから200°Cにかけて温度の上昇と共に質量は減少する。この温度域では水分の減少によるものである。MgCl₂は400°Cから800°Cにかけて質量が減少し、800°C以上では一定である。一方で、CaCl₂は400~800°Cでは質量の減少は起こらず、800°C以上で更なる質量減少が起こる。MgCl₂は400~800°Cで分解が起こり、800°C以上ではClが残っていないものと考えられる。CaCl₂は、800°C以上で分解が始まり、本研究における熱処理温度でも十分な量のClが残っている。また、一般的に化学反応は、温度がより高い方が反応速度が速い。化学反応が十分に起こる1000°C付近の温度では、MgCl₂は熱分解しClが残存せず、式(5)に示す化学反応が十分に起こらないため、Mg、Cl、Csの3元素が関与する化学種は検出されなかった。また、式(5)の化学反応が進んだとしても、水分が系内に存在しないため、式(6)と(7)に示したCsClを形成する反応が起こらず、揮発率はCaCl₂を用いた場合に比べて遙かに低くなったと考えられる。

3.4 添加剤の節約と粒状試料への適用

0.5~1.4mmにふるい分けしたドープ灰をCaCl₂とCaOの混合物を用いて熱処理したときのCsとClの揮発率を図-10に示す。また5%のCaCl₂のみを添加して同様な熱処理を行ったときのCsとClの揮発率も示した。1400°C以上で5%CaCl₂+20%CaOを用いた場合は95%、10%CaCl₂+20%CaOを用いた場合は99%のCsが揮発した。より多くのCaCl₂を用いた方が、Cs揮発率は高い傾向が見られた。5%のCaCl₂のみを添加した場合は、1400°C以上で20~40%の揮発率であったが、CaOを併用することで、格段に揮発率が向上した。

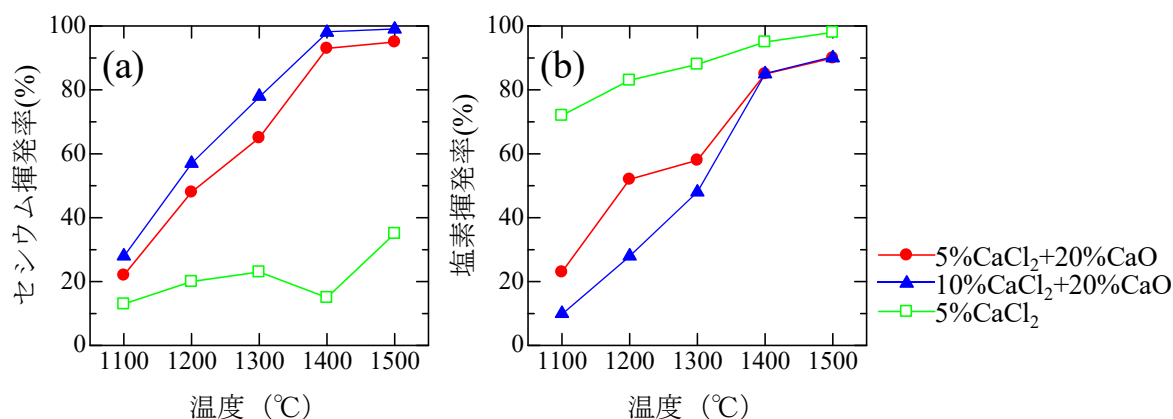


図-10 粒状灰を CaCl_2 と CaO の混合物もしくは CaCl_2 と熱処理したときの Cs (a) と Cl (b) の揮発率

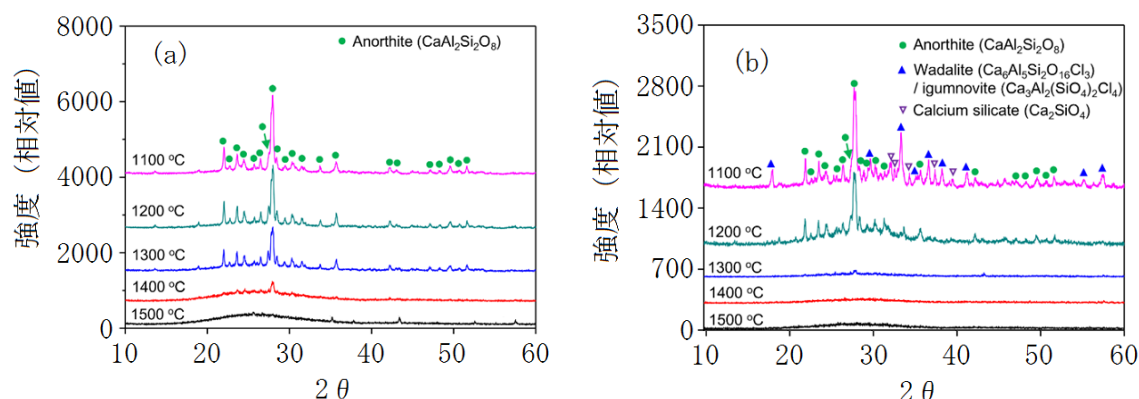
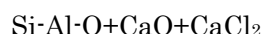


図-11 粒状灰を 5% の CaCl_2 と熱処理したときの X 線回折スペクトル(a)、5% の CaCl_2 と 20% の CaO と熱処理したときの X 線回折スペクトル(b)

5% の CaCl_2 のみを添加した場合は、1400℃で溶融が始まる。試料が溶融し始める温度では、試料中の空隙も小さくなる。温度が十分に高くドロドロに溶融した状態ならば、対流により試料が混ざり合い、試料表面から徐々に揮発が進むが、溶融し始めた温度では粘性が高く、表面に存在している元素だけが揮発する。そのため 1100℃から 1300℃にかけて Cs 揮発率は上昇するが 1400℃で一旦低下し、また温度と共に上昇した。

CaO を併用したときの化学反応過程に着目すると、図-11 に示すように 5% CaCl_2 + 20% CaO を混ぜ合わせ、1100~1200℃で加熱したスラグからは $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ と $\text{Ca}_6\text{Al}_5\text{Si}_2\text{O}_{16}\text{Cl}_3/\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_2\text{Cl}_4$ が検出された。5% CaCl_2 のみを添加して熱処理したスラグには $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ しか検出されなかった。 CaO 存在下での 1 段階目の反応として、式(10)に示す化学反応が考えられる。



3.2 章に示すように、 CaO がなければ、 CsCaCl_3 を形成するが、 CaO 存在下では CsCaCl_3 は確認されなかった。式 10 の化学反応により生じた Cl を含む生成物が、熱分解により Cl と $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_6$ に分解し、Cl と化学反応した Cs が揮発しているものと考えられる。

図-10 (b) に示すように、 CaCl_2 のみを添加した場合は、1100℃で 70% の Cl が揮発し、1300℃以上で 90% 以上の Cl が揮発する。一方で、 CaO が存在すると 1100~1300℃ではおよそ半分以上の Cl が残存する。一旦生成した $\text{Ca}_6\text{Al}_5\text{Si}_2\text{O}_{16}\text{Cl}_3/\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_2\text{Cl}_4$ はより高温で分解するため、反応が速い高温下において瞬時に分解することなく、Cl の供給源として働くことができる。焼却灰や土壌に吸着した Cs はアルミノシリケート構造に取り込

まれ、溶解が困難な難分解性を示すが²⁾、式10の化学反応によりアルミノシリケート構造が分解され、遊離したCsにClが化学反応し、揮発するものと考えられる。

4. まとめ

本研究では、塩化揮発法を用いて試料に含まれる放射性Csを濃度低減するため、試料に含まれる様々な元素についておおその塩化揮発の傾向を明らかにすると共に、Csの揮発過程とCs濃度低減の最適条件を明らかにした。

塩化揮発法において、アルカリ金属、一部の遷移金属、鉛の揮発率が高い。塩化揮発法を用いたCs濃度低減を実施した際に、これらの元素が飛灰として回収されることになる。添加剤としてCaCl₂やMgCl₂など様々なものが利用可能であるが、MgCl₂は分解温度が低く、MgとCsとClの反応生成物からCsClの生成過程は熱力学的に困難な反応経路である。そのため、MgCl₂を用いたときのCs揮発率は低く、またMgCl₂を添加剤として用いるのは不適切である。CaCl₂と熱処理を行うと、CaとCsとClの反応生成物であるCsCaCl₃が形成される。CsCaCl₃は周囲のアルミナやシリカと化学反応しCsClを生成し、揮発する。添加剤にCaCl₂とCaOの混合物を用いると、少ないCaCl₂の使用量で高いCs揮発率を得ることができた。CaCl₂とCaOがシリカとアルミナと化学反応し、Clを含む中間生成物が形成される。この中間生成物の形成と共にCsが結合しているアルミノシリケート構造が分解される。生成した中間生成物はより高温で分解し、分解時にClを放出する。放出されたClがCsと共に揮発する。試料重量の5%のCaCl₂と20%のCaOを混ぜ合わせることで1400℃以上で95%のCs濃度低減が可能である。また10%のCaCl₂と20%のCaOを混ぜた場合は、1400℃以上で99%以上のCs濃度低減が可能である。塩化揮発法はプラントの腐食など課題も多いが、Cs除去効率が高いため、実用に向けた努力を進める所存である。

謝辞

本研究を実施するにあたり、中部大学の二宮善彦教授、焦登存研究員、岩田倫枝さん、筑波大学の末木啓介教授、本多真紀研究員の多大な協力を頂いた。御礼申し上げます。

<参考文献>

- 1) N. Kinoshita, K. Sueki, K. Sasa, J. Kitagawa, S. Ikarashi, T. Nishimura, Y. S. Wong, Y. Satou, K. Handa, T. Takahashi, M. Sato, T. Yamagata: "Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan", Proc. Natl. Acad. Sci., Vol. 108, pp. 19526-19529, 2011.
- 2) S. Mischra, H. Arae, A. Sorimachi, M. Hosoda, S. Tokonami, T. Ishikawa, S. K. Sahoo: "Distribution and retention of Cs radioisotopes in soil affected by Fukushima nuclear plant accident", J. Soils Sed., Vol. 15, pp. 374-380, 2015.
- 3) 木下哲一, 谷本祐一: "放射性セシウム汚染土壌の減容化", 水底質浄化技術協会誌 HEDORO, Vol. 121, pp. 42-45, 2014.
- 4) 岡田尚, 武田聖司, 仲田久和: "福島県の環境回復に向けた取り組み 第6回 安全性の確保を大前提とした除去土壌等の再生利用", ATOMOS, Vol. 59, pp. 603-607, 2017.
- 5) 柴山敦, 渡辺勝央, 芳賀一寿, 細井明, 高崎康志: "塩化揮発法を用いた廃電子基板中有価金属の回収と揮発挙動の熱力学的考察", 環境資源工学, Vol. 61, pp. 90-99, 2014.
- 6) 小林莊二: "産業廃棄物処理における塩化揮発法の適用 同和精鉱の現状", 浮選, Vol. 28, pp. 149-152, 1981.
- 7) 永田和宏: "塩素ガスによる金属の選択的精錬", 鉄と鋼, Vol. 73, pp. 1077-1081, 1987.
- 8) F. Jiao, N. Iwata, N. Kinoshita, M. Kawaguchi, M. Asada, M. Honda, K. Sueki, Y. Ninomiya: "Vaporization mechanisms of water-insoluble Cs in ash during thermal treatment with calcium chloride addition", Environ. Sci. Technol., Vol. 50, pp. 13328-13334, 2016.
- 9) F. Jiao, N. Kinoshita, M. Kawaguchi, M. Asada, M. Honda, K. Sueki, Y. Ninomiya: "Role of CaCl₂ and MgCl₂ addition in the vaporization of water-insoluble cesium from incineration ash during thermal treatment", Chem. Eng. J., Vol. 323, pp. 114-123, 2017.
- 10) F. Jiao, N. Kinoshita, M. Kawaguchi, M. Asada, M. Honda, K. Sueki, Y. Ninomiya: "Enhancement of Cs vaporization from simulated granular ash through thermal treatment in N₂ atmosphere with the addition of a mixture of CaCl₂ and CaO", Fuel (accepted).
- 11) D. L. Perry: "Handbook of Inorganic Compounds, 2nd edition", CRC press.