

GM 式水中サーベイメータを用いた飛灰洗浄モニタリング

久保田 洋 山田 裕己
野口俊太郎 田邊 滋基^{*1}
小野寺 明^{*1}

概 要

焼却飛灰中の放射性セシウムの洗い出しを目的とした散水・通気法による飛灰洗浄において、発生する浸出水の放射線量を常時計測することにより、飛灰の洗浄状況をリアルタイムにモニタリングする手法の検討を行った。計測は実規模の飛灰洗浄実証試験において、浸出水が一時的に滞留するモニタリング槽(26L)に放射線量を計測する GM 式水中サーベイメータを設置し、30 分間毎にその積算カウント値を洗浄処理の期間中連続で計測した。計測の結果、カウント値と実測の放射能濃度($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$)には高い相関関係が確認され、本手法により浸出水中の放射能濃度の推移を連続で計測することが可能であることが明らかになった。また設定給水量とカウント値の積の積分値と浸出水中の実測累積溶出量には高い相関関係があることが確認され、本手法により放射性セシウムの洗い出し状況を推定することが可能であることが示された。

Monitoring of radiation in fly ash leachate using an underwater Geiger-Mueller counter

Abstract

We developed a real time method for monitoring radiation levels in leachate from the washing of cesium-contaminated fly ash with water. A monitoring tank (about 26L) was used to store leachate temporarily and a Geiger-Mueller counter (GM) installed underwater. We measured cumulated counts from the GM every 30 minutes throughout the washing tests. Results demonstrated this monitoring method could measure radioactive level in leachate continuously as there was high correlation between GM counts and radioactive cesium levels analyzed. In addition, it was confirmed that there was high correlation between the integrated value computed by multiplying the GM counts by the setup water supply and the cumulative amounts of radioactive cesium eluted. This suggested that this monitoring method can estimate the state of washing out radioactive cesium from fly ash.

キーワード: 焼却飛灰, 放射性セシウム,
散水・通気, モニタリング

^{*1} エヌエス環境株式会社

§1. 散水・通気法による飛灰洗浄技術

原発事故により福島県を中心とした地域において溶出性の高い放射性セシウムを含有する焼却飛灰の取り扱いが課題となっている。このような焼却飛灰の減容化技術として「易溶出性」を有している放射性セシウムを洗い出す飛灰洗浄技術が提案されている¹⁾。飛灰洗浄技術は放射能濃度や埋立後の溶出リスクも大きく低減できることから、指定廃棄物の減容化に大きく寄与できる技術である。しかし一方で放射性セシウムを含む廃水の処理が必要となるため、後段の廃水処理を十分考慮した洗浄方法が求められている。

筆者らは、散水・通気法を飛灰洗浄に用いることにより、機械攪拌等の大きな動力を用いずに、間欠散水と通気を適切に組み合わせることによって、廃水量を従来の1/10に相当する約0.5程度に抑えながら、同等の放射性セシウムの洗浄効果を示す方法を開発した。別報にカラム試験にて一般廃棄物焼却施設の焼却飛灰中の放射性セシウムを約90%洗い出す(22,000Bq/kg→2,000~3,000Bq/kg)ことが可能であることを報告している²⁾。また平成25年度環境省除染技術実証事業(以下、「実証試験」という)において、散水・通気法の実規模での実証試験を災害廃棄物焼却施設から発生する焼却飛灰を用いて行っている³⁾。本実証事業の試験装置を写真1に示す。



写真1 実証試験装置

本実証事業では、飛灰0.7tを24hrかけて間欠散水・通気(液固比0.55)により洗浄を行った結果、従来技術を想定した環境庁告示13号法(液固比10、6hr振とう)とほぼ同等の洗い出し効果を示すことが確認された。図1に透水性フレコンバック(以下、「水切りフレコン」という)に充填した飛灰の

中心コアの深度別放射能濃度及び溶出水(JISK0058-1)濃度の結果を示す。

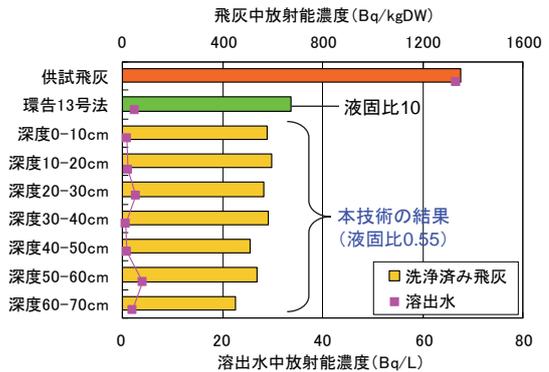


図1 実証試験における飛灰及び溶出水中放射能濃度

散水・通気法による飛灰洗浄は洗浄の時間は要するが、廃水量が液固比0.5程度と非常に少ないことが特長であり、また可動部が少なくスケールアップしやすいこと、従来技術に比べ低エネルギー、低コストな技術であることから飛灰洗浄システムの全体のコスト削減への貢献が期待できる技術である。

§2. 飛灰洗浄状況のモニタリング測定

本報では、実証試験にあたり飛灰洗浄における放射性セシウムの洗い出し状況について初めてモニタリングを試み、その結果について報告を行う。実証試験で行った散水・通気法は洗浄槽内に静置した飛灰に対して上部から間欠的に散水を行い、下部より通気を行う方法であるため、飛灰を通過し放射性セシウムを洗い出した洗浄廃水(浸出水)が洗浄槽下部より処理期間中排水される。浸出水は初期に高濃度であり、洗い出しの進行とともに濃度が低下することが予想され、その状況をモニタリングすることができれば、洗浄処理の管理効率化が図れるのではないかと考え、今回初めて飛灰洗浄廃水の放射線モニタリングを試みた。実証試験におけるモニタリング測定の条件を以下に示す。

2.1 供試材料及び機器

(1) 焼却飛灰

実証試験には仮設焼却炉(ストーカ炉)にて災害廃棄物を焼却した際に排出される焼却飛灰を用い、洗浄処理を行った。

(2) モニタリング測定器

GM 式水中サーベイメータ(S&DL サーベイメータ MODEL-3340A、応用地質(株)製)(写真2)を用いた。本

サーベイメータの計測中心点はプローブ先端から140mmの部分にあり、測定時は計測中心点がモニタリング水槽の中央になるように設置した(写真3)。

(3) モニタリング水槽

洗浄槽下部より排水された浸出水をステンレス製のモニタリング水槽(300×297×400Hmm、容量 26L)に一時的に貯留し、放射線量を測定した。モニタリング水槽に流入した浸出水は溢流口(295Hmm)よりオーバーフローし浸出水受け槽へ排水される構造とした(写真4)。



写真2 GM 式水中サーベイメータ

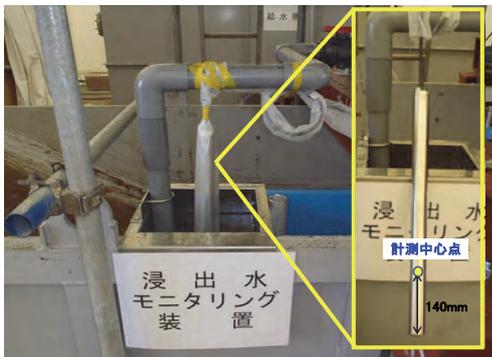


写真3 サーベイメータ設置状況

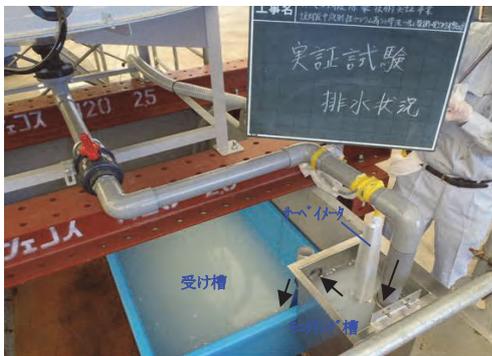


写真4 実証試験排水状況

2.2 実験方法

(1) 実証試験処理区

実証試験の各処理区の処理条件を表1に示す。供試飛灰量は No.1 のみ 0.7t、それ以外の処理区は 0.35t で試験を行った。試験 No.2-1 と No.2-2 は同条件であるが、これは試験 No.2-1 において作業手順が原因で水切りフレコン内の飛灰に大きな亀裂が生じ、水みちが形成されてしまったため、同条件にて再試験を行ったことによるものである。

総給水量及び時間あたり給水量は試験開始前に設定した間欠散水の運転条件より算出した。累積溶出量は洗浄処理終了後に浸出水受け槽に貯留された全浸出水量とその放射能濃度(実測)の積より求めた。また液固比は全浸出水量の実測値を洗浄前の飛灰重量で除した値である。

(2) 測定方法

GM 式水中サーベイメータによる放射線量の測定は20分間カウントの積算値を計測し、10分間インターバルをあけるという方法で行い、30分間毎にデータを1点記録した。処理試験を開始する前にモニタリング水槽を水道水で満たしバックグラウンド値(平均 1,246counts(n=41))を計測した。実証試験では実際の浸出水の計測値からバックグラウンド値を差し引き正味のカウント値とした。

測定はモニタリング水槽が空の状態である散水・通気処理開始前の含水土用給水時から開始した。含水土用給水は乾燥している飛灰に含水土をさせ、試験開始と同時に浸出水を得る目的のために全ての処理区で実施した。含水土用給水は試験用給水の10倍以上に相当する約150L/hで散水を行い、浸出水が確認された時点で終了した。

含水土用給水に伴う廃水(3~18L)がモニタリング水槽に貯留された状態のまま洗浄試験を開始した。モニタリング水槽からのオーバーフローが確認された時点から測定における「定常状態」とした。

(3) 浸出水の放射能濃度分析

実証試験期間中、モニタリング水槽内の浸出水を試験開始から2,6,21,24(No.4のみ1,3,10.5,12)時間後にサンプリングし、ゲルマニウム半導体検出器にて放射能濃度(^{134}Cs , ^{137}Cs)を分析した。

表1 実証試験処理区

試験 No.	試験条件	期間 day	飛灰量 t	総給水量 L(設定)	時間あたり給水量 L/h	累積溶出量 kBq(実測)	液固比(実測)
1	400mm/日散水、通気	1.0	0.70	379	16	382	0.55
2-1	240mm/日散水、通気	1.0	0.35	228	9.5	157	0.64
2-2	240mm/日散水、通気	1.0	0.35	228	9.5	203	0.66
3	240mm/日散水	1.0	0.35	228	9.5	193	0.65
4	480mm/日散水、通気	0.5	0.35	228	19	208	0.65

§3. 結果

3.1 浸出水中の放射能濃度推移

各処理区の GM 計によるカウント値の計測データを図2、3に示す。計測は含水用給水時から開始しているため、実線で示した経過時間の 0~24h (12h) が洗浄処理を実施した試験期間である。また浸出液でモニタリング槽が満水となり溢流が開始された状態を計測における定常状態として、点線で示した。

全ての処理区の計測データにおいて、含水用給水・洗浄処理が開始されモニタリング槽内に浸出液が貯留されるに従い、カウント値は急上昇しそれぞれ最高値(以下、「ピーク」という)へ到達した後、緩やかに減少した。最高カウント値としては、飛灰量 0.35t の No.2-2, No.3, No.4 で 6,300~7,000、ただし水みち形成が生じた No.2-1 は 5,400、飛灰量が 0.7t の No.1 で 8,200 であった。

ピークは、No.2-1 以外は全てモニタリング槽が満水になり定常状態となった(図中の点線)以降に出現した。No.2-1 ではピークの出現はモニタリング槽満水とほぼ重なった。

ピーク出現後の減少の傾きはピーク直後に比べ、洗浄処理終了直前ではその傾きが緩やかになる傾向が確認された。



図2 No.1 区のカウント値の推移

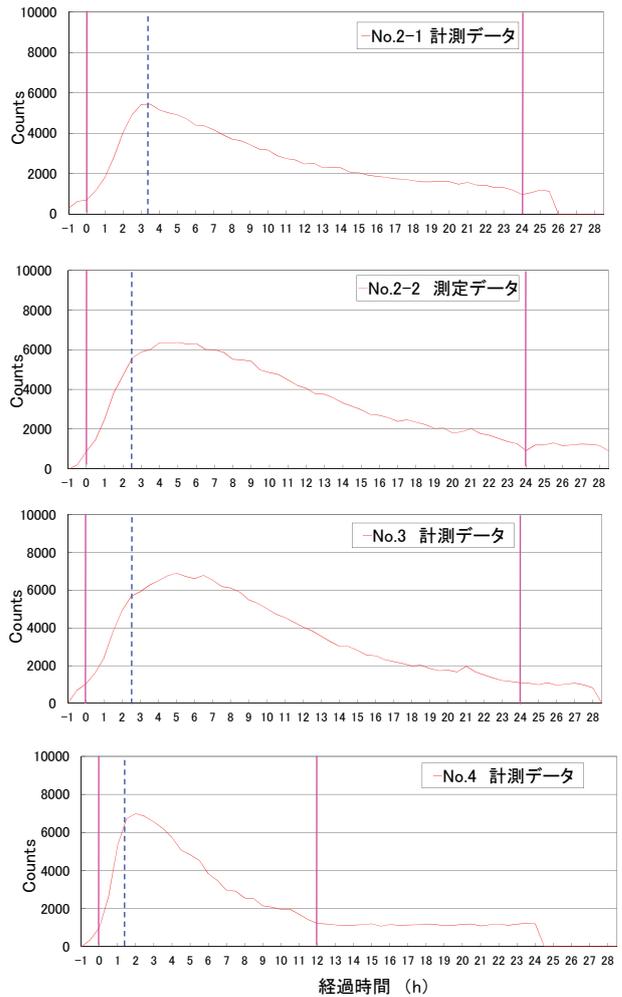


図3 No.2-1,2-2,3,4 区のカウント値の推移

3.2 計測値と実測値の関係

図4に GM 計による計測データとゲルマニウム半導体検出器で分析した放射能濃度 ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) の関係を示す。計測値と実測値は決定係数 0.94 と高い相関関係を示し、計測のカウント値を放射能濃度 (Bq/kg) に換算可能であることが示された。ただしこの係数 0.23 は塩濃度等の浸出液の性状によって異なる可能性が高く、実際には飛灰の種類毎に計測する必要があると考えられる。

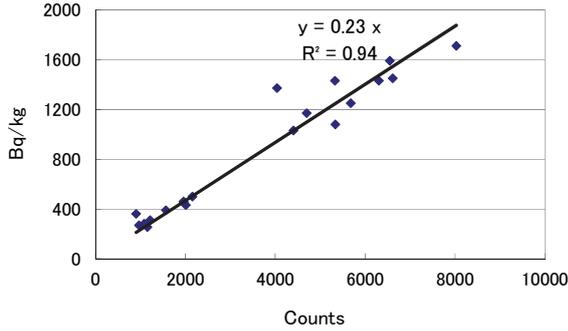


図4 モニタリング計測値と実測値の相関(n=20)

§4. 考察

4.1 適切な散水強度

図2、3において計測データのピークの出現がモニタリング槽が満水となり、溢流がはじまる定常状態以降に生じることが確認された。これは初期の浸出水よりもその後に排水された浸出水の放射能濃度が高いことを示している。

この原因として含水用給水と試験用給水の給水速度の違いが考えられる。含水用給水は試験用給水の約 10 倍に相当する 150L/h で給水を行っており、そのため十分な接触時間を得られずに浸出水が発生したと考えられる。一方、試験開始により給水速度は 9.5~19L/h 程度に低いため散水された水が十分な接触時間を得た浸出水となり、この浸出水の放射能濃度が高くなったため定常状態以降にピークが出現したと推察される。

このことから散水・通気法において給水速度つまりは散水強度を適切に設定することにより放射性セシウムの「効率的な」洗い出しができることが確認された。ここでいう「効率的」とは単位水量あたりの洗い出し量が多いことを指す。

4.2 洗浄不良の発見

本実証試験 No.2-1 では水切りフレコン内の亀裂発生に伴い、水みちが生じたため同条件にて再試験 (No.2-2) を行った。この両区の計測データの比較を図5 に示す。

水みちが生じた No.2-1 は No.2-2 に比べてピークのカウント値も低く、また計測データのグラフ自体小さくなっていることが確認された。実測の累積溶出量も No.2-2 は 203kBq に対して No.2-1 は 157kBq と 23%減であった (表1)。また 4.1 に記述したピーク出現時期についても No.2-2 は定常状態以降に現れたのに対して、No.2-1 では定常状態開始時とほぼ重なる結果となった。これは No.2-1 では含水用給水時と同等もしくはそれ以下の効

率でしか洗い出しができていないことを示唆している。

これらの結果を利用することにより、バッチ方式で行う散水・通気法の飛灰洗浄において洗い出しが効率的に実施できた飛灰洗浄の計測データと比較することにより、他のバッチの洗浄状況がどのような状態であることを確認し、水みち形成等の不良な洗浄状況をチェックすることが可能となる。その際の指標としては、ピーク値、グラフ面積、定常状態開始時点とピーク位置が考えられる。

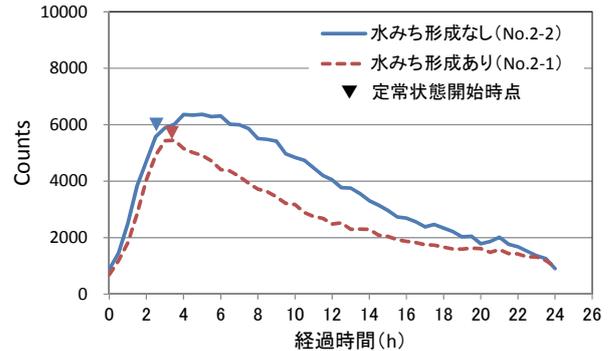
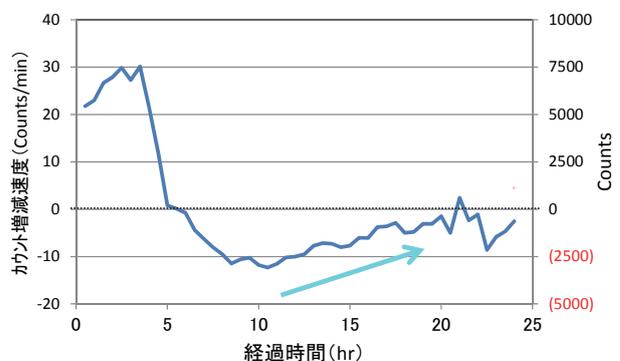


図5 水みち形成の洗い出しへの影響

4.3 洗浄効率の低下

図6に No.1 における計測データのカウント増減速度の 90 分間移動平均値を示す。カウント増減速度は計測データ間の傾きを表すものであり、その値がプラスであれば濃度上昇、マイナスであれば濃度減少状態を示し、ゼロに近づくほど濃度変化がない状態であることを意味する。No.1 では計測データの上昇〜ピーク〜減少にあわせてカウント増減速度はプラス〜ゼロ〜マイナスに転じた。経過時間が 10h 経過したあたりから、マイナスに転じ、低下し続けたカウント増減速度は増加に変わり、ゼロに近づく傾向を示した。これは計測データの減少の傾きが水平に近づいていることを示しており、単位水量あたりの洗い出しの効率が低下していることを示唆している。



※カウント増減速度 = $(C_t - C_{t-0.5}) / 30\text{min}$; C_t : 開始から t 時間時点でのカウント値

図6 カウント増減速度の移動平均値

4.4 洗い出し量の推定

図7に横軸に累積給水量をとったNo.1の計測データを示す。累積給水量は試験開始前に設定した時間あたり給水量(表1)と経過時間の積により求めた。この給水量とカウント値の積の積分値(以下、「積分カウント値」という)つまりは図7の着色部分の面積値を各処理区について算出した。

この積分カウント値と実測の放射能濃度より算出した溶出量には高い相関関係があることが確認された(図8)。このことから設定給水量と計測データを用いることで、散水・通気法による飛灰洗浄の放射性セシウムの洗い出し量が推定可能であり、洗浄前の飛灰中放射線量と照合することで、洗浄の進捗状況を推察することができると思われる。

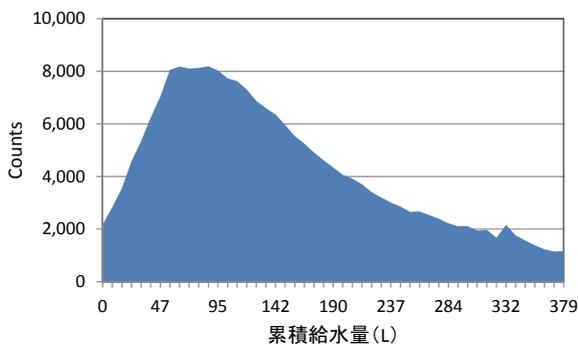


図7 積分カウント値(No.1)

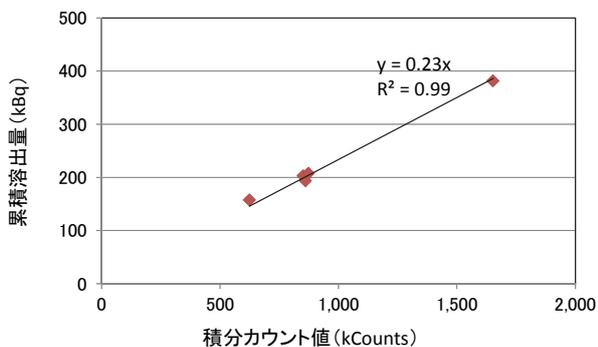


図8 累積溶出量と積分カウント値の相関

§5. まとめ

本研究で得られた結果を以下にまとめる。

- (1) GM 式水中サーベイメータを用いることにより、散水・通気法による飛灰洗浄に伴う浸出水中の放射線量の推移を計測することが可能であることが明らかになった。
- (2) GM 計によって得られた計測データであるカウント値と実測の放射能濃度には高い相関関係があることが確認

され、カウント値から放射能濃度の推定が可能であることが示唆された。

- (3) 本研究で得られた計測データの推移を検証することにより、過度な散水強度や水みち形成等の不良な洗浄状態が生じていないかをチェックすることができることが示唆された。
- (4) 本研究の計測データの傾きの推移を調べることによって、洗浄処理の後半において単位水量あたりの洗い出し効率が低下していることが確認された。
- (5) 各処理区にて得られた計測データと設定給水量から算出する積分カウント値と実測の累積溶出量に高い相関関係が認められた。

以上のことから、散水・通気法による飛灰洗浄において、本研究で用いた浸出水中の放射線量を計測することにより、飛灰中の放射性セシウムの洗い出しが効率的に行われているかをリアルタイムに確認できることが示された。この技術を用いることにより散水・通気法における飛灰洗浄の品質管理や管理効率化への寄与が期待される。

※本報は環境省平成 25 年度除染技術実証事業「焼却灰中放射性セシウムの高効率洗い出し技術の実証」の成果の一部です。

参考文献

- 1) (独)国立環境研究所:放射性物質の挙動から見た適正な廃棄物処分(技術資料第四版), 2014.
- 2) 久保田洋・野口俊太郎・山田裕己:焼却飛灰中放射性セシウムの高効率洗浄技術の開発, フジタ技術研究報告, 2014.
- 3) (独)JAEA、平成 25 年度除染技術実証事業報告書、http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat01/entry07_25.html, 2013
- 4) 久保田洋・山田裕己ら:GM 式水中サーベイメータを用いた飛灰洗浄モニタリング, 第 3 回環境放射能除染学会研究発表会要旨集, p.95, 2014.

ひとこと

放射線の計測技術を組み合わせることによって散水・通気法のような飛灰洗浄技術をより効率的かつ効果的に実施できる可能性があると考えています。



久保田 洋