

放射性CsやSrで汚染された廃棄物の中間貯蔵と最終処分
のための安定化技術に関する研究(1-1702)

京都大学複合原子力科学研究所
准教授 福谷 哲

研究組織	
研究代表者:	
京都大学工学研究科都市環境工学専攻 環境リスク工学分野	米田 稔
共同研究者:	
京都大学工学研究科都市環境工学専攻 環境リスク工学分野	島田 洋子
	五味 良太
京都大学工学研究科都市環境工学専攻 環境デザイン工学講座	高岡 昌輝
	大下 和徹
	藤森 崇
京都大学複合原子力科学研究所 放射性廃棄物管理分野	福谷 哲
	池上 麻衣子

研究背景・目的(社会的必要性)

福島第一原発事故による放射能汚染廃棄物

仮設焼却施設での焼却が行われているが、いまだ最終処分までの道筋が見えない

焼却飛灰のセメント固化では放射性Csの溶出を十分抑制できない
最終処分では、セメント中自由水からの放射能による水素発生も懸念
廃棄物中での挙動が未だ未知

最終処分を見据えた場合、どのような処分物を調整していくべきかが明らかでない

安定核種を用いた非現実的高濃度での実験の問題
今回の事故で放出量の少なかった放射性Srの挙動の問題

最終処分までを見据え、実用性の高い減量化、安定化技術を確立

研究計画

放射能汚染された廃棄物を仮設焼却炉で焼却処分→最終処分には、焼却灰や飛灰からのCsやSrの溶出を十分なレベルで抑制する方法が必要

除染廃棄物等
比較的低濃度の廃棄物
安価で大量処理可能な安定化方法

焼却飛灰等
比較的高濃度の廃棄物
極めて溶出率の小さい安定固化方法

これまでの知見:

土壌には主に3種類の吸着サイトが存在。

各サイトの量と、共存イオンの種類と量を知れば、除染廃棄物やその焼却物からのCsやSrの溶出量が推定可能。

これまでの知見:

セメント固化では放射性CsやSrの十分な溶出抑制ができず、高濃度に塩類を含む残渣に対応できる固化法が必要。

通常の飛灰に対してはジオポリマーを用いた安定固化方法が有効

土壌と焼却灰の混合物からの、放射性物質の溶出量をコントロールする方法提案。管理に必要なパラメータ値を簡単に求める方法開発。

可溶性の高い熱処理残渣の固定化法としてジオポリマー法を確立

研究目的

処理コスト、最終処分場の容積抑制といった、複数の評価基準下で最適な、最終処分までを見据えた処理・処分方法提案。

研究計画

放射能汚染された廃棄物を仮設焼却炉で焼却処分→最終処分には、焼却灰や飛灰からのCsやSrの溶出を十分なレベルで抑制する方法が必要

除染廃棄物等
比較的低濃度の廃棄物
安価で大量処理可能な安定化方法

焼却飛灰等
比較的高濃度の廃棄物
極めて溶出率の小さい安定固化方法

これまでの知見：
土壌には主に3種類の吸着サイトが存在。
各サイトの量と、共存イオンの種類と量を知れば、除染廃棄物やその焼却物からのCsやSrの溶出量が推定可能。

これまでの知見：
セメント固化では放射性CsやSrの十分な溶出抑制ができず、高濃度に塩類を含む残渣に対応できる固化法が必要。
通常の飛灰に対してはジオポリマーを用いた安定固化方法が有効

土壌と焼却灰の混合物からの、放射性物質の溶出量をコントロールする方法提案。管理に必要なパラメータ値を簡単に求める方法開発。

可溶性の高い熱処理残渣の固定化法としてジオポリマー法を確立

研究目的

処理コスト、最終処分場の容積抑制といった、複数の評価基準下で最適な、最終処分までを見据えた処理・処分方法提案。

土壌、あるいは土壌混合焼却灰からの溶出量の理論化

3つの吸着サイトと競争吸着のLangmuir式による説明

Csの吸着座には3つのタイプが存在

(山口紀子: 土壌への放射性Cs の吸着メカニズム, J. Jpn. Soc. Soil Phys., No. 126, p.11 – 21, 2014)

主に有機質などに起因
する吸着座(So型)

粘土の層結晶構造に
起因する吸着座(Ss型)

フレイド・エッジ・サイトに
起因する吸着座(Sf型)

土壌粒子が混入した廃棄物を焼却処分した場合、Csを吸着する吸着座が一般廃棄物の焼却灰成分よりも土壌粒子の方にはるかに多いと仮定

土壌粒子での吸着は主に(So型吸着)、(Ss型吸着)、(Sf型吸着)の3種類が存在と仮定

土壌、あるいは土壌混合焼却灰からの溶出量の理論化

土壌からのCsとSrの溶出濃度は次に示すLangmuir型の競争吸着式で表現
(以下、本日は時間的制約からCsについてのみ示す。)

$$[\text{Cs-S}] = [\text{Cs-So}] + [\text{Cs-Ss}] + [\text{Cs-Sf}] \quad (1)$$

$$[\text{Cs-So}] = [\text{So}_{\max}] b_{\text{Cs-So}} [\text{Cs}^+] / (1 + \sum_i b_{i-\text{So}} [M_i]) \quad (2)$$

$$[\text{Cs-Ss}] = [\text{Ss}_{\max}] b_{\text{Cs-Ss}} [\text{Cs}^+] / (1 + \sum_i b_{i-\text{Ss}} [M_i]) \quad (3)$$

$$[\text{Cs-Sf}] = [\text{Sf}_{\max}] b_{\text{Cs-Sf}} [\text{Cs}^+] / (1 + \sum_i b_{i-\text{Sf}} [M_i]) \quad (4)$$

ここで、

$[\text{Cs}^+]$, $[\text{Sr}^{2+}]$: 放射性Cs⁺とSr²⁺の溶液中濃度 (meq/mL)

$[M_i]$: 陽イオンiの溶液中濃度 (meq/mL)

$[\text{Cs-S}]$: 放射性Cs土壌固相吸着量

$[\text{Cs-So}]$, $[\text{Cs-Ss}]$, $[\text{Cs-Sf}]$: So型、Ss型、Sf型吸着座への放射性Cs吸着量 (meq/g)

他は平衡定数 {単位は (mL/meq)}

土壌、あるいは土壌混入焼却灰からの溶出量の理論化

今、土壌混入焼却灰などの溶出試験対象廃棄物を放射性Csを含まない溶出液(=比重1)で溶出する場合、廃棄物と溶出液との重量固液比を1:Rとすると、放射性Csの溶出率 E_{Cs} (%)は次式で表される。

$$E_{Cs} = 100R[Cs^+] / (R[Cs^+] + a[Cs-S] + (1-a)[Cs-W])$$
$$= 100 / (1 + (a/R)[Cs-S]/[Cs^+] + ((1-a)/R)[Cs-W]/[Cs^+]) \quad (5)$$

無視可能な場合あり

ここで、

R: 固液比

[Cs-W]: 対象廃棄物中の土壌を除く固相成分への放射性Cs吸着量 (meq/g)

aは対象廃棄物中に占める土壌の質量割合であり、まったく土壌が混入していない場合が $a=0$ 、全て土壌のみの場合が $a=1$ となる。

なお、環告46号試験(固液比1:10での水への溶出試験)の場合には $R=10$

土壌、あるいは土壌混合焼却灰からの溶出量の理論化

一般にCsに関する吸着座としては、Sf型吸着座の量が最も小さいことから、Csの場合には、存在するCsの総量がSf型吸着座の総量(0.2($\mu\text{mol/g}$)程度)よりも十分に小さい場合は、(1)～(4)式が成立し、Csの量に溶出試験結果が依存しなくなると期待。

図1は岩手大演習林土壌(以下、土壌Aと記載)にCsを添加し、熱処理した土壌からのCs溶出率を、Cs-134で0.0194(pmol/g)を添加した場合と、その 10^5 倍程度の量(添加量は安定Cs-133で3.76(nmol/g))の安定Csを添加した場合で比較←ほぼ同じ結果
安定Csでも実験可能！

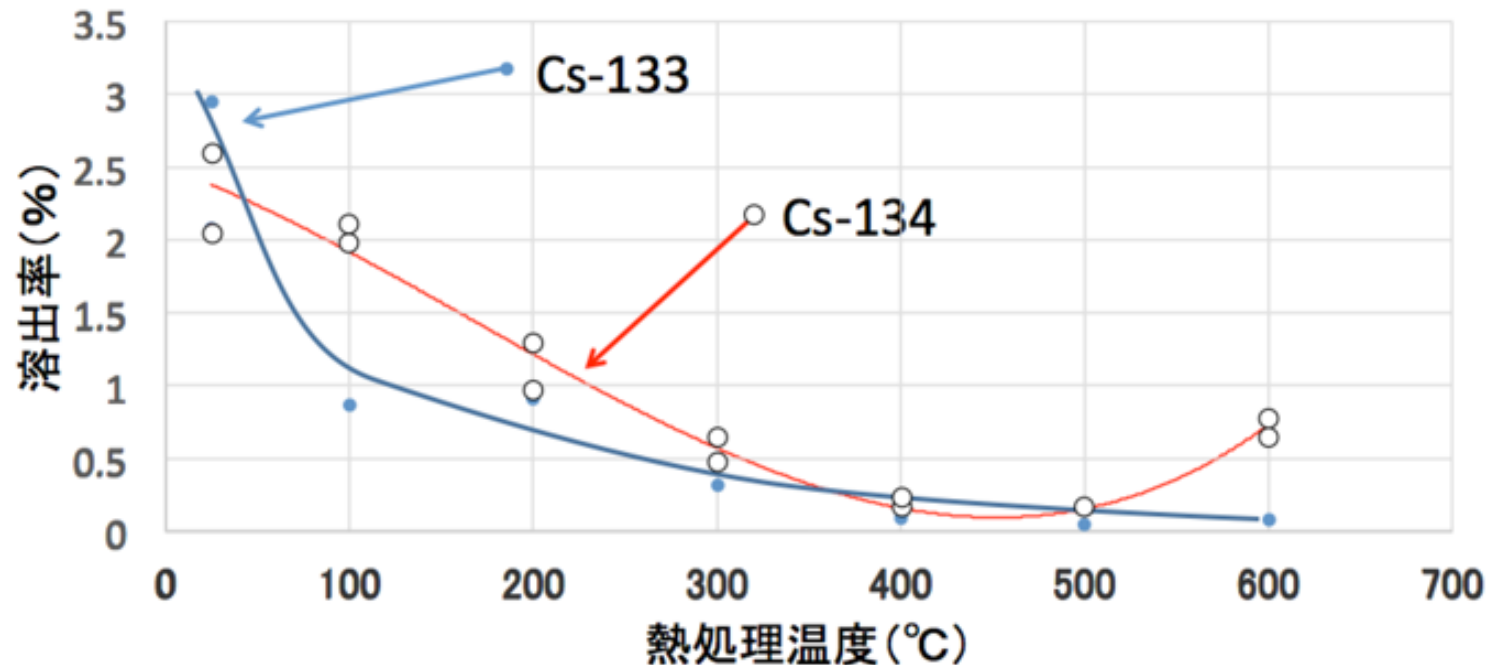


図1 Cs-133とCs-134での土壌の熱処理温度と溶出率

土壌、あるいは土壌混合焼却灰からの溶出量の理論化

廃棄物が全て土壌で構成される場合の溶出率(a=1の場合)

環告46号試験を行った場合(R=10の場合)は、土壌中への各種イオンの溶出量は小さく、 $1 + \sum_i b_{i-S_0} [M_i]$ はほぼ1で近似可能とすると、(2)~(4)式は次式で近似

$$[Cs-S_0] = [S_{0_{\max}}] b_{Cs-S_0} [Cs^+] \quad (6)$$

$$[Cs-S_s] = [S_{s_{\max}}] b_{Cs-S_s} [Cs^+] \quad (7)$$

$$[Cs-S_f] = [S_{f_{\max}}] b_{Cs-S_f} [Cs^+] \quad (8)$$

このとき、(5)式はR=10, a=1として次式となる。

$$\begin{aligned} E_{Cs} &= 100 / (1 + (1/10)[Cs-S] / [Cs^+]) \\ &= 100 / (1 + [S_{0_{\max}}] b_{Cs-S_0} / 10 + [S_{s_{\max}}] b_{Cs-S_s} / 10 + [S_{f_{\max}}] b_{Cs-S_f} / 10) \end{aligned} \quad (9)$$

放射性Csの吸着はSf座への吸着が支配的であるとすると、

$$[Cs-S] = [S_{f_{\max}}] b_{Cs-S_f} [Cs^+] = Kd_{Cs-S_f} [Cs^+] = Kd_{Cs} [Cs^+] \quad (10)$$

ここで、 Kd_{Cs} : Csの3吸着座への分配係数(mL/g)

図1で、土壌Aを500°C程度で熱処理した土壌では放射性Csの溶出率が0.1%だから、このときの $[S_{f_{\max}}] b_{Cs-S_f} = Kd_{Cs}$ の値は10000 (mL/g)程度＝報告値と比べて妥当。

土壌、あるいは土壌混合焼却灰からの溶出量の理論化

土壌が混入した飛灰や焼却灰からのCs溶出率($0 \leq a \leq 1$ の場合)

(1)～(4)式において放射性Csの土壌への吸着量[Cs-S]は、ほとんどがSf型吸着座への吸着量[Cs-Sf]であるとする。このフレイドエッジサイトへのCsの吸着において、競争吸着関係にあるイオンとして、 K^+ のみを考えると、

$$[Cs-S] = [Cs-Sf] = [Sf_{\max}] b_{Cs-Sf} [Cs^+] / (1 + b_{K-Sf} [K^+]) \quad (11)$$

飛灰1gに1.3mmolのKが存在する飛灰Aでは、土壌と飛灰Aを1:1で混合した場合、 $[K^+]$ の値は $[Cs^+]$ の値に比べ、圧倒的に大きい。土壌と飛灰をa:1-a ($0 \leq a \leq 1$)で混合する場合、飛灰へのCsの吸着量を無視すると各吸着座の最大吸着量はa倍となるから、(5)式で飛灰へのCsの吸着量を無視すると、

$$E_{Cs} = 100R[Cs^+] / (R[Cs^+] + a[Cs-S]) = 100 / (1 + (a/R)[Cs-S]/[Cs^+]) \quad (12)$$

これに(11)式を代入して、

$$\begin{aligned} E_{Cs} &= 100R[Cs^+] / (R[Cs^+] + a[Cs-S]) = 100 / (1 + (a/R) [Sf_{\max}] b_{Cs-Sf} / (1 + b_{K-Sf} [K^+])) \\ &= 100 / (1 + (a/R) / (1/Kd_{Cs-Sf} + [K^+]/RIP)) \end{aligned} \quad (13)$$

ここで、 $RIP = [Sf_{\max}] b_{Cs-Sf} / b_{K-Sf} = [Sf_{\max}] ([Sf_{\max}] b_{Cs-Sf} / [Sf_{\max}] b_{K-Sf}) = [Sf_{\max}] Kd_{Cs-Sf} / Kd_{K-Sf}$

土壌、あるいは土壌混合焼却灰からの溶出量の理論化

土壌が混入した飛灰や焼却灰からのCs溶出率($0 \leq a \leq 1$ の場合) (続き)

今、 Kd_{Cs-Sf} は10000 (mL/g)程度の値と推定されており、RIPの値は熱処理する前の土壌で、0.2(m mol/g)程度であったことから、 $[K^+]$ が0.001(m mol/mL)程度より大きければ、 $1/Kd_{Cs-Sf}$ は $[K^+]/RIP$ に比べて無視できる。このとき、(13)式は、

$$E_{Cs} = 100 / (1 + (a/R)RIP/[K^+]) \quad (14)$$

(14)式の関係が一般廃棄物の焼却灰と土壌の混合物でも成立することを、ごみ固形燃料(RDF)の焼却灰を用いた実験で確認(図2)。 $a=0.65$ 程度までは推定値と実測値が良く一致。

(14)式は、ある程度、土壌が混入した焼却灰などを洗浄処理する場合に、目標とする洗浄効率を得るための洗浄条件を求めるために使用可能。

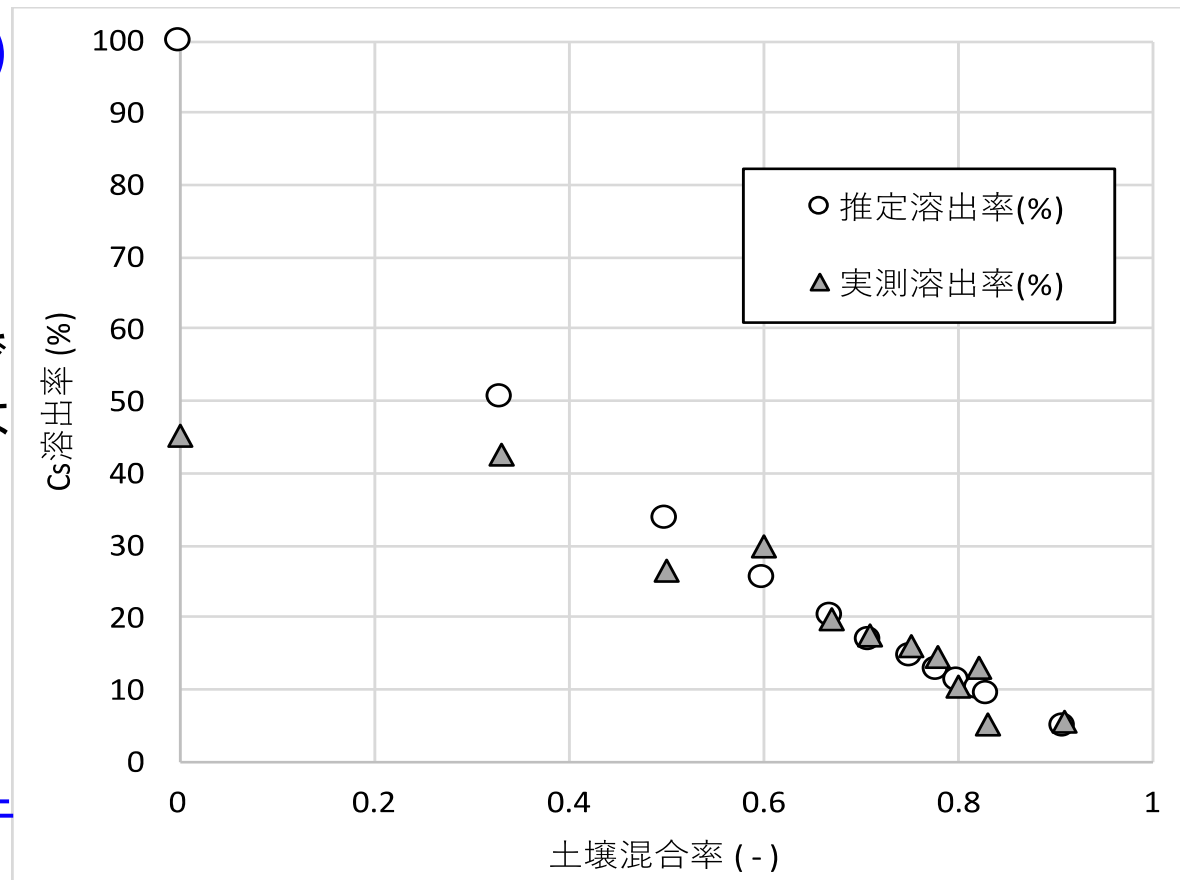


図2 土壌が混入したRDF焼却灰からのCs溶出率

比較的低濃度の廃棄物 (特に土壌を多く含む除染廃棄物など)の処分方法開発

見込まれる環境政策への貢献

土壌混入焼却灰からのCs溶出率は、Langmuir型の競争吸着理論に基づく簡単な式で推定可能。



土壌、あるいは土壌が混入した焼却灰を埋め立てる場合、あるいは再利用する場合に、Csの溶出量を比較的簡単にコントロールすることが可能。

また、K濃度などを上げて溶出量を増やすことで、湿式分級法による再資源化率を上げることが可能。

研究計画

放射能汚染された廃棄物を仮設焼却炉で焼却処分→最終処分には、焼却灰や飛灰からのCsやSrの溶出を十分なレベルで抑制する方法が必要

除染廃棄物等
比較的**低濃度**の廃棄物
安価で大量処理可能な安定化方法

焼却飛灰等
比較的**高濃度**の廃棄物
極めて溶出率の小さい安定固化方法

これまでの知見:

土壌には主に3種類の吸着サイトが存在。

各サイトの量と、共存イオンの種類と量を知れば、除染廃棄物やその焼却物からのCsやSrの溶出量が推定可能。

これまでの知見:

セメント固化では放射性CsやSrの十分な溶出抑制ができず、高濃度に塩類を含む残渣に対応できる固化法が必要。

通常の飛灰に対してはジオポリマーを用いた安定固化方法が有効

土壌と焼却灰の混合物からの、放射性物質の溶出量をコントロールする方法提案。管理に必要なパラメータ値を簡単に求める方法開発。

可溶性の高い熱処理残渣の固定化法としてジオポリマー法を確立

研究目的

処理コスト、最終処分場の容積抑制といった、複数の評価基準下で最適な、最終処分までを見据えた処理・処分方法提案。

研究計画

放射能汚染された廃棄物を仮設焼却炉で焼却処分→最終処分には、焼却灰や飛灰からのCsやSrの溶出を十分なレベルで抑制する方法が必要

除染廃棄物等
比較的低濃度の廃棄物
安価で大量処理可能な安定化方法

焼却飛灰等
比較的高濃度の廃棄物
極めて溶出率の小さい安定固化方法

これまでの知見：
土壌には主に3種類の吸着サイトが存在。
各サイトの量と、共存イオンの種類と量を知れば、除染廃棄物やその焼却物からのCsやSrの溶出量が推定可能。

これまでの知見：
セメント固化では放射性CsやSrの十分な溶出抑制ができず、高濃度に塩類を含む残渣に対応できる固化法が必要。
通常の飛灰に対してはジオポリマーを用いた安定固化方法が有効

土壌と焼却灰の混合物からの、放射性物質の溶出量をコントロールする方法提案。管理に必要なパラメータ値を簡単に求める方法開発。

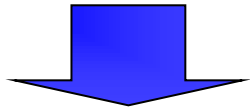
可溶性の高い熱処理残渣の固定化法としてジオポリマー法を確立

研究目的

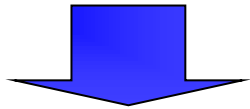
処理コスト、最終処分場の容積抑制といった、複数の評価基準下で最適な、最終処分までを見据えた処理・処分方法提案。

ジオポリマー法

放射性セシウム(Cs)が焼却残渣に含まれ、埋立処分に問題



- セメント固化では溶出率は60～90%とあまり不溶化できない
- Csを除去する技術が開発されているが、クリアランス以下にすることは難しい。複雑なプロセスが必要。



単純でCsを不溶化する技術：
ジオポリマー法に注目
(特許6210659号：2017/9/22)

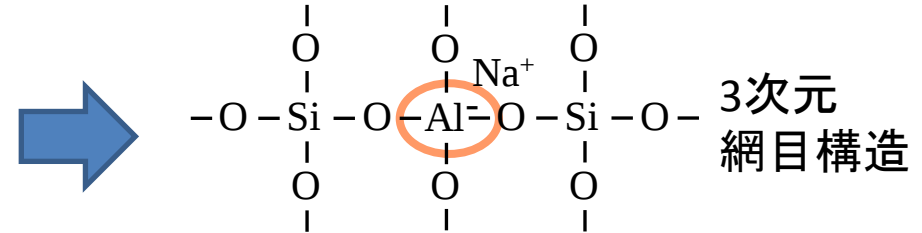
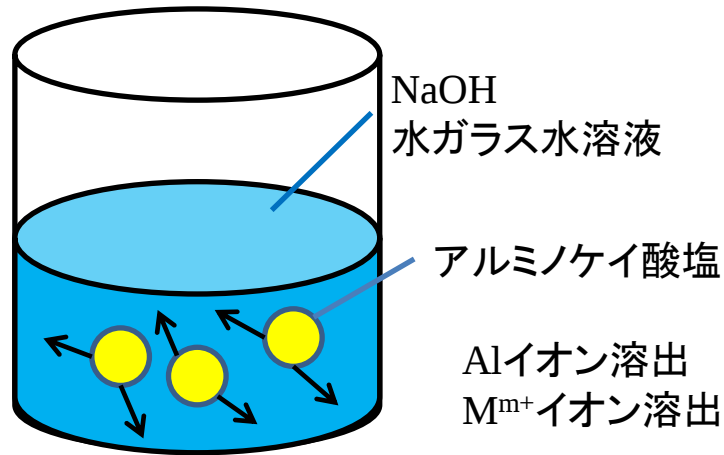
ジオポリマーとは

- ・アルミノケイ酸塩
(メタカオリン、焼却飛灰など)
- ・アルカリ活性剤(水酸化ナトリウム＋水ガラスなど)

が反応して生成される固化体



ジオポリマーの反応プロセスと課題



ゲル化、再組織化、縮重合

ジオポリマー

□Cs、Srはゲル化、再組織化プロセスにおいて、
取り込まれる

□ $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$: ポルックス石(天然鉱物)

- 減容・減量効果の高い溶融プロセスや焼成プロセスから発生する塩類の多い残渣への適用性は？
- アルミノケイ酸塩の種類による違いは？
- 核磁気共鳴分析、XRDなどによりSi、Alの構造分析

- ジオポリマー固定化によるメカニズムの明確化
- 総合的にジオポリマー条件の最適化
- 実現場への適用

ジオポリマー作成

フィラー

- ・アルミノケイ酸塩(メタカオリン、パイロフィライト)
- ・模擬飛灰、溶融飛灰

+

アルカリ活性剤

- ・NaOH水溶液(5-14M)
- ・珪酸ソーダ (JIS1号)希釈

固化体作成

- ・養生温度: 室温~105°C
- ・養生時間: 6~24h養生

固化体: 30g/個

溶出試験

- ・環告46号試験

各測定・分析

- ・XRD分析
- ・XAFS測定



溶出試験

溶出試験(環告46号試験)

ジオポリマー作成

細かく粉砕

試料とpH調整(5.8~6.0)した塩酸を
液固比10:1で混合

6時間振とう

ろ過

ICP-MSで測定

溶出率(%)

$$\frac{\text{溶液中Cs濃度} \times \text{液固比}}{\text{ジオポリマー中Cs量}} \times 100 (\%)$$

基本的にCsで評価

模擬飛灰からのCs溶出率

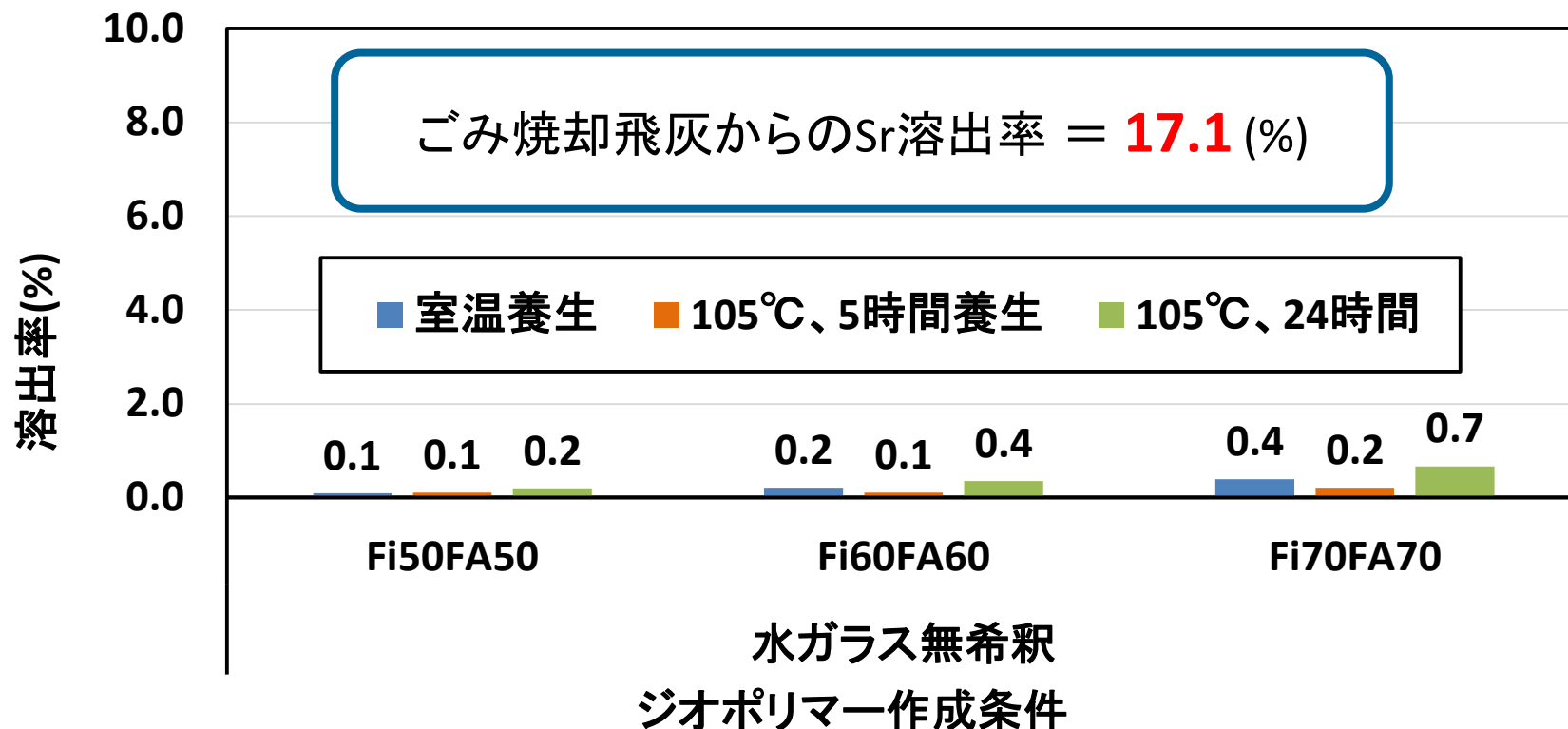
= **90.9** (%)

溶融飛灰からのCs溶出率

= **97.6** (%)

溶出試験結果(Sr)

ごみ焼却飛灰使用ジオポリマー溶出試験結果(Sr)



- ・Sr溶出率の範囲は **0.09～2.0%** で不溶化
 - ・養生時間(5、24時間)が上がると、溶出率増加
- ⇒Csとの同時不溶化の観点から、最適条件は

Fi50FA50(水ガラス無希釈、105℃、24時間養生)

実プラントを用いて、実験用飛灰を作成

模擬飛灰

溶融飛灰

元素	結果 (%)	測定機器
Cl	28.5	XRF
O	24.4	XRF
K	24.3	XRF
Na	8.3	XRF
C	6.09	XRF
S	2.57	XRF
Si	2.25	XRF
Ca	1.85	XRF
Al	0.91	XRF
Fe	0.40	XRF
Cs	0.326	ICP-MS
Rb	0.091	XRF
Mg	0.070	XRF
Sn	0.047	XRF
P	0.033	XRF
Pb	0.025	XRF
Zn	0.020	XRF
Br	0.018	XRF
Cr	0.014	XRF
Cu	0.011	XRF
Sr	0.006	XRF
Zr	0.005	XRF
Ni	0.005	XRF

元素	結果 (%)	測定機器
O	35.8	XRF
Cl	28.3	XRF
Na	15.5	XRF
K	6.95	XRF
C	5.62	XRF
Ca	5.16	XRF
Fe	1.25	XRF
Cs	2.72	ICP-MS
S	0.375	XRF
Zn	0.109	XRF
P	0.104	XRF
Si	0.067	XRF
Mg	0.050	XRF
Rb	0.034	XRF
Cu	0.030	XRF
Al	0.021	XRF
Mn	0.023	XRF
Pb	0.015	XRF
Cr	0.011	XRF
Ni	0.006	XRF
Br	0.005	XRF
Ga	0.004	XRF
Sr	0.003	XRF

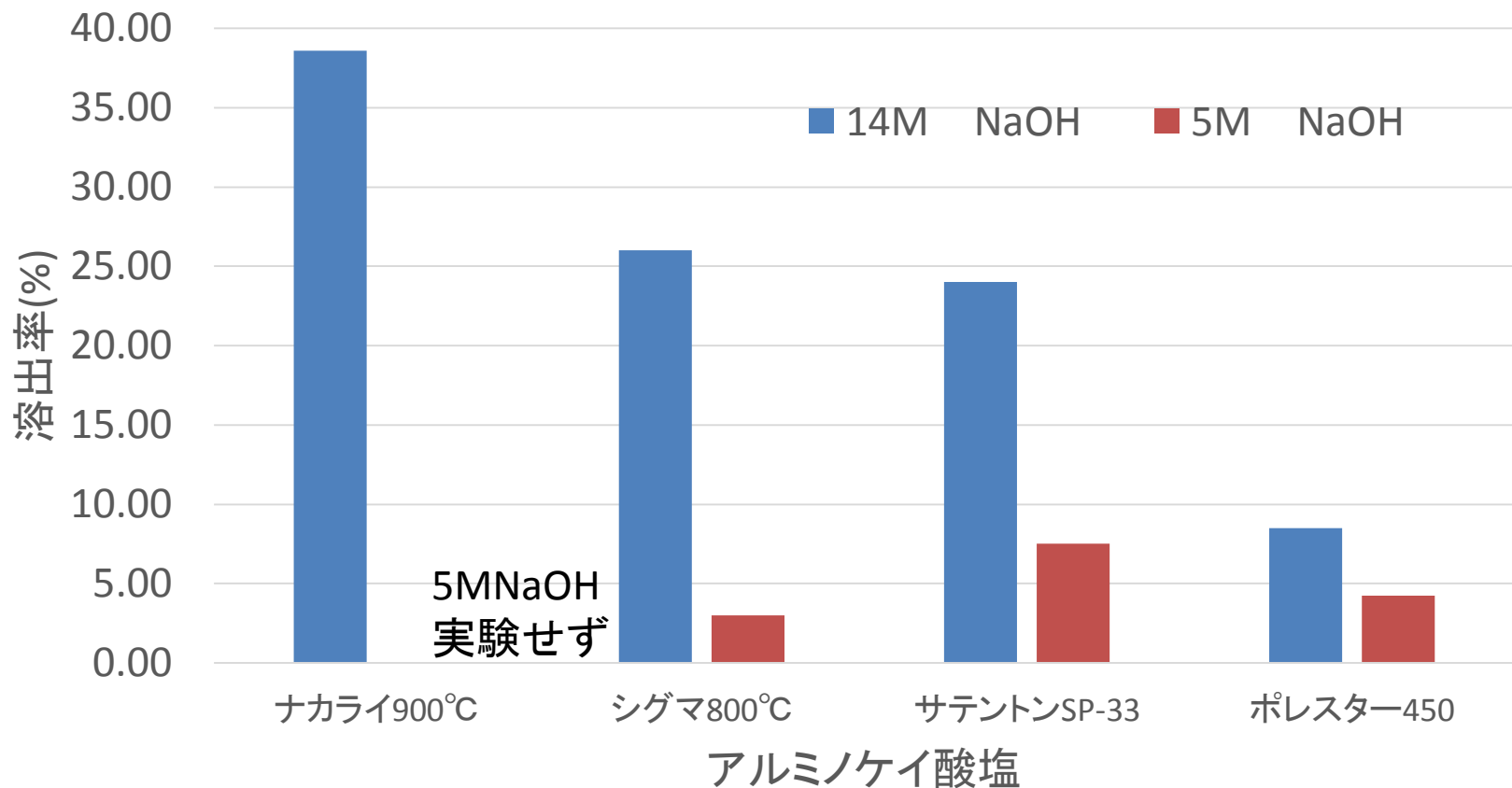
模擬飛灰に対する固化体結果

ジオポリマー固化の最適条件模索のため、以下の配合で固化体を作製

No.	模擬飛灰	メタカオリン	NaOH	水ガラス	養生温度(°C)	養生時間(h)	Cs溶出率(%)
GP_P01	7.5g	7.5g	7.5g、14M	7.5g、無希釈	80	24	57.6
GP_P02	7.5g	7.5g	7.5g、14M	7.5g、無希釈	105	24	8.48
GP_P03	7.5g	7.5g	7.5g、14M	7.5g、無希釈	105	48	18.2
GP_P04	7.5g	7.5g	7.5g、14M	7.5g、2倍希釈	105	24	34.9
GP_P05	7.5g	7.5g	7.5g、14M	7.5g、3倍希釈	105	24	14.8
GP_P06	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g、無希釈	105	24	4.22
GP_P07	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g、2倍希釈	105	24	16.3
GP_P08	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g、3倍希釈	105	24	11.7
GP_P09	9.0g	6.0g	7.5g、14M	7.5g、無希釈	105	24	21.0
GP_P10	9.0g	6.0g	7.5g、14M	7.5g、2倍希釈	105	24	7.16
GP_P11	9.0g	6.0g	7.5g、14M	7.5g、3倍希釈	105	24	2.17
GP_P12	6.0g	6.0g	9.0g、14M	9.0g、無希釈	105	24	26.6
GP_P13	6.0g	6.0g	9.0g、14M	9.0g、2倍希釈	105	24	19.9
GP_P14	6.0g	6.0g	9.0g、14M	9.0g、3倍希釈	105	24	30.7

Cs溶出率のみでなく、ジオポリマーの強度も考慮すると、この条件が選択される。 21

アルミノケイ酸塩の違いの影響

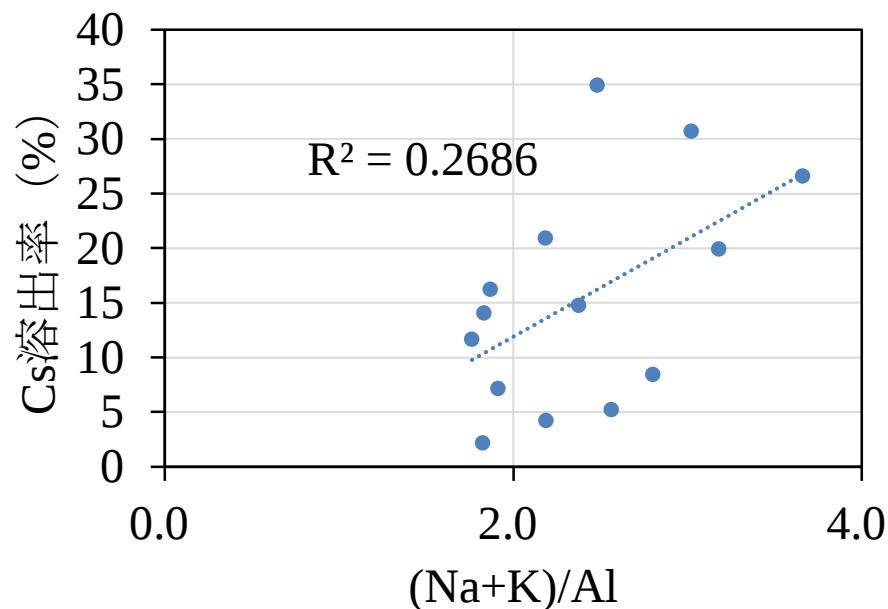
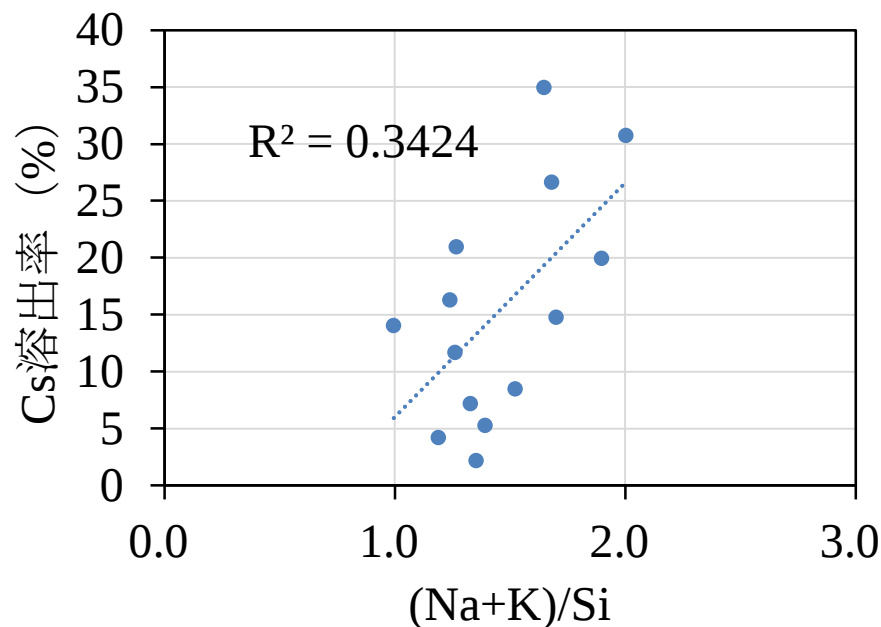


- パイロフィライト(ナカライ800℃)ではCsの固定化が十分ではない。メタカオリンの方がよい。
- 本サンプルではNaOHの濃度が低い方がCsの固定はよい。
- シグマ800℃およびポレスター450では5%以下。

各元素比とCs溶出率の相関関係

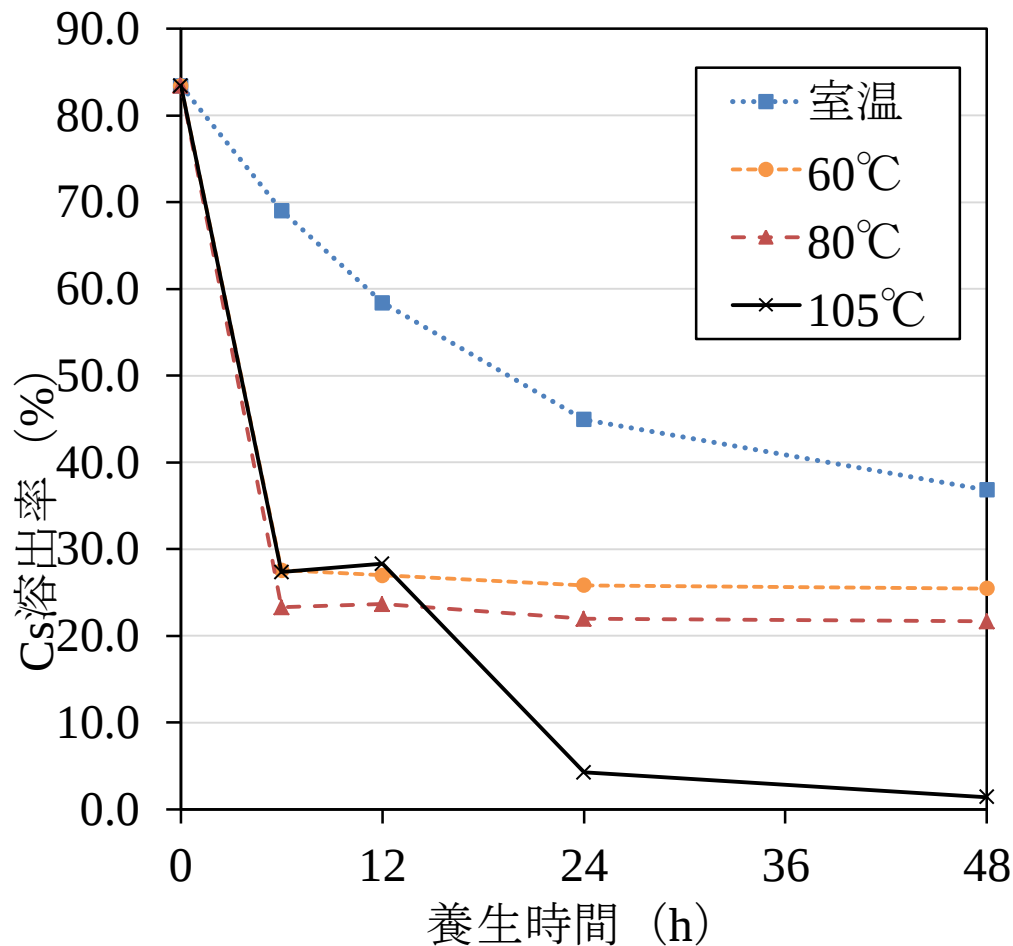
105°C、24時間養生の条件のみ
(Na+K)/Al

(Na+K)/Si



- Cs溶出率と(Na+K)/Al や(Na+K)/Siとの相関において有意差が見られ、ある程度の相関が見られた。
- NaとKはCsと同じアルカリ金属で、Cs固定サイトを阻害してしまうことが示唆された。
- Si/Al、水/(Na+K)、水量とCs溶出率の間には有意な相関はない。

模擬飛灰での 養生温度・時間とCs溶出率の関係

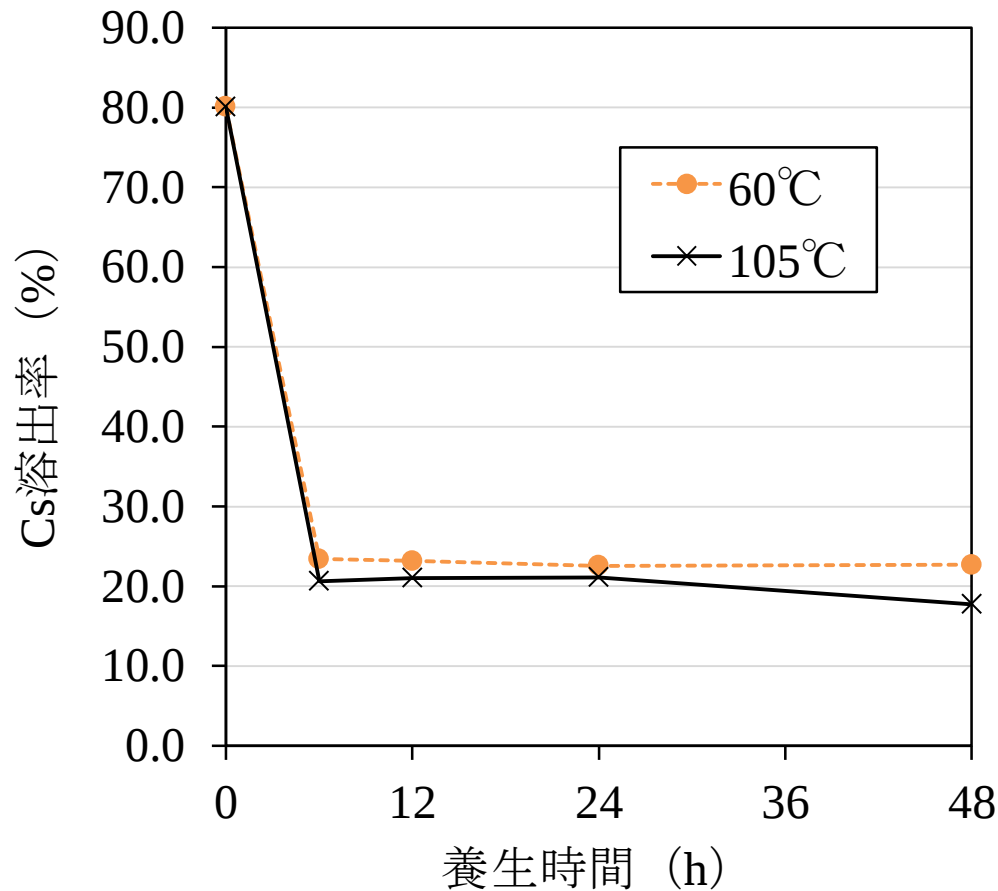


- 室温条件でも養生時間の経過ごとに溶出率が減少。
- 60°C、80°Cに関しては、養生時間が6h以降は溶出率に変化は見られず
- 105°Cに関しては、6、12時間で60°C、80°Cと同程度の溶出率まで下がり、24時間以降ではそれよりもさらに溶出率が減少。
- 105°C、24h養生以降ではジオポリマーの構造中で何らかの変化が生じている。

溶融飛灰に対するジオポリマー固化

No.	溶融 飛灰	メタカオリ ン	NaOH	水ガラス	養生温度 (°C)	養生時間(h)	Cs溶出率 (%)
GP_MFA_01	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	室温	0	80.1
GP_MFA_02	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	室温	24	40.3
GP_MFA_03	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	60	6	23.4
GP_MFA_04	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	60	12	23.2
GP_MFA_05	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	60	24	22.6
GP_MFA_06	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	60	48	22.7
GP_MFA_07	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	105	6	20.6
GP_MFA_08	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	105	12	21.1
GP_MFA_09	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	105	24	21.1
GP_MFA_10	7.5g	7.5g	7.5g、5M	7.5g	105	48	17.8
GP_MFA_11	7.5g	7.5g	7.5g、1M	7.5g	105	24	34.7
GP_MFA_12	7.5g	7.5g	7.5g、10M	7.5g	105	24	4.56
GP_MFA_13	7.5g	7.5g	7.5g、14M	7.5g	105	24	33.3
GP_MFA_14	7.5g	7.5g	7.5g、10M	7.5g	105	6	23.8
GP_MFA_15	7.5g	7.5g	7.5g、10M	7.5g	105	12	3.09
GP_MFA_16	7.5g	7.5g	7.5g、10M	7.5g	105	48	1.06

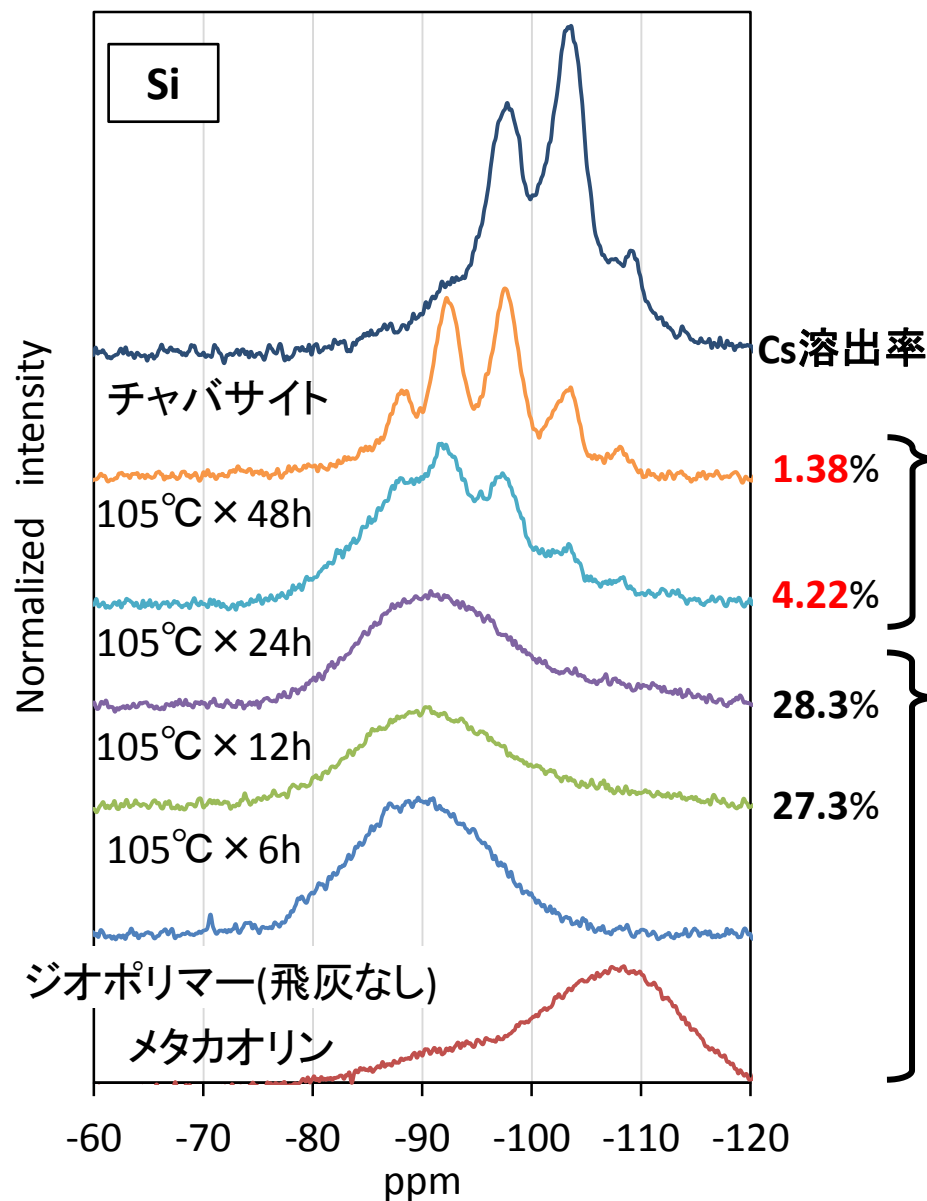
溶融飛灰での 養生温度・時間とCs溶出率の関係



溶融飛灰、5M NaOH 条件

- 60°C、105°Cに関しては、養生時間が6h以降は溶出率に変化は見られず、20%程度
- 同配合条件でNaOH濃度を変化させると、10M NaOHで最もCs溶出率を抑制(5%以下)。1M、14MでもCs溶出率が20%超で、最適なNaOH濃度が存在。
- 10M NaOH濃度で養生温度105°C下で時間を変化させると、6hではCs溶出率が20%程度だが、12h以降ではCs溶出率は5%以下。より高濃度のCsを含んだ溶融飛灰に対しても、最適条件を見出す

^{29}Si -NMR分析 (模擬飛灰)



結晶構造分析と一致

105°C × 24h養生からSiの構造変化
⇒ ゼオライト由来のピーク

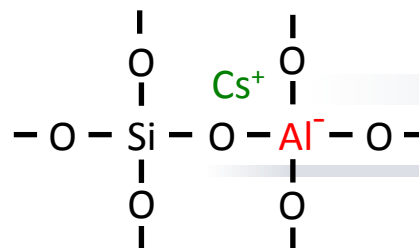
Fernandez-Jimenez et al (2006)

ジオポリマー特有のブロードなピーク

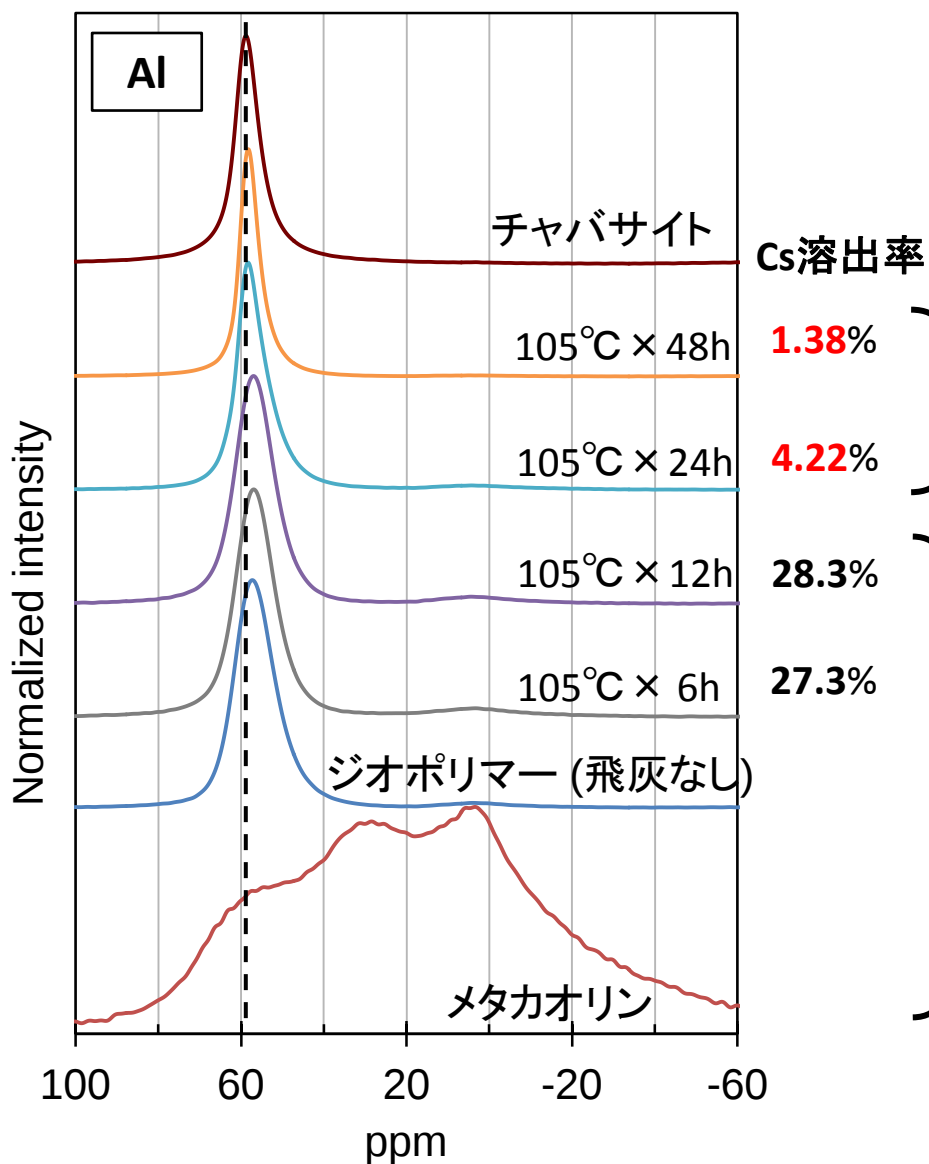
A. Autef et al (2013)

メタカオリン由来のSiはジオポリマー化

ジオポリマー構造によるCs保持



^{27}Al -NMR分析 (模擬飛灰)



結晶構造分析と一致

105°C × 24h養生からピークシフト
⇒ Al構造が変化

ジオポリマーのピークと一致

A. Autef et al (2013)

メタカオリン由来のAlもジオポリマー化

Al側からも

ジオポリマー構造によるCs保持

比較的高濃度の廃棄物 熱処理残渣の固定化法としてジオポリマー法を確立

見込まれる環境政策への貢献

双葉町の中間貯蔵施設において減容化施設が決まり、溶融施設が導入されることとなった。

Csは溶融飛灰に濃縮されることになるが、その処理処分方法は現時点では決まっていないが、今後決定する必要がある。

そのためには、Csを安全に確実に固定化する技術が求められ、その一つの方策となるのがジオポリマー技術。



本方法によれば、溶融飛灰の場合は1%程度の溶出率が達成可能であり、Cs-137で30万Bq/kg程度の溶融飛灰であれば、直接固化を実施可能である。

直接固化を実施するかどうかは別にして、溶融飛灰の様々な影響を調べることは今後の中間貯蔵・最終処分に関する政策を支える科学的知見になると考えられる。