

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

研 究 区 分 : 戦略的研究開発プロジェクト

研 究 実 施 期 間 : 2022（令和4）年度～2024（令和6）年度

テ ー マ 番 号 : S2-9-1

体 系 的 番 号 : JPMEERF22S20910

テ ー マ 名 : 県外最終処分を実現させるための技術システムの開発研究

Project Title : Research and Development of Technical Systems to Realize Final Disposal Outside of Fukushima Prefecture

テ ー マ リ ー ダ ー : 遠藤 和人

テ ー マ 代 表 機 関 : 国立研究開発法人国立環境研究所

テ ー マ 分 担 機 関 : 名古屋大学、福島工業高等専門学校、北海道大学、東京大学、広島大学、大阪大学、日揮株式会社

キ ー ワ ー ド : 除去土壌等、減容化、安定化処理、県外最終処分、シナリオ評価

注： 研究機関等は研究実施期間中のものです。また、各機関の名称は本報告書作成時点のものです。

令和7（2025）年11月



環境研究総合推進費
Environment Research and Technology Development Fund



独立行政法人
環境再生保全機構
ERCA Environmental Restoration and Conservation Agency

目次

| | |
|--|----|
| 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書 | 1 |
| テーマ情報 | 3 |
| <基本情報> | 3 |
| <研究体制> | 3 |
| <研究経費の実績> | 4 |
| <研究の全体概要図> | 5 |
| 1. 研究成果 | 6 |
| 1. 1. 研究背景 | 6 |
| 1. 2. 研究目的 | 6 |
| 1. 3. 研究目標 | 7 |
| 1. 4. 研究内容・研究結果 | 9 |
| 1. 4. 1. 研究内容 | 9 |
| 1. 4. 2. 研究結果及び考察 | 17 |
| 1. 5. 研究成果及び自己評価 | 43 |
| 1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献 | 43 |
| 1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価 | 45 |
| 1. 6. 研究成果発表状況の概要 | 48 |
| 1. 6. 1. 研究成果発表の件数 | 48 |
| 1. 6. 2. 主要な研究成果発表 | 49 |
| 1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動 | 49 |
| 1. 7. 国際共同研究等の状況 | 49 |
| 1. 8. 研究者略歴 | 50 |
| 2. 研究成果発表の一覧 | 51 |
| (1) 産業財産権 | 51 |
| (2) 論文 | 51 |
| (3) 著書 | 51 |
| (4) 口頭発表・ポスター発表 | 52 |
| (5) 「国民との科学・技術対話」の実施 | 57 |
| (6) マスメディア等への公表・報道等 | 58 |
| (7) 研究成果による受賞 | 58 |
| (8) その他の成果発表 | 59 |
| 権利表示・義務記載 | 59 |

Abstract

テーマ情報
＜基本情報＞

| | |
|----------------|--|
| 研 究 区 分： | 戦略的研究開発プロジェクト |
| 研 究 実 施 期 間： | 2022（令和4）年度～2024（令和6）年度 |
| テ ー マ 番 号： | S2-9-1 |
| 体 系 的 番 号： | JPMEERF22S20910 |
| テ ー マ 名： | 県外最終処分を実現させるための技術システムの開発研究 |
| テ ー マ リ ー ダ ー： | 遠藤 和人 |
| テ ー マ 代 表 機 関： | 国立研究開発法人国立環境研究所 |
| テ ー マ 分 担 機 関： | 名古屋大学、福島工業高等専門学校、北海道大学、東京大学、広島大学、大阪大学、日揮株式会社 |
| テ ー マ 協 力 機 関： | 中間貯蔵・環境安全事業（株） |

注： 研究協力機関は公開の了承があった機関名のみ記載されます。

＜研究体制＞

サブテーマ1「県外最終処分に向けた導入技術システムのシナリオ最適化」

＜サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者＞

| 役割 | 機関名 | 部署名 | 役職名 | 氏名 | 一時参画期間 |
|------|------------|-------------|-------|-------|-------------------|
| リーダー | 国立環境研究所 | 福島地域協働研究拠点 | 室長 | 遠藤和人 | 2022 年 度 ～ 2024年度 |
| 分担者 | 国立環境研究所 | 福島地域協働研究拠点 | フェロー | 山田一夫 | 2022 年 度 ～ 2024年度 |
| 分担者 | 名古屋大学 | 未来材料システム研究所 | 准教授 | 熊谷 純 | 2022 年 度 ～ 2024年度 |
| 分担者 | 国立環境研究所 | 資源循環領域 | 研究員 | 三成映理子 | 2022 年 度 ～ 2024年度 |
| 分担者 | 福島工業高等専門学校 | 都市システム工学科 | 助教 | 三浦拓也 | 2022 年 度 ～ 2024年度 |
| 分担者 | 国立環境研究所 | 福島地域協働研究拠点 | 特別研究員 | 田中悠平 | 2023 年 度 ～ 2024年度 |
| 協力者 | 国立環境研究所 | 福島地域協働研究拠点 | 高度技能員 | 新井裕之 | 2022 年 度 ～ 2024年度 |

注： 研究協力者は公開の了承があった協力者名のみ記載されます。

サブテーマ2「各種安定化体の長期溶出特性の評価」

<サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者>

| 役割 | 機関名 | 部署名 | 役職名 | 氏名 | 一時参画期間 |
|------|-------|-----------|-------|---------|-----------------|
| リーダー | 北海道大学 | 大学院工学研究院 | 准教授 | 東條安匡 | 2022年度～2024年度 |
| 分担者 | 東京大学 | 大学院工学系研究科 | 助教 | 戸田賀奈子 | 2022年度～2024年度 |
| 分担者 | 東京大学 | 大学院工学系研究科 | 教授 | 斉藤拓巳 | 2023年度～2024年度 |
| 協力者 | 北海道大学 | 大学院工学研究院 | 大学院学生 | 岡田早紀 | 2022年4月～2023年3月 |
| 協力者 | 北海道大学 | 大学院工学研究院 | 大学院学生 | 安河内隆仁 | 2023年4月～2025年3月 |
| 協力者 | 北海道大学 | 大学院工学研究院 | 大学院学生 | Hu Yuke | 2023年4月～2024年3月 |

注：研究協力者は公開の了承があった協力者名のみ記載されます。

サブテーマ3「県外最終処分施設に求められる封じ込め性能に関する研究」

<サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者>

| 役割 | 機関名 | 部署名 | 役職名 | 氏名 | 一時参画期間 |
|------|------------|------------|--------------|-------|------------------|
| リーダー | 広島大学 | 先進理工系科学研究科 | 教授 | 半井健一郎 | 2022年度～2024年度 |
| 分担者 | 大阪大学 | 工学研究科 | 教授 | 乾 徹 | 2022年度～2024年度 |
| 分担者 | 八戸工業高等専門学校 | 産業システム工学科 | 教授 | 庭瀬一仁 | 2022年4月～2023年12月 |
| 分担者 | 日揮株式会社 | 原子力プロジェクト部 | プロジェクトマネージャー | 庭瀬一仁 | 2024年4月～2025年3月 |
| | | | | | |
| | | | | | |

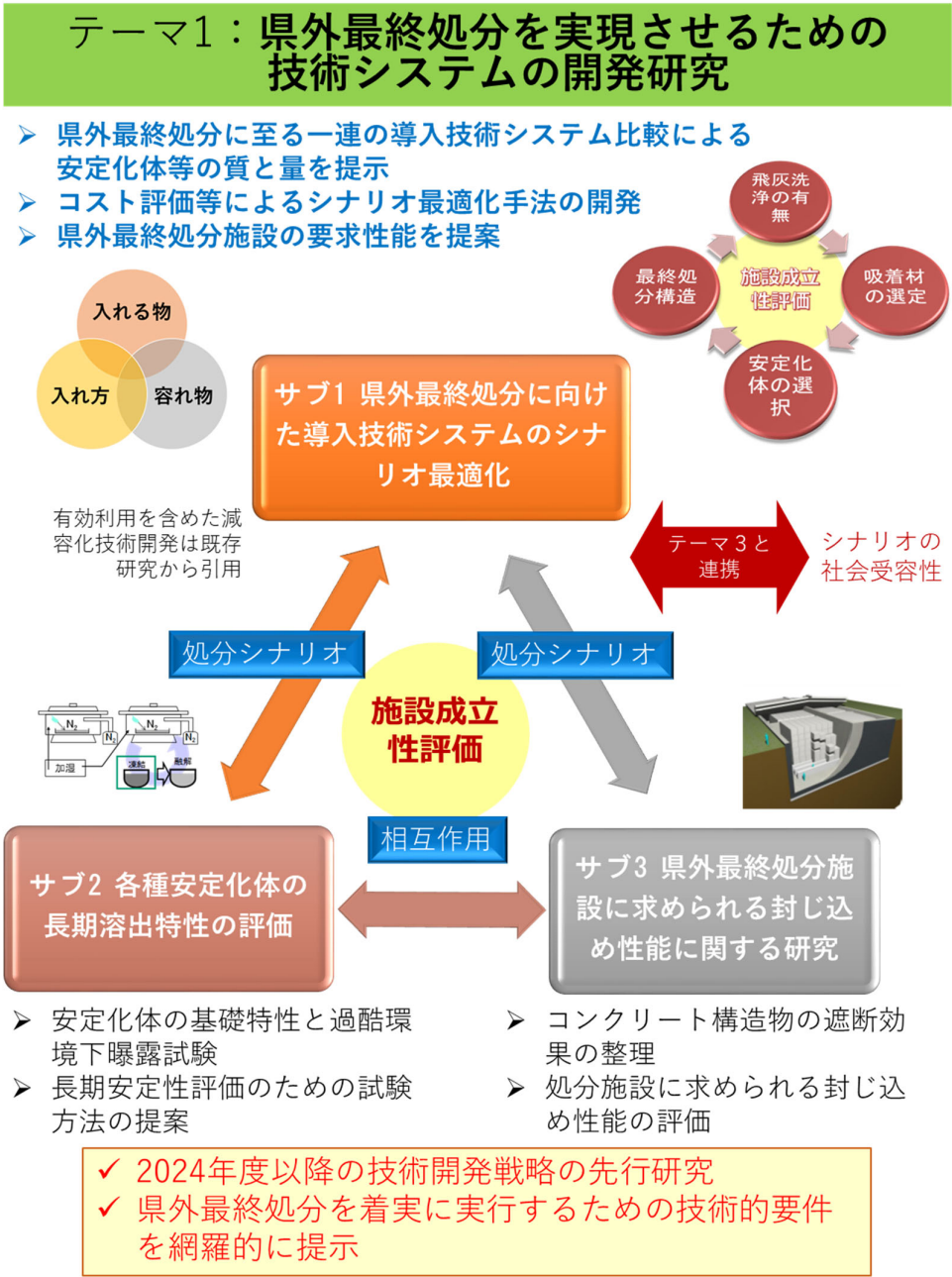
注：研究協力者は公開の了承があった協力者名のみ記載されます。

<研究経費の実績>

| 年度 | 直接経費（円） | 間接経費（円） | 経費合計（円） | 備考（契約上限額） |
|------|------------|------------|-------------|-------------|
| 2022 | 29,001,001 | 8,698,999 | 37,700,000 | 37,700,000 |
| 2023 | 29,001,001 | 8,698,999 | 37,700,000 | 37,700,000 |
| 2024 | 29,001,116 | 8,698,884 | 37,700,000 | 37,700,000 |
| 全期間 | 87,003,118 | 26,096,882 | 113,100,000 | 113,100,000 |

注：環境研究総合推進費の規定する研究経費の支援規模を超えた額は自己充当等によるものです。

<研究の全体概要図>



1. 研究成果

1. 1. 研究背景

県外最終処分に向けた減容化技術は多様である。溶融飛灰を対象とする技術や、除去土壌に対する技術、双方に適用可能なタイプの熱処理技術などがあり、2024年度までに個別技術開発を終了させることが国の戦略目標となっている。それぞれの減容化技術によって発生する濃縮物の特性は、選択する技術によって違いがあり、その特性に合わせた安定化体化、そして、最終処分施設構造への要求性能も異なることになる。したがって、これら個別技術を一体のシステムとして考え、廃棄物や土壌といった対象品目に応じた多岐にわたる導入技術の組合せを比較検証し、導入技術システムを決定することが2024年度以降に必要となる。

2024年度以降、中期的に検討が必要と思われる技術として、安定化体の長期安定性が挙げられる。温度や乾湿等の外的環境による劣化もあり得るが、重要視すべきは、水と接触した際の長期的な溶出性にあると考えられる。判定試験としては告示等に表示される溶出試験方法があるが、最終処分した場合の長期的な影響や、事故時シナリオ等を検証するためには判定試験以外の試験法が必要と考えられる。次に課題となるのは県外最終処分施設構造であり、安定化体からの溶出特性に応じた施設構造が必要となる。現在の特別措置法は、廃棄物の最終処分を放射性セシウム濃度で分類しているが、従来通りの放射性セシウムの溶出性で分類すべきと考えられ、安全性評価（成立性評価）でも溶出性の情報が必要となっている。また、廃棄物処理法の遮断型最終処分場や炉規法の浅地中ピット処分では、漏洩防止のための遮断の効果としてコンクリート構造が求められているが、粘土系遮水材と鉄筋コンクリート構造による排水監視システムの漏洩防止効果や、機能を阻害する安定化体からの浸出水などの情報は十分に整理されていないのが現状である。

1. 2. 研究目的

県外最終処分に向けた減容化技術は多様である。溶融飛灰を対象とする技術や、除去土壌に対する技術、双方に適用可能なタイプの熱処理技術などがあり、2024年度までに個別技術開発を終了させることが国の戦略目標となっている。それぞれの減容化技術によって発生する濃縮物の特性は、選択する技術によって違いがあり、その特性に合わせた安定化体化、そして、最終処分施設構造への要求性能も異なることになる。したがって、これら個別技術を一体のシステムとして考え、廃棄物や土壌といった対象品目に応じた多岐にわたる導入技術の組合せを比較検証し、導入技術システムを決定することが2024年度以降に必要となる。そこで、種々の減容化技術等による量・質的变化を把握し、(1)技術的確からしさ（技術開発の熟度）、(2)経済性（不確実性を考慮）、(3)受容性（最終処分対象物の放射性セシウム濃度、量、処分地、適合法規等）の観点から相互比較できるようにするための研究を実施する。具体的には、可燃性廃棄物の焼却残さと高濃度土壌を対象とし、熱処理の実施／不実施、洗浄・吸着濃縮の実施（複数の濃縮レベル）／不実施、これらに対応した安定化方法の設定、安定化体の放射性セシウム濃度と量を考慮した処分方法の検討、及び、以上を組み合わせた複数シナリオのマテリアルバランスとコスト評価を実施する。

2024年度以降、中期的に検討が必要と思われる技術として、安定化体の長期安定性が挙げられる。温度や乾湿等の外的環境による劣化もあり得るが、重要視すべきは、水と接触した際の長期的な溶出性にあると考えられる。判定試験としては告示等に表示される溶出試験方法があるが、最終処分した場合の長期的な影響や、事故時シナリオ等を検証するためには判定試験以外の試験法が必要と考えられる。そこで、各種安定化体に対して、セシウム捕捉形態、溶出濃度、pH依存性試験、長期溶出試験などの基礎特性を把握する試験を実施する。さらに、過酷環境下曝露試験として、高イオン強度水との接触による溶出、構造的劣化破壊後の溶出、温度影響等の曝露後溶出特性などを把握する。以上の評価研究を通して、最終処分後の長期的な安定性を評価するための試験法について提案する。

次に課題となるのは県外最終処分施設構造であり、安定化体からの溶出特性に応じた施設構造が必要となる。現在の特別措置法は、廃棄物の最終処分を放射性セシウム濃度で分類しているが、最終処分においては従来通りの放射性セシウムの溶出性で分類すべきと考えられ、安全性評価（成立性評価）でも溶出性の情報が必要となっている。また、廃棄物処理法の遮断型最終処分場や炉規法の浅地中ピット処分では、漏洩防止のための遮断の効果としてコンクリート構造が求められているが、粘土系遮水材と鉄筋コンクリート構造による排水監視システムの漏洩防止効果や、機能を阻害する安定化体からの浸出水などの情報は十分に整理されていないのが現状である。そこで、最終処分施設の基本的な機能である封じ込め性能におけるコンクリート構造物の要求性能等の知見を収集する。更に、最終処分施設では、事故対応も考慮しなければならない。フェイルセーフ機能を想定した場合等の、膨潤性粘土（ベントナイト）等を用いた封じ込め性能についても評価し、安定化体の特性を考慮しながら、最終処分施設に求められる要求性能と適用可能技術について取りまとめる。

1. 3. 研究目標

<全体の研究目標>

| | |
|-------|--|
| 研究課題名 | 県外最終処分を実現させるための技術システムの開発研究 |
| 全体目標 | 中間貯蔵施設内やその周辺地域の環境回復に向け、除去土壌や副産物の有効利用や汚染廃棄物等の県外最終処分を着実に実現するため、効率的かつ低コストな技術の組合せを意識した技術システムのシナリオ最適化の考え方を提案する。同時に、国の戦略目標の2024年度以降に必要と考えられる安定化体の長期安定性（溶出性等）評価手法、ならびに県外最終処分施設に求められる封じ込め性能について技術的知見を提示する。 |

<サブテーマ1の研究目標>

| | |
|------------|---|
| サブテーマ1名 | 県外最終処分に向けた導入技術システムのシナリオ最適化 |
| サブテーマ1実施機関 | 国立環境研究所、名古屋大学、福島工業高等専門学校 |
| サブテーマ1目標 | <p>本研究の最終目標は、県外最終処分に向けた減容再生利用技術戦略の戦略目標である2024年以降の研究や技術開発の方向性、県外最終処分の具体的な検討に資する研究成果を提供することである。本申請課題であるサブテーマ1では、そのための処理・処分シナリオを複数提示し、経済性も含めた総合的評価を行うことで処理から処分までを一体とした導入技術の選定シナリオとその考え方を明らかにすることを目標としている。サブテーマ2と3は、それぞれ具体的な県外最終処分を考えるための安定化体（最終処分される廃棄体）の長期安全性評価と、最終処分施設自体の躯体（封じ込め性能等）に関する検討である。シナリオ評価において、どのような安定化体を作製する必要があるのかという要求性能を明らかにすることは、導入される導入技術の選定において重要であり、最終処分施設の構造躯体は、経済性のみならず維持管理要件等にも関係することから、各サブテーマは密接に関係しており、サブテーマ間の連携が必須となっている。なお、サブテーマ1では減容化技術の開発自体は実施しないが、熔融飛灰の減容工程における洗浄・濃縮技術について、吸着材のCs-137に対する分配係数という見掛けの吸着性能ではなく、イオン交換理論を用いることにより、実践的な吸着材管理の考え方についての検討を行うこととする。更に、サブテーマ2では考慮されていない安定化体からの水素ガス発生評価（高濃縮時に放射線分解による水素発生が水素爆発に繋がる恐れ）について、サブテーマ1で研究することとし、その成果をサブテーマ3の処分施設の構造要件へと反映させる。</p> <p>具体的なシナリオ検討の一例を以下に示す。</p> <p>例えば、減容化していない高濃度土壌は放射性Csが安定的に吸着していることから、溶出性（系外への放出性）が小さく、例え10万Bq/kgを超過していたとしても適切な遮蔽を行うことで最終処分できる可能性が高い（制度的制約というよりも安全性評価という観点）。ただし、大きい容量の最終処分施設を整備する必要があり、運搬やコスト、維持管理といった観点で欠点がある。仮に熱処理によって減容化した場合、熱処理飛灰の洗浄・濃縮工程が必要で追加的コストが発生するが、最終処分量は相当に小さくできる可能性があり、最終処分施設の整備は比較的容易になると想定される。このようにコストと最終処分の受け入れやすさとのバランスが減容化戦略において重要であり、テーマ3で検討する県外最終処分に対する社会受容性とも関係する。県外最終処分を全国で1箇所とすることに社会受容性があれば、処理コストがかかっても処分量を最小化した方が円滑な県外最終処分が可能となるが、数億Bq/kgといった超高濃度にまで濃縮した安定化体では受け入れられないことも考えられ</p> |

| | |
|--|---|
| | <p>る。一方、各都道府県に1箇所ずつ整備することの社会受容性が大きい場合、運搬コストと労力を考えれば減容化は必須であるが、処分施設をいくつも整備することを考えると、重厚な処分施設ではない方が現実的といえる。そのためには、減容化率を制御し、安定化体が高濃度にならないようにしつつ、溶出性を極めて低く制御可能な吸着材と安定化工法の選択が求められることになる。このように、社会受容性や最終処分施設構造、安全評価上から求められる溶出性の上限値、そして安定化体の長期安定性と維持管理の考え方によって、導入すべき減容化技術が選択されることになる。以上は一例であるが、既に実施されている熱処理飛灰や、吸着材の選定と安定化工法の組み合わせ、分級後の高濃度土壌（脱水ケーキ）など、減容化工程の全てにおいて種々のシナリオが存在し、かつ二次廃棄物や副次産物が発生する。本サブテーマでは、これら多くの処理・処分シナリオを網羅的に把握・評価し、マスマランスと経済性評価という指標によって、減容化戦略の方向性を決めるための尺度を明らかにしようとするものである。</p> |
|--|---|

<サブテーマ2の研究目標>

| | |
|------------|---|
| サブテーマ2名 | 各種安定化体の長期溶出特性の評価 |
| サブテーマ2実施機関 | 北海道大学、東京大学 |
| サブテーマ2目標 | <p>研究を実施する各年度においての到達目標は次の通り。</p> <p>2022 年度：</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. 安定化体の長期溶出特性評価法（廃棄物（セメント固型化体等）、放射性廃棄物（ガラス固化体等））について網羅的な調査を行い、整理を完了する。 2. 現在、検討されている各種安定化体（①飛灰直接セメント固型化体、②吸着材直接セメント固型化体、③吸着体熱処理残渣セメント固型化体、④吸着体熱処理残渣ジオポリマー固型化体、⑤吸着体熱処理残渣リン酸ガラス化）の作製を完了し、それぞれの安定化体に対して強度試験を実施する。 <p>2023 年度：</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. 前年度に作製した各安定化体について各種溶出試験を実施し、それぞれの基礎的な溶出特性を把握して、各安定化体がCsを捕捉している機構の整理、その捕捉機構に作用してCsの放出を促進する要因等を明確にする。 2. 処分時の環境として想定される範囲で最悪シナリオを設定し、それぞれの安定化体からCsの放出が促進される環境を模擬した溶出試験（過酷環境）を行う。その結果を基に、各安定化体のCs長期溶出を評価するために採用すべき溶出試験条件を安定化体ごとに取りまとめる。 <p>2024 年度：</p> <p>この年度に、環境省の技術開発戦略の1つの目標が完了し、最終処分対象となる安定化体の候補がある程度、明確化する。そのため、2023 年に取りまとめた溶出試験条件をベースに、候補と考えられる安定化体に特化した長期溶出特性評価手法（試験条件、評価指標、長期挙動予測）を提案する。</p> <p>最も重要な目標は、研究終了時点で、実際に処分のために選択される安定化体の長期溶出特性を評価する手法を提案できていることである。</p> |

<サブテーマ3の研究目標>

| | |
|------------|---|
| サブテーマ3名 | 県外最終処分施設に求められる封じ込め性能に関する研究 |
| サブテーマ3実施機関 | 広島大学、大阪大学、八戸工業高等専門学校、日揮株式会社 |
| サブテーマ3目標 | <p>県外最終処分施設に求められる封じ込め性能について技術的知見を提示するため以下の2項目を実施する。</p> <p>（1）既存の処分施設において求められる封じ込め機能およびそれを実現す</p> |

| | |
|--|--|
| | <p>るための施設構造を整理し、県外最終処分施設の構造検討に資する情報を明らかにする。</p> <p>(2) 県外最終処分施設における封じ込め性能の評価を行うため、サブテーマ2から提供される条件を踏まえ、処分施設に用いるコンクリートおよびベントナイト系遮水材の基本物性データを取得し、サブテーマ1で実施予定の安全評価のために提供する。また、サブテーマ1で実施する安全評価の妥当性の検証に活用するため、セメント系材料の浸漬試験を実施し、セシウムなどの浸透状況を実測することで人工バリアの封じ込め性能を明らかにする。</p> |
|--|--|

1. 4. 研究内容・研究結果

1. 4. 1. 研究内容

テーマ1全体の研究課題は「県外最終処分を実現させるための技術システムの開発研究」であり、県外最終処分に向けた減容化戦略を技術的に裏付ける研究として位置付けている。対象となるのは除染廃棄物（主に可燃物）と除去土壌の2種類であるが、除去土壌は放射性セシウム（以下、Cs）の溶出性が極めて小さく、腐敗や溶解もしないため、既に安定していると考えられ、そのままの状態最終処分が可能といえる。ただし、物量が多いため減容化が求められているが技術的な課題はそれほど多くなく、課題としては対象物量を処理できるだけの施設整備と処理に要する時間と考えられる。一方、除染廃棄物については、既に双葉町の2ヶ所の仮設灰処理施設で熔融処理が行われており、熔融飛灰、熔融スラグは中間貯蔵施設内に整備された保管施設で貯蔵中である。熔融飛灰は、溶解性、溶出性も高く、物性によっては潮解する可能性も否定できないことから、安定していると言い難い。特措法の基本方針や環境放射能除染学会（2021）から推察される県外最終処分対象の除去土壌等に関する考え方（案）を表1に示す（成果107を修正）。

表1 文献情報等から推察される県外最終処分対象の除去土壌等に対する考え方（案）

| 種 類 | 濃 度 (Bq/kg) | 物 量 | 再 生 利 用 | 最 終 処 分 |
|-------|-----------------|-----------------------|---------------------------|---|
| 除去土壌 | 8,000以下 | 955万m ³ 程度 | 可能 | そのまま可能 (再生利用したい) |
| | 8,000超 | 348万m ³ 程度 | 熱処理等によって一部が可能 となる可能性あり | そのまま可能 (減容化したい) |
| 熔融飛灰 | 平均20万程度 (推定) | 10万トン (推定) | 困難 | 溶解性、溶出性が大きく 不安定なので安定化処 理が必要 (減容化したい) |
| 熔融スラグ | 8,000以下 | 56万トン (推定) | 可能 | そのまま可能 (再生利用したい) |

今後、最終処分を進めるにあたって必ず安定化もしくは減容化しなければならないのは熔融飛灰であり、減容化技術や安定化方法等、技術導入の種類によって最終処分対象の安定化体（放射性廃棄物分野での最終廃棄体相当）の特性が変化することから、研究対象として熔融飛灰に着目した。

サブテーマ1では、導入技術システムによって変化する安定化体への処理プロセスと最終処分システムに至るまでの道筋をシナリオとして評価した。また、技術的な課題として明らかに残っている熔融飛灰の直接セメント固型化をサブテーマ2で、国が検討を実施していない最大減容化をサブテーマ1で取り扱った。また、平常時には最終処分場の埋立地内で封じ込められている放射性Csであるが、遮水工等の破損等の事故時には埋立地外へと漏洩する可能性があることから、天然バリアである自然地盤の放射性Cs吸着特性についても評価した。放射性Csを濃縮し、高濃度にしていくと放出されるγ線によって水分子が分解されて水素ガスが発生することから、これら水素ガスの発生可能性について実験的な検討も実施した。

サブテーマ2では、導入技術システムによって変化する各種シナリオで想定される安定化体の溶出特性の網羅的な把握を試みた。また、放射性廃棄物処分の観点では比較的短寿命半減期のCs-137ではあるが、濃度が濃くなると特別な維持管理が不要となる8,000 Bq/kgを下回るまでの維持管理期間が長期にわたる可能性がある。そのため、長期的な挙動を保守的な考え方の下で適正に評価するための実験方法についても検討した。

サブテーマ3では、処分場構造に着目し、「遮蔽機能」、「漏出防止機能」、「移動抑制機能」の内、後者2つに着目した検討を実施した。要求されるこれら機能は、サブテーマ2で検討される（長期的な）溶出特性に依存し、シナリオによっては、塩類濃度が高い場合や、重金属類を含んでいる場合もある。そこで、高塩類環境下やカリウム存在下での「低透水性」、「収着性」に着目して検討を進めた。なお、高濃縮された

事故由来放射性物質汚染廃棄物（特定廃棄物相当）の埋立処分と、放射性廃棄物の埋設処分における考え方の違いについても整理した。

1. 4. 1. 1 サブテーマ1 県外最終処分に向けた導入技術システムのシナリオ最適化

サブテーマ1では、処理・処分シナリオを複数提示し、経済性も含めた総合的評価を行うことで処理から処分までを一体とした導入技術の選定シナリオとその考え方を明らかにすることを目標としているため、以下に示すように、シナリオ評価を行うとともに、そのために必要な個別の要素技術にかかわる情報を明らかにした。（1）網羅的に処理・処分シナリオを調査したうえで、特徴的な3シナリオにまとめ、経済性評価と安全性評価を通して、各シナリオの総合評価を行った。個別の要素技術として、（2）熱処理飛灰の洗浄・濃縮処理に用いる吸着材に関する基礎的研究（すなわち、吸着材のCs吸着挙動のイオン交換理論による記述、吸着材の性能評価方法、カラム濃縮の特性、化学共沈法による最大濃縮の検討からなる）、（3）処分時の事故時シナリオの評価に必要な土壌へのCs吸着特性の評価、及び（4）Cs-137の放出するγ線による安定化体からの放射線分解水素ガスに関する基礎評価を実施した。

（1）では、文献調査や環境省の環境省の飛灰洗浄・吸着・安定化技術実証事業（以下、飛灰洗浄等実証事業とする）（環境省、2025）で取得した情報を基に、減容化処理プロセスと導入可能技術、マテリアルバランス等のパラメータを調査して、蓋然性のある処理・処分シナリオを複数作成した。なお、作成したシナリオは、洗浄から濃縮、安定化までの工程、および県外最終処分施設の成立性の観点にも留意して構築した。シナリオに対して関係者間で共通の認識やイメージを共有することを重要視するため、IPCC等におけるシナリオの考え方を参考に、将来的に生じるか否かの定性だけでなく、その可能性や、根拠、一貫性といった定量的な視点も重視してシナリオを描いた。具体的には、全体を二つのステップに分けて実施した。ステップ1では、主要なアウトプットである「シナリオ」と「その論拠」を抽出し、当該シナリオの論拠となる国内外の減容化技術情報を調査し、シナリオを構築した。ステップ2では、ステップ1の調査の過程で得られた減容化技術と安定化技術を組合せることでサブシナリオを含めた網羅的なシナリオ構築を行った。具体的には濃縮度を変えた三つのシナリオを構築し、コスト等の経済的な影響と県外最終処分を考えるための安定化体（放射性廃棄物分野における最終廃棄体相当）の長期安全性評価について検討した。安全性評価では、それぞれのシナリオに対応するように処分システムおよびパラメータを設定した上で、処分場内の放射性Csの挙動の試算を行った。様々な環境条件下での安全性を確認するため、解析において用いたパラメータは文献から根拠を参照して設定し、パラメトリックに溶出率や人工バリア素材を変化させて浸出水の濃度の時間変化を評価した。さらに、減容技術の処理・処分プロセスにおけるCO₂排出原単位を調査・整理し、各シナリオにおけるCO₂排出量の試算も行った。排出原単位の調査においては、調査対象技術について、当該技術を保有する事業者に対するヒアリング結果を基に、原料1トンあたりの処理・処分プロセスにおける活動量（プロセスへの投入量及びプロセスからの産出量）を設定した。ヒアリングにより詳細なデータが入手できなかった場合は、文献調査結果を基に、類似した処理・処分プロセスにおける値で代替し、活動量に温室効果ガス排出係数を乗じて足し合わせることで、当該技術の処理・処分プロセスにおけるCO₂排出原単位の算出を行った。

（2）では、シナリオ評価において濃縮度を設定するために、Cs吸着材のCs吸着の度合いを把握するために必要な研究を行った。従来、多く用いられてきたCsの溶液と吸着材の間の分配係数は材料定数ではなく、飛灰洗浄液の化学組成により変化し、吸着材の吸着率が飽和に近づく和使用できないため、イオン交換理論による吸着性能の記載を行う。分配係数では記述できないが、陽イオン交換容量（CEC）とCs選択係数により、共存イオン効果を定量的に説明できることを利用し、吸着に影響する共存イオンの定量的評価と最大濃縮に及ぼす安定Csの影響評価を理論計算により行った。飛灰洗浄液からCsをカラム吸着するが、その目的が減容化、すなわちできるだけ吸着量を増やすことであり、その最大吸着量を評価する方法を提案し、中間貯蔵・環境安全事業株式会社（以下、JESCOとする）の実証事業で用いられた吸着材と同等と考えられる材料でその性能を評価した。評価は、吸着材の基礎物性評価を行い、理論計算で最大吸着量を予測し、実験によりその予測を検証した。この過程で、使用した吸着材の吸着速度が遅く、カラム吸着には多大な時間を要することが分かった。この点を改善し、最大濃縮するため、フェロシアン化遷移金属塩を飛灰洗浄液中で合成することで高度にCs選択性を発現できることを認識したので、この化学共沈法を2回繰り返すことで、短時間に吸着材のCECの半分以上までにCsを高濃縮できる可能性について検討した。飛灰洗浄・吸着濃縮に関する基礎研究の結果、飛灰洗浄液の化学組成により濃縮度が大きく変化することが判明したが、仮設灰処理施設から発生する溶融飛灰の化学組成や溶出特性は公開されていない。環境省とJESCOの協力を得て、環境省の飛灰洗浄等実証事業（環境省、2025）で取得された多数の飛灰洗浄液の化学組成に関するデータを閲覧する機会を得、その情報を本研究の一部に活用した。飛灰洗浄等実証事業では、1年以上にわたる多数のロットの溶融飛灰の化学組成と溶出特性を調査し、飛灰洗浄液を3種類のパイロットスケールの洗浄・濃縮と安定化の工程が検討された。本研究では、この情報を参照しつつ、この実証事業で使用された吸着材の同等品も使用し、吸着工程をも参照した。

（3）では、県外最終処分場を設置する自然地層（天然バリア）をフェイルセーフの一部として機能させ

ることを想定し、そのCsの移行抑制性能を評価することを目的としている。Cs吸着定数の文献値はJAEA-SDB Systemを用いて整理し、実土壌のCs吸脱着挙動の把握は室内試験より検討した。土壌は、入手が容易な、いわき市の非汚染土5種（畑・森林・校庭・水田・掘削）を使用した。本研究の土壌は、有機物量の含有量が異なること、成因が異なる土質であることを基準に選定した。なお、各土壌は地表面から1 m深さまでの範囲から採取し、四分法による均質化、2 mm以下の粒度調整後に実験試料として使用した。土壌に対するCs吸着速度≡Cs脱離速度の場合を平衡吸着（事故時の漏洩水の速度が小さい）、等しくならない場合を非平衡吸着（事故時の漏洩水の速度が大きい）として、バッチおよびカラム吸着試験にて評価した。バッチ吸着試験では、PP容器に0.1M CsCl溶液100 mLと炉乾燥させた試料1 gを入れ、24時間水平振とうした。0.45 μmメンブレンフィルターにてろ過後、MP-AESを用いてろ液のCs濃度を測定し、Cs分配係数を算出した。カラム試験では、内径5 cm、高さ1.02 cm、体積20 cm³の亚克力製カラムに乾燥試料を厚さ1.02 cmになるように締固めて充填した。カラム内を純水で満たして24時間静置後、飽和条件下で試験を開始した。送液ポンプにてカラム下端より0.1M CsCl溶液を7.48 mL/min（ダルシー流速 6.4×10^{-3} cm/s、SV=22）または30 mL/min（ 2.5×10^{-2} cm/s、SV=90）で通水させ、カラム上部から流出水を経時的に採取した。以降の操作はバッチ吸着試験と同様である。また、カリウム（K）によるCs吸着阻害を確認するために、Cs：Kの濃度比1:1、1:10溶液（Cs = 0.1 M）を7.48 mL/minで通水させた。

（4）では、Cs-137の放出するγ線による安定化体からの放射線分解水素ガス生成収率（ G_{H_2} ：吸収エネルギー100 eVあたりの生成H₂分子数）を見積もり、最終処分場における水素ガス爆発を回避する方策を見出すことを目標に行うものである。液体水や水蒸気の放射線分解については数多くの研究例がある一方で、氷を含めて固体の水（氷和水）のそれについてはあまり研究例がないため、純無機氷和水物の放射線分解水素発生挙動を調べることから研究を開始した。測定は、Co-60からのγ線を試料に照射し、試験体外に放出されるH₂の積算収率をmicroGC(Varian CP-4900)により分析した。放射線照射による水素ガス発生は G_{H_2} で評価されるが、一般に、セメント硬化体からの、硬化体内の自由水量に依存し、化学結合水はほとんど寄与しないと報告されてきた。本研究では、熔融飛灰などを高炉セメントやジオポリマーで固型化することも想定しているため、これらの材料条件に加え、放射線照射による温度上昇も考慮し、25℃から90℃において実験を行った。硬化体内の自由水の影響を除くため、試料は封緘養生し自由水が含まれるものと、あらかじめ105℃で24時間乾燥し、自由水を除去したものを準備した。評価は標準的には4週間まで、最大240日まで継続した。研究計画に従い、第一段階として、結晶水の数異なる石膏ほかの含水結晶、混晶であるセメントペースト硬化体を構成する4つの結晶、特にセメントペースト硬化体の約60 wt%強を占めるC-S-H（カルシウムケイ酸水和物）の評価を行った。次に、高炉セメントペースト硬化体、ジオポリマー、それらに熔融飛灰を混入させて評価した。最後に、ポリマーをコンクリートに含浸させ、物質浸透抵抗性を高めるポリマー含浸コンクリートを想定し、高炉セメントペースト硬化体にポリマーを含浸させた試料を評価した。

1. 4. 1. 2 サブテーマ2 各種安定化体の長期溶出特性の評価

本サブテーマでは、中間貯蔵施設で行われている減容化熱処理から発生する飛灰の最終処分に向けて様々な技術開発が進められている安定化体（固型化体）からのCsの長期溶出特性を検討対象とした。検討事項を図1に示す。固型化体は、飛灰を直接セメントもしくはジオポリマーで固型化する飛灰直接固型化体、飛灰洗浄を行った洗浄液からCsをフェロシアン化銅を用いて吸着回収し、その吸着体を熱分解した残渣を固型化する固型化体、そして、同様に飛灰を洗浄して一旦プルシアンブルーでCsを吸着し、そのプルシアンブルーCs吸着体のアルカリ分解液からゼオライトによってCsを再度吸着したCs吸着体から作製される固型化体や焼結体である。図中右欄に各固型化体に対して実施した溶出試験等の検討事項を示す。

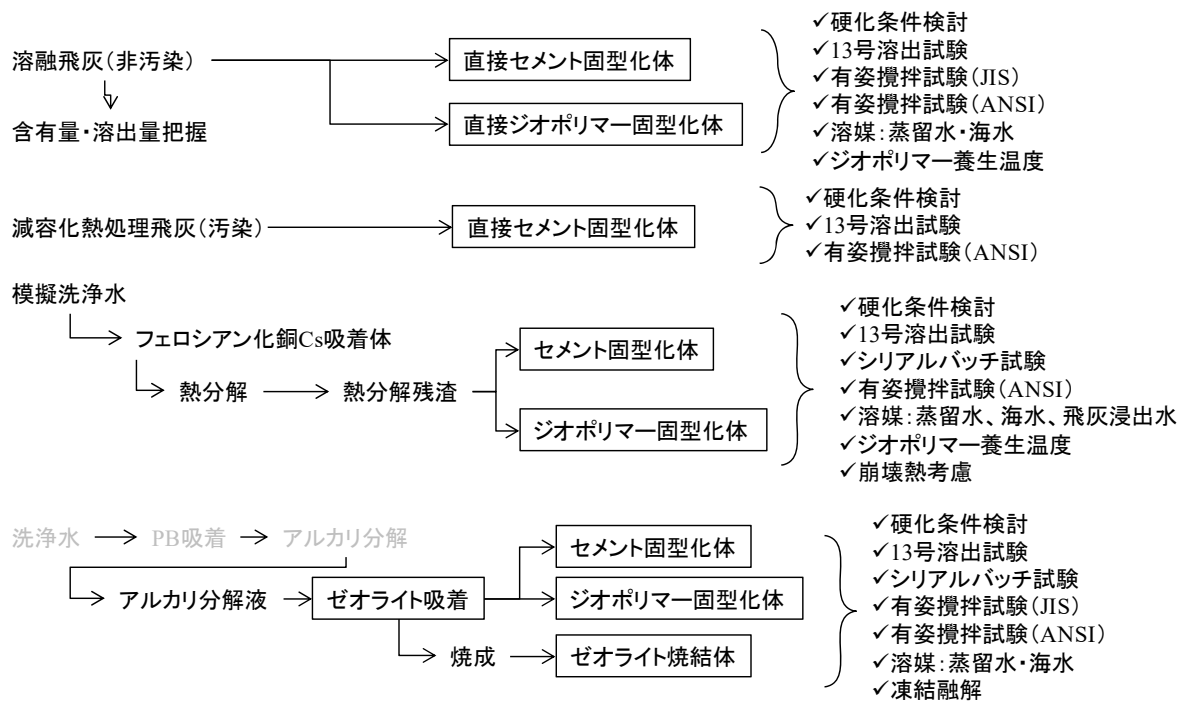


図1 サブテーマ2で対象とした安定化体と検討事項

以降では、各固型化体に対して実施した検討をそれぞれ記述する。

1) 飛灰直接固型化体の作製と溶出試験

中間貯蔵施設で保管される実汚染飛灰は入手が困難であることから、一般廃棄物溶融施設の溶融飛灰を利用した。本溶融飛灰はセメントの硬化阻害成分であるZn、Pb、Pを含んでいたことから、通常の配合では硬化しなかった。そのため、硬化阻害回避の方策をはじめに検討した。水セメント比を0.6として、減水剤や硬化促進剤、さらに飛灰添加率を様々に変化させて、硬化する条件を探った。さらに固型化体には打設時に十分な流動性があること、一軸圧縮強度が0.98MPa以上であることが要求されることから、この要件を充足する配合を検討した。その結果、セメント固型化体の配合として、水セメント比0.6、飛灰セメント比1.0、硬化促進剤添加率0.05（対セメント比）、減水剤0.002（対セメント比）により、十分な硬化が可能であり、上記した要件も充足することを確認した。なお硬化促進剤にはアルミン酸Naを使用した。本配合で各材料を混練し、内径2cm、高さ4cmのPTFEチューブに打設し、セメント固型化体を得た。

ジオポリマー固型化体も打設時の流動性と一軸圧縮強度を充足する配合を様々に検討した結果、アルカリ溶液：メタカオリン：飛灰＝1：0.5：0.6の条件で固型化体の要件を満たすことを確認し、セメント固型化体と同サイズのPTFEチューブに打設してジオポリマー固型化体を複数作製した。なお、ジオポリマーからのCs溶出は養生温度の影響を受けることから、養生温度を30℃、60℃、105℃とした。

各固型化体は図2に示す装置に浸漬して有姿攪拌試験を行った。試験はANSI/ANS-16.1に準拠した方法とし、溶媒交換型で行った。溶媒交換時に検液を採取し、0.45μmメンブレンフィルターでろ過後、グラフアイト原子吸光分析装置(Hitachi ZA3700)でCs濃度を測定した。なお溶媒には蒸留水の他に海水溶媒（人工海水）も使用した。海水の高イオン強度がジオポリマー固型化体からのCs溶出に影響すると考えたからである。なお、本検討では非汚染の溶融飛灰を用いたが、環境省・JESCOの協力を得ることができたので、中間貯蔵施設で保管される実汚染灰（約50万 Bq/kg）についても同施設内で固型化体を作製し、有姿攪拌試験を行った。

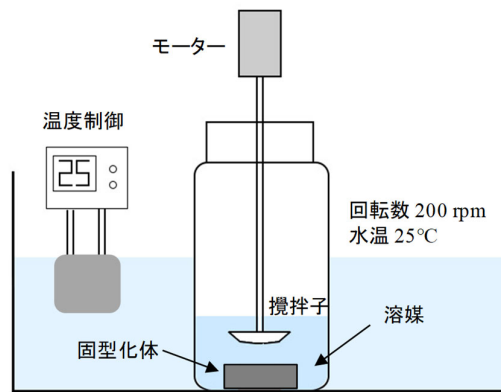


図2 有姿攪拌溶出試験に用いた実験系

2) フェロシアン化銅Cs吸着を介した固型化体の作製と溶出試験

フェロシアン化銅（CuFeCN）によるCs吸着体の作製は、既報（市川ら、2020）を参考に模擬飛灰洗浄液を使用した。濃度はNa-3 mol/L、K-0.9 mol/L、Cs-0.02 mol/Lとなるように塩化物を用いて調整した。この模擬飛灰洗浄液にフェロシアン化銅（CuFeCN）を投入してCsを吸着させた。約4時間でCsの吸着量は飽和に達し、平均の吸着量は71.9 g-Cs/kg-CuFeCNとなった。次に、このCsを吸着したフェロシアン化銅を熱分解処理した。フェロシアン化銅のままで強アルカリのセメントやジオポリマーに接触させると分解してしまうからである。フェロシアン化銅Cs吸着体を燃焼ボートに入れ、電気炉内の燃焼管に挿入して、送気しながら380℃で2時間加熱して熱分解残渣を得た。

次に本熱分解残渣のセメントもしくはジオポリマー固型化体を作製した。配合の検討は、セメント固型化体と同様に、流動性と一軸圧縮強度の要件の点から行い、セメント固型化体は、水セメント比0.6で作製したセメントペーストに30%の割合で熱分解残渣を混合して作製し、ジオポリマー固型化体は、水ガラスとメタカオリンを6:4で混合したペーストに65%の割合で熱分解残渣を添加して作製した。各混練物は、内径2cm、高さ4cmのPTFEチューブに打設した。

作製した固型化体を対象に、告示13号溶出試験、シリアルバッチ試験、ANSI/ANS-16.1に準拠した有姿攪拌試験を行った。有姿攪拌試験は、図2の実験系で行った。また、溶媒には、蒸留水、人工海水、模擬飛灰溶出液の3種を使用した。また、フェロシアン化銅を介して作製される固型化体は放射能が数億Bq/kgになると報告されていることから、崩壊熱を考慮した検討も行った。崩壊熱を再現するために固型化体内部にヒーターを埋め込み、90℃に加熱した状態で有姿攪拌試験を実施した。

3) ゼオライトCs吸着体を介した固型化体の作製と溶出試験

ゼオライトCs吸着体を介した固型化体については実証事業で検討が行われている。図1に示した通り、灰洗浄水中のCsをプルシアンブルーにより吸着回収し、そのプルシアンブルーをアルカリ分解、アルカリ分解液中のCsをゼオライトで吸着回収するという流れである。本研究では、実証事業の報告書から、中和後アルカリ分解液のイオン濃度は、Cs=5.1 mg/L、Na=10.58 mg/L、K=100 mg/Lと算出されたが、効率化のために濃度は30倍濃縮した。このアルカリ分解液にゼオライト（モルデナイト）を投入し、Csを吸着させた。ゼオライトCs吸着体のCs含有量は760 mg/kgとなった。このゼオライトCs吸着体を1000℃で30分間加熱することで焼結体を作製した。また、ゼオライトCs吸着体からセメント固型化体、ジオポリマー固型化体を作製した。本固型化体も流動性と一軸圧縮強度の点から配合を検討した。結果的にセメント固型化体の配合は、水セメント比0.6、Cs吸着ゼオライト添加率40%とし、ジオポリマー固型化体は、水ガラス、メタカオリン、Cs吸着ゼオライトの比を1:0.6:0.7として作製した。いずれも内径2 cm、高さ4 cmのPTFEチューブに打設した。

これらの固型化体と粒状のCs吸着ゼオライトと焼結体に対して、告示13号溶出試験、シリアルバッチ試験、ANSI/ANS-16.1に準拠した有姿攪拌試験を行った。有姿攪拌試験に関しては過酷環境として溶媒を2種（蒸留水、人工海水）使用したほか、固型化体の物理的崩壊を想定して凍結融解のサイクルを70回固型化体に与えたものも実験の対象とした。

4) 有姿攪拌溶出試験結果に基づく拡散係数の決定と長期溶出予測

固型化体からの溶出は拡散律速であるとされ、累積溶出率は、 $\sum A_n/A_0 = 2(S/V)\sqrt{D_a/\pi}\sqrt{t}$ と表現される。ここで、 A_n : n回目の溶出量 (mg/kg)、 A_0 : 試料中含有量 (mg/kg)、 S : 試料表面積 (m^2)、 V : 試料体積 (m^3)、 D_a : 見かけの拡散係数 (m^2/d) である。すなわち、累積溶出率は時間 ($t(\text{day})$)の平方根に比例

する。この関係から各固型化体の有姿攪拌試験の累積溶出率を時間の平方根に対してプロットし、拡散係数を決定した。また、円柱体に対する拡散方程式を解析的に解き、得られた累積溶出率の関数から、固型化体からのCs溶出を予測する数値計算を行った。

1. 4. 1. 3 サブテーマ3 県外最終処分施設に求められる封じ込め性能に関する研究

(1) 既存の処分施設の構造と封じ込め機能に関する調査

既存の処分施設（遮断型処分場と低レベル放射性廃棄物処分施設）において求められる封じ込め機能およびそれを実現するための施設構造を整理し、県外最終処分施設の構造検討に資する情報を明らかにするため、既存の文献調査および関係者へのヒアリングを行った。

(2) バリア材料の基礎物性データの取得とセシウム浸透に関する室内試験

県外最終処分施設における封じ込め性能の評価を行うため、処分施設に用いるセメント系材料およびベントナイト系遮水材の基本物性データを取得した。また、人工バリアの封じ込め性能を明らかにするため、セメント系材料の浸漬試験を実施し、セシウムなどの浸透状況を実測した。具体的には、1) セメント系材料の基礎物性試験、2) ベントナイト系材料の基礎物性試験、3) セシウムの浸透試験を行った。それぞれの試験概要について、以下にて説明する。



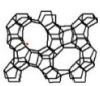
1) コンクリートの基礎物性試験

本試験では、高吸着性をバリア性能に積極的に活用するセメント系材料の実現性を検討するために、以下に着目して材料を設計した。

- ① セメント固化における各種ゼオライトの混合率とフレッシュ性状及び力学特性の関係
- ② 吸着性の高いゼオライトのセメント固化に係る配合設計
- ③ 人工バリア材として適用性を確認したセメント系材料固化試料の分配係数

本試験で使用した各種ゼオライトの物性を表2に示す。ゼオライトは固有の構造により0.2～1.0nmに相当する分子径よりも小さな細孔を有している。また、イオン交換及び化学反応による細孔制御により、細孔内に入った分子を細孔によるふるいの作用及びイオン交換性により、吸着することが可能である。

表2 各種ゼオライトの諸物性(高坂、1974、堀岡、1968)

| | MM | MF | CY |
|--------------------------|---|---|---|
| 産地 | 宮城 | 福島 | 山形 |
| 材料種 | モルデナイト | モルデナイト | クリノプチロライト |
| 粒径(mm) | 0.5以下 | 0.8以下 | 0.5以下 |
| 乾燥密度(g/cm ³) | 0.649 | 0.677 | 0.638 |
| 吸水率(%) | 37.9 | 40.0 | 39.0 |
| 陽イオン交換容量 (meq/100g) | 120～150 | 160～190 | 178 |
| 構造 |  |  |  |

各種ゼオライトを使用し、作製したモルタルのセシウムに関する吸着特性は、MFを使用した配合が優れていることから、MFを使用した配合についての検討を進めた。ここで、MFの配合は流動性が良好ではないことから水セメント比を上げた配合や、ゼオライト混合率を増やした場合について配合を設計した。MF混合の配合表を表3に示す。これらの配合について、水中養生にて養生期間7日、28日の供試体について各試験を行った。

表3 MF混合の配合表

| | ZV (%) | W/C (%) | Unit Contents (kg/m ³) | | | | |
|------------|-----------|------------|------------------------------------|-----|-----|-----|-----|
| | | | W | C | Z | SP | WZ |
| ZV50_W/C40 | 50 | 40 | 279 | 698 | 339 | 7.0 | 136 |
| ZV50_W/C50 | 50 | 50 | 306 | 612 | 339 | 6.1 | 136 |
| ZV50_W/C60 | 50 | 60 | 327 | 546 | 339 | 5.5 | 136 |
| ZV60_W/C40 | 60 | 40 | 223 | 558 | 406 | 5.6 | 163 |
| ZV60_W/C50 | 60 | 50 | 245 | 490 | 406 | 4.9 | 163 |
| ZV60_W/C60 | 60 | 60 | 262 | 436 | 406 | 4.4 | 163 |
| ZV70_W/C40 | 70 | 40 | 167 | 419 | 474 | 4.2 | 190 |
| ZV70_W/C50 | 70 | 50 | 184 | 367 | 474 | 3.7 | 190 |
| ZV70_W/C60 | 70 | 60 | 196 | 327 | 474 | 3.3 | 190 |

ZV:ゼオライト混合率, W/C:水セメント比, W:水, C:普通ポルトランドセメント, Z:ゼオライト, WZ:ゼオライトの吸水率, SP:高性能AE減水剤

2) ベントナイト系材料の基礎物性試験

熱処理飛灰安定化体の最終処分施設においては、設備内への水の浸入を抑制する機能、および低透水性や放射性物質の収着性による移行抑制機能を期待して、覆土や充填材等の人工バリアとしてベントナイト混合土の適用が見込まれる。廃棄体から生じる浸出水には放射性Csの他にも陽イオンや安定Csが非常に高濃度で含まれる可能性が指摘されており(成果1)、これらのイオンはベントナイト混合土の遮水性やCsの収着性に悪影響を及ぼすことが知られている(Inui, 2016)。本研究ではCa²⁺イオンやK⁺イオンの影響を考慮したベントナイトのCs収着性能を把握することを目的として、高濃度でCa²⁺イオンとK⁺イオンが共存する条件下でNa型ベントナイト、Ca型ベントナイトを対象にバッチ収着試験を実施し、Cs収着性能への影響を評価した。さらには、ベントナイトによるCs収着がイオン交換反応による収着が支配的であると仮定し、イオン交換理論を適用することによって、Ca²⁺イオンとK⁺イオンがある濃度で共存する条件下でのCs分配係数の予測可能性を、バッチ収着試験で得られた分配係数の実測値と比較、検討した。

高濃度カチオンによるCs収着性能の影響を調べるため、バッチ収着試験の供与液として、純水、Ca: 0.25 mol/L + K: 0.5 mol/L溶液、Ca: 0.5 mol/L + K: 1.0 mol/L溶液に所定の初期濃度でCs (CsCl) を溶解させたものを用い、3成分系でのバッチ収着試験を実施した。液固比は250ないし500で実施し、Cs初期濃度は、液固比250の場合が1 mg/L、10 mg/L、100 mg/L、500 mg/L、液固比500の場合は1,250 mg/L、1,500 mg/L、1,750 mg/L、2,000 mg/Lに設定した。所定量のベントナイトと供与液を容器に入れ、24時間に渡って200 回/分の速度で水平振とうした後15分間5,000 rpmの速度での遠心分離による固液分離および孔径0.20 μmのシリンジフィルタを用いたろ過処理を行い検液とした。検液中のCs濃度は電気加熱式原子吸光分光光度計を用いて測定した。

本実験において、ベントナイトはバッチ収着試験で用いたベントナイトと同様のNa型ベントナイト及びCa型ベントナイトを用いた。ベントナイト混合土の母材となる土質材料としては6号珪砂を用いた。供試体の配合、作製方法は既往研究(原子力発電環境整備機構, 2022)を参照し、表4に示す仕様で供試体を作製した。

表4 ベントナイト混合土の供試体の仕様

| ベントナイト | ベントナイト混合率 C _B (%) | 最適含水比(%) | 最大乾燥密度(Mg/m ³) |
|--------|------------------------------|----------|----------------------------|
| Na型 | 10 | 14.0 | 1.75 |
| | 20 | 12.5 | 1.85 |
| Ca型 | 10 | 14.0 | 1.71 |
| | 20 | 13.0 | 1.84 |

次にカラム試験の流入液の組成を述べる。高濃度塩水の影響によるCs収着性能及びベントナイト混合土の遮水性能を調べるため、カラム試験の流入液としては、①蒸留水、②Ca:0.25 mol/L、K:0.5 mol/L溶解させた溶液の2種類を用いた(表5)。これらは比較評価が容易になるよう、2.1に示したバッチ収着試験の供与液と同様の条件としている。Csの初期濃度は1 mg/Lに設定した。

表5 カラム試験に用いた流入液の組成

| 流入液 | 化学物質濃度 | | |
|-------|--------------|-------------|-------------|
| | Ca濃度 (mol/L) | K濃度 (mol/L) | Cs濃度 (mg/L) |
| 蒸留水 | 0 | 0 | 0 |
| 高濃度塩水 | 0.25 | 0.5 | 1 |

3) セシウムの浸透試験 (成果71)

本試験では分析精度向上のため、骨材を用いずにセメントペーストのみを用いて試験を実施した。表6に使用材料を示す。セメント種類がCsの浸透に及ぼす影響を調査するため、普通ポルトランドセメントのみを用いた供試体(OPC)と普通ポルトランドセメントの50wt%を高炉スラグ微粉末で置換した混合セメント(高炉セメントB種相当)を用いた供試体(B50)の2種類を用意した。さらに、セメントペーストに混合する粉体そのもののCsの吸着性能が、ペースト中のCsの移動に与える影響を評価するため、Csの吸着性能が高いとされる岩石(福島県阿武隈川砂利)を粉末化した石粉をOPCに10%置換(内割)した供試体も作製した。水結合材比は実務で一般的であるとされるW/B=0.50とし、水は水道水を使用した。

表6 使用材料の化学成分

| | 化 学 成 分 (%) | | | | | | | | | | | | |
|--------------------------------|-------------|------------------|--------------------------------|--------------------------------|-------|------|-----------------|-------------------|------------------|-------------------|-------------------------------|------|-----------------|
| | ig-loss | SiO ₂ | Al ₂ O ₃ | Fe ₂ O ₃ | CaO | MgO | SO ₃ | Na ₂ O | K ₂ O | Ti ₂ O | P ₂ O ₅ | MnO | Cl ⁻ |
| 普通ポルトランドセメント (太平洋セメント株式会社製) | 2.39 | 20 | 5.1 | 3.01 | 65.08 | 1.48 | 2.07 | 0.18 | 0.34 | 0 | 0 | 0 | 0.008 |
| 高炉スラグ微粉末 (セッコウあり) | 0.32 | 32.27 | 13.95 | 0.43 | 42.81 | 6.12 | 2.01 | 0.11 | 0.29 | 0.59 | 0.01 | 0.20 | 0 |

放射性物質汚染廃棄物中のCsは外部に溶出しないう封じ込められるため、実際の処分施設から万が一溶出しても、その濃度は極めて低いと考えられる。特措法においては事業所及び最終処分場の周辺の公共の水域の水中の濃度限度は90 Bq/kg (2.0×10^{-12} mol/L) 以下に抑えることが適当とされている。一方で、極めて低い濃度では使用する原子吸光光度計の測定精度が十分ではないため、本研究では、測定可能な範囲で既往の研究で使用された濃度の溶液を参考に試験を行う。既往の研究ではCsは放射性Cs-137と安定同位体Cs-133が使用され、研究によって異なるが、安定同位体と放射性同位体は含まれる中性子の数が異なり、質量が異なるものの、化学的性質は同様であることから、本試験では安全上の観点から放射性Csの安定同位体であるCs-133を使用することとした。既往の研究での検討を踏まえ、本研究では比較的高い濃度としてCsCl (Cs-133) 濃度0.1mol/Lとして浸漬試験を行うこととした。このCs濃度に対して、数千、数万倍のKCl溶液は飽和により溶解しないため作製できない。そのため、KClが飽和しない範囲で高い濃度、かつ、共存塩類の種類による比較のためCaCl₂と比較することができる濃度とするため20wt%に設定した。CaCl₂濃度については、0、10、20、30%と4種類用意し、劣化や物質移動抵抗性の変化がCsの浸透挙動へ与える影響を評価することとした。以上を踏まえ、浸漬試験に使用した溶液種類とその濃度を表7に示す。

表7 浸漬試験に使用した溶液種類とその濃度

| 浸漬溶液 | | 濃度 | | |
|------|----------------------------|-------|-------------------|-----|
| | | CsCl | CaCl ₂ | KCl |
| | | mol/L | wt% | |
| 溶液1 | CsCl 共存塩 0% | 0.1 | 0 | 0 |
| 溶液2 | CsCl+CaCl ₂ 10% | | 10 | 0 |
| 溶液3 | CsCl+CaCl ₂ 20% | | 20 | 0 |
| 溶液4 | CsCl+CaCl ₂ 30% | | 30 | 0 |
| 溶液5 | CsCl+KCl 20% | | 0 | 20 |

濃度プロファイルの測定は、粉末試料から準備した溶液の濃度を原子吸光分光光度計により測定する方法と固体試料の切断面の元素濃度を電子線マイクロアナライザーによって測定する方法の2種類を用いた。

粉末試料は、卓上フライス盤によって供試体を切削して採取した。切削する間隔は、表層における浸透挙動を細かく分析するため、浸透面から0~6 mmでは1.5 mm間隔、それより内部では5 mm間隔とした(ただし、一部試料では浸透面からすべて5 mm間隔で採取した)。その後、開き150 μmのふるいを通させ、浸漬試験用粉末試料とした。作製した粉末試料からJIS A 1154 (硬化コンクリート中に含まれる塩化物イオンの試験方法)を参考にして、以下の手順にて粉末試料内のCs全量を抽出した。まず、ビーカーに粉末試料1 gを入れ、2 mol/L硝酸を20 ml加える。激しい反応が終わったらビーカーを時計皿で覆い、ビーカーを95℃に熱して5分

間煮沸する。その後、煮沸した後常温まで冷まし、0.5 μmメンブレンフィルターを用いて吸引ろ過を行い、最後に、ろ液に対して純水を加え、100 mlに定量する。このようにして準備した溶液について、原子吸光分光光度計を用いてCs濃度測定を行った。測定条件は、電流16 mA、波長852.1 nm、スリット幅1.0 nm、点灯モードBGC-D2、バーナ高さ7 mm、バーナ角度0°、燃焼ガス種類Air-C₂H₂（アセチレンガス）、燃焼ガス流量1.8 L/min、助燃ガス種類Air（空気）とした。

1. 4. 2. 研究結果及び考察

1. 4. 2. 1 サブテーマ1

(1) 処理・処分シナリオの構築

溶融飛灰を対象に、減容化するか否か、どのように減容化（濃縮）するか、濃縮した廃棄物をどのように安定化させるか、という点に着目し、国内外の減容化技術情報を調査し、基本的な処理フローを設定した上で、技術導入の組合せを考慮したシナリオを構築した。仮設灰処理施設から将来的に排出される溶融飛灰量についての公表値はないため、文献値（環境放射能除染学会、2021）から数字を丸めて10万トンと設定した。

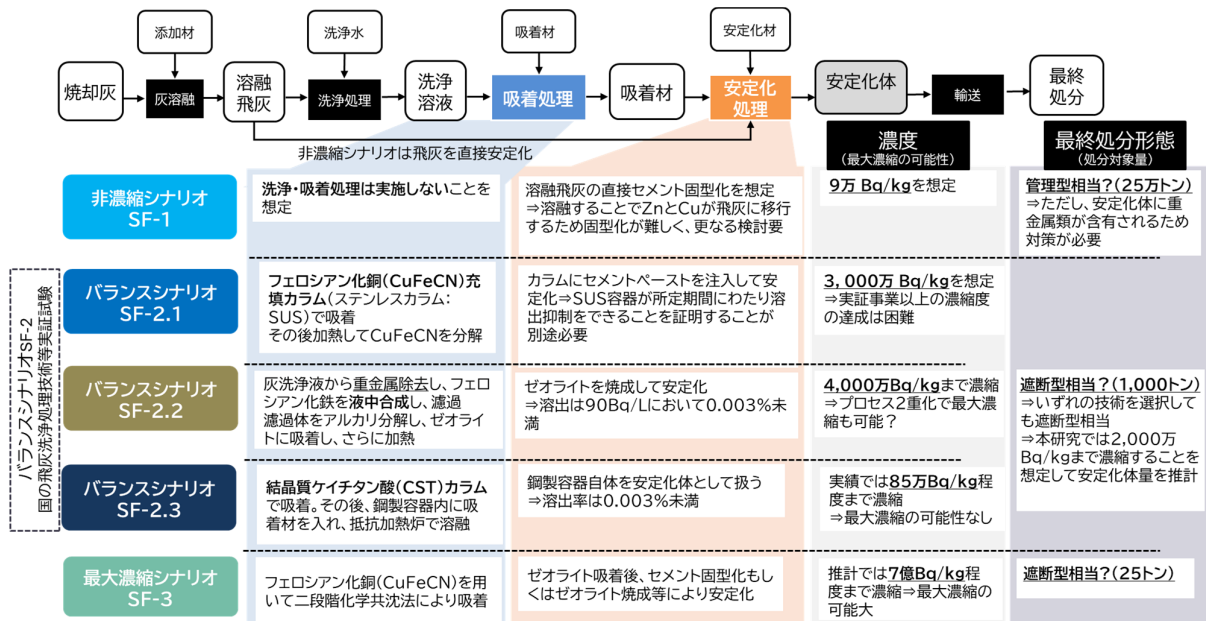


図3 溶融飛灰シナリオの処理フローとシナリオ概要

溶融飛灰シナリオの処理フローとシナリオの概要を図3に示す。非濃縮シナリオ（SF-1）は、減容化しないシナリオであるが、安定化は必要のため安定化処理として溶融飛灰の直接セメント固型化を実施する想定としている。焼却飛灰（溶融飛灰ではなく焼却炉から排出される飛灰）のセメント固型化は既存技術として確立している（大山、2020；環境省、2024b；杉橋ら、2015）とした上で設定したシナリオである。ただし、焼却飛灰と溶融飛灰の化学組成が異なることから、これまでと同様の配合等では固型化が困難であるところは技術的な課題であり、それについてはサブテーマ2で技術的な検討を行った。バランスシナリオ（SF-2）では、溶融飛灰を水で洗淨し、溶出してきた放射性セシウムを選択性のある吸着材等（高橋ら、2016；前原ら、2017）で吸着するか、液中合成法（西崎ら、2020）によって沈殿させ、放射性セシウムを濃縮して減容化する方法である。吸着材となるフェロシアン化物等は安定物質ではないため、いったん加熱などにより分解してから、更にセメント固型化やガラス固化、もしくはゼオライトへの吸着・焼成を行って安定化体を作製する処理フローを想定している。バランスシナリオと最大濃縮シナリオ（SF-3）は、基本的な処理フローは同じであり、バランスシナリオの液中合成方を二回繰り返す二段階共沈法によって、更に放射性セシウムを濃縮させることを想定した。ただし、本手法はパイロットスケール等での実証は行われておらず、本推進費で研究開発した減容化技術である。

各シナリオにおいて発生する処分対象物の情報を表8にまとめる（成果107）。溶融飛灰の発生量は10万トン、濃度を平均20万Bq/kg、かさ密度を0.8 t/m³を仮定して算定した結果である。非濃縮シナリオ（SF-1）は、溶融飛灰にセメントと水を混練した固型化体を考えており、これまでの種々の経験から固型化体のかさ比重は約2.0になると想定して計算した結果である。バランスシナリオは、国の実証事業として実施さ

れた結果の内、比較的濃縮率の低い数値を参考にしており、本計算では、濃縮後の濃度を先に2,000万Bq/kg（つまり100倍濃縮）と決め、その値を元にして重量等のマスバランスを計算している。洗浄や濃縮の方法、時間等を調整することで数千万～1億Bq/kg程度まで濃度を調整することが可能であるため、本表に示した数字はバランスシナリオの一例である。最大濃縮シナリオについては、妨害イオンである安定セシウムの濃度次第で最大濃縮率が決定することから、比較的安定セシウムが多い場合を想定して試算を行った。非濃縮シナリオ（SF-1）では、処分対象物の発生量は25万トンとなり、バランスシナリオ（SF-2）では処分対象物は1000トンに減少し、最大濃縮シナリオ（SF-3）では29トンと顕著に減少した。一方で、SF-2、SF-3については処理プロセスにおいて発生する二次廃棄物が数十万トン発生することになるため、その特性の把握や、適正処理処分に向けた具体的な検討も必要になる（成果29）。

表8 溶融飛灰シナリオにおける処分対象物量等（推定値を含む）

| シナリオ | 物量 | | 最終処分 形態 | 重金属の 有無・水 処理施設 | 埋立地容 量 | 放射能 濃度 | 維持管理 期間 |
|--------------|-------|-----------|------------|----------------------|-----------|-----------|------------|
| | 処分対象 | 二次廃棄 物 | | | | | |
| | トン | トン | | | | | |
| SF-1 非濃縮 | 25万 | — | 管理型 相当 | あり | 12.2万 | 9万 | 110 |
| SF-2 バランス | 1,000 | 49万 | 遮断型 相当 | 無し | 500 | 2,000万 | 340 |
| SF-3 最大濃縮 | 29 | 49万 | 遮断型 相当 | 無し | 12 | 7億 | 500 |

※ 維持管理期間は埋立廃棄物の平均値が8,000 Bq/kg以下となるまでの時間を記しており、8,000 Bq/kg以下であれば特定一般廃棄物、特定産業廃棄物の埋立処分と同等として取り扱った。

（2）処分システムの概念設計と放射性Cs挙動評価

設定した3つのシナリオに対し、図4のとおり処分システム概念を設定し、表9に示す代表的なパラメータを用いて埋立地内で数値解析を実施した（成果54、61）。放射性廃棄物の埋設処分の場合、事故由来の放射性物質汚染廃棄物とは異なり、C-14等の長半減期核種を含む多核種を対象として数千年オーダーでの評価を行うことが一般的である。具体的には、自然バリアも含んだ放射性物質の動態評価を実施し、人による摂取経路を設定し、評価としては人の被ばく量（内部被ばく、ならびに外部被ばく）を行う。一方で、廃掃法の最終処分場の場合、自然バリアである基盤層や地下水移動を含んだ評価をすることはなく、常に埋立地境界（遮水構造の内側）が評価地点となっており、物質の濃度で評価を行う。本検討では半減期が比較的短い放射性Csのみを対象としていることから、廃掃法の評価方法に基づき、システム-1は維持管理基準（放流水基準）、システム-2、3は遮水工破損による事故時を想定し、図1.5の評価ポイント、つまり埋立地境界における浸出水の濃度の経時変化を計算した。なお、解析にはComsol Multiphysics® v. 6.1.を用いた。いずれの場合においても、放流水基準の濃度限度＝1（Cs-137 = 90 Bq/L）を満足していることを目標とした。

SF-1の場合には既設の特定廃棄物最終処分施設が存在するため、平常時の維持管理基準として同等の目標となっている。SF-2、SF-3では、遮断型相当であり浸出水が発生しない処分システムであるため、遮水工の破損等の事故時を想定している。つまり、事故時であっても埋立地境界において濃度限度を満足していれば、環境保全上の支障は生じないであろう、という考え方に基いている。

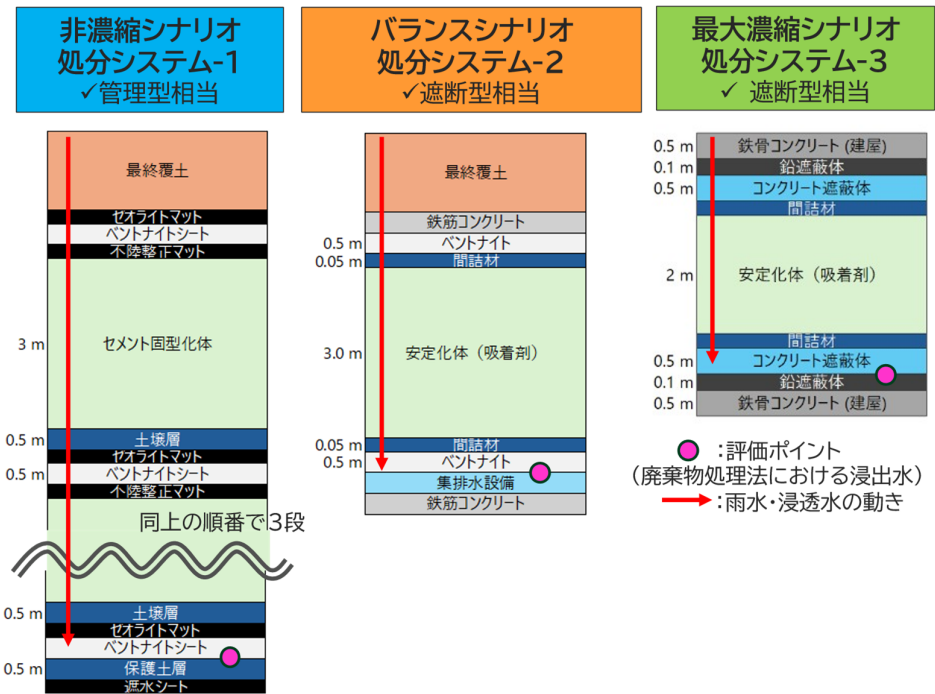


図4 溶融飛灰シナリオの最終処分システム

表9 評価において用いた主要なパラメーター一覧

| 項目 | | 単位 | システム-1 | システム-2 | システム-3 |
|---------|-----------|-------|--------|--------|--------|
| 放射性Cs濃度 | — | Bq/kg | 9万 | 2,000万 | 7億 |
| 分配係数 | 固化化体 | ml/g | 0 | — | — |
| | 安定化体 | ml/g | — | 0 | 0 |
| | 土壌 | ml/g | 4 | 100 | — |
| | 間詰材 | ml/g | — | 1,000 | 1,000 |
| | コンクリート遮蔽体 | ml/g | — | — | 500 |
| 降雨浸透量 | 1～49 年 | mm/年 | 3 | 3 | 3 |
| | 50年～ | | 15 | 15 | 15 |
| 溶出率 | — | % | 10 | 10 | 10 |

各処分システムにおける評価結果を図5に示す。いずれの処分システムにおいても、浸出水もしくは漏洩水の濃度が制限濃度の90 Bq/Lを下回る結果となった。本検討により、県外最終処分の実現に向けて具体的な処分システムを提案し、その安全性を評価する手法を示すことができた。また、システムとして安全確保は当然ながら、安定化体からの溶出特性、間詰材や鉄筋コンクリートといった構造体などのCs収着性も考慮し、柔軟かつ合理的なフェイルセーフ機能を有するシステムとすることが重要である。処分システムの安全性として、少なくとも処分場内で濃度限度を満足していることと設定し、そのための処分システムを提案した。本提案には、最終処分場における構造基準と維持管理基準の双方を含んでおり、今後の具体的な施設設計に有効であると考えられる。

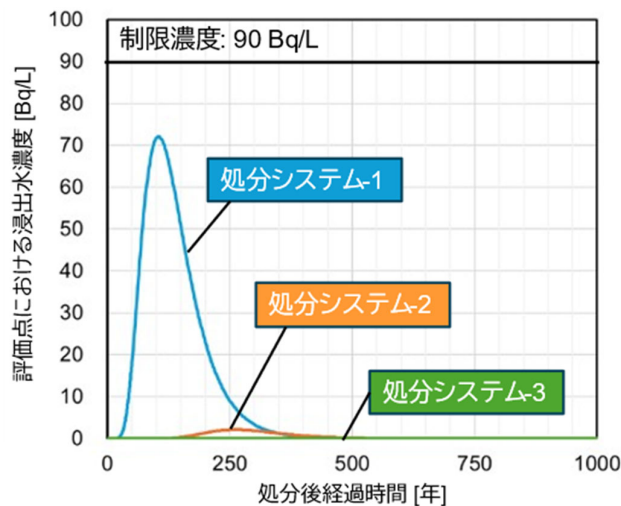


図5 最終処分シナリオ毎の評価ポイントにおける浸出水濃度の経時変化

(2) 熱処理飛灰の洗浄・濃縮処理に用いる吸着材に関する基礎的研究

(2. 1) Cs吸着材のCs吸着挙動のイオン交換理論による記述

仮設灰処理施設から発生する熱処理飛灰（以下、単に飛灰と省略）を水で洗浄し、Csを溶液側に移行させ、Cs選択吸着性を有する吸着材により濃縮する減容化技術が検討されている。シナリオとしてはSF-2、SF-3に相当する。SF-3の最大濃縮シナリオでは、達成可能な濃縮度の情報が必要となる。任意の化学組成の飛灰洗浄水を任意の液固比で処理した際、どの程度のCs吸着量、すなわち減容化が達成できるのかを理論的に求めた。市川ら（2021）に基づき検討した。

イオン交換理論は単一の競合イオン（例えば A^+ ）と対象の Cs^+ イオンのイオン交換反応として記述されるが、飛灰洗浄液にはCsと競合するイオンとしてNa, K, Rbが存在する。 NH_4^+ も競合しえるが、飛灰洗浄液にはほとんど存在しないので無視できる。複数のイオンが任意の濃度で存在する場合において、Cs吸着量を求める方法を説明する。競合する各種イオンを A_i として、それら全てのイオンとCsイオンが固相に吸着した合計量 $[X-A_i]+[X-Cs]$ が、陽イオン交換容量であるCECと等しくなるので、

$$[CEC] = [X - Cs] + \sum_{i=1}^N [X - A_i] \quad (1)$$

となる。ここに $[]$ はモル濃度を表している。上式に選択係数 $K_{Cs/A}$ を導入して固相のCs吸着量 $[X-Cs]$ について整理すると次式となる。

$$[X - Cs] = \frac{[CEC]}{1 + \sum_{i=1}^N \left(\frac{[A_i^+]_0 / [Cs^+]_0}{K_{Cs/A_i}} \right)} \quad (2)$$

上式から、飛灰洗浄液中のCsイオン濃度に対する A_i イオンの濃度のCs選択係数に対する比がそれぞれのイオンの影響度ということになる。溶融飛灰の化学組成データから求めた各アルカリ金属イオンの Cs^+ イオンに対するモル濃度比を表10に、各アルカリ金属イオンと Cs^+ イオンのモル濃度比を対応するCs選択係数で除した値、すなわち影響度を表11に示す。実汚染飛灰のデータは、飛灰洗浄等実証事業により測定された44サンプル（JESCOから提供）に基づく平均値と標準偏差 σ を用いた。

非汚染溶融飛灰のモル濃度比とCs選択係数の比は、フェロシアン化銅では、Naで0.65、Kで2.2、Rbで0.10となり、Kの影響度に対して、Naは0.3、Rbは0.05となり、Cs吸着には実質的にKのみが競合することになる。各種競合イオンの影響度は、飛灰の化学組成にも影響され、2種類の実汚染飛灰の化学組成から求めた影響度は、フェロシアン化銅においては、Kに対してNaは0.1未満であるが、Rbは0.2～0.3となり、Kの影響が最大ではあるが、NaとRbの影響度合いの序列は非汚染溶融飛灰とは変わった。また、ゼオライト（モルデナイト）では（成果28）、Kに比べ、Naの影響度合いは0.01未満であるが、Rbの影響度合いは数10～数100倍、つまりモルデナイトでは飛灰洗浄液からCsの選択濃縮は難しい結果となった。

表10 飛灰の化学組成から求めたCsに対するアルカリ金属のモル濃度比

| モル濃度比 | Na/Cs | K/Cs | Rb/Cs | 出典 |
|-------------------|--------|--------|-------|------------|
| 非汚染溶融飛灰 | 98,120 | 31,203 | 18 | (市川ら、2021) |
| 実汚染飛灰 | 2,750 | 4,500 | 19 | (有馬ら、2022) |
| 実汚染飛灰平均 | 4,888 | 5,861 | 17 | 飛灰洗浄実証事業* |
| 実汚染飛灰平均+ σ | 5,961 | 7,510 | 26 | 同上 |
| 実汚染飛灰平均- σ | 2,667 | 2,599 | 8 | 同上 |

*JESCOから提供されたデータに基づき計算した。

表11 Cs吸着に対する各種アルカリ金属の影響度

| 影響度 | | Na | K | Rb | Na/K | K/K | Rb/K |
|----------|-------------------|---------|---------|---------|-------|------|-------|
| フェロシアン化銅 | 非汚染溶融飛灰 | 0.65 | 2.23 | 0.10 | 0.293 | 1.00 | 0.046 |
| | 実汚染飛灰 | 0.02 | 0.32 | 0.11 | 0.057 | 1.00 | 0.336 |
| | 実汚染飛灰平均 | 0.03 | 0.42 | 0.10 | 0.078 | 1.00 | 0.231 |
| | 実汚染飛灰平均+ σ | 0.04 | 0.54 | 0.15 | 0.074 | 1.00 | 0.271 |
| | 実汚染飛灰平均- σ | 0.02 | 0.19 | 0.05 | 0.096 | 1.00 | 0.247 |
| フェロシアン化鉄 | 非汚染溶融飛灰 | 2.5E-04 | 3.6E-03 | 1.3E-02 | 0.070 | 1.00 | 3.6 |
| | 実汚染飛灰 | 7.1E-06 | 5.2E-04 | 1.3E-02 | 0.014 | 1.00 | 26 |
| | 実汚染飛灰平均 | 1.3E-05 | 6.8E-04 | 1.2E-02 | 0.019 | 1.00 | 18 |
| | 実汚染飛灰平均+ σ | 1.5E-05 | 8.7E-04 | 1.8E-02 | 0.018 | 1.00 | 21 |
| | 実汚染飛灰平均- σ | 6.8E-06 | 3.0E-04 | 5.7E-03 | 0.023 | 1.00 | 19 |
| モルデナイト | 非汚染溶融飛灰 | 9.0E-07 | 1.4E-04 | 6.4E-03 | 0.006 | 1.00 | 46 |
| | 実汚染飛灰 | 2.5E-08 | 2.0E-05 | 6.7E-03 | 0.001 | 1.00 | 338 |
| | 実汚染飛灰平均 | 4.5E-08 | 2.6E-05 | 6.0E-03 | 0.002 | 1.00 | 232 |
| | 実汚染飛灰平均+ σ | 5.5E-08 | 3.3E-05 | 9.1E-03 | 0.002 | 1.00 | 274 |
| | 実汚染飛灰平均- σ | 2.4E-08 | 1.2E-05 | 2.9E-03 | 0.002 | 1.00 | 249 |

飛灰洗浄液からのCs吸着を考えると、放射性Csの濃縮が目的であるが、その濃縮は圧倒的多数の安定Csの挙動に支配されることになる。飛灰洗浄液において放射能濃度38,000 Bq/Lで、安定Csは数ppm～数10ppmであるので、Cs-137/Cs-133質量比は1/10,000～1/100,000となる（成果51）。放射性Cs濃縮は実質的に安定Csを濃縮することに他ならない。言い換えれば、Cs-137のみを濃縮できるわけではなく、質量で考えると、Cs-137と同じ挙動をするCs-133を濃縮していることになる。前述のように、洗浄液中のCs-133が数ppm～数10ppm(mg/L)であり、液固比7で洗浄しているとすれば、飛灰中のCs-133は少なくとも10～100ppm(mg/kg)である。Cs選択性が大きい吸着材のCECを2 mol/kgであるとして、十分に吸着させ、吸着量がCECの50%、すなわち1 mol/kg = 133 g/kgまで吸着したとする。飛灰中の初期濃度が1 kgあたり10～100 mgであるので、それぞれ約10,000倍～約1,000倍までの濃縮が上限値となる。飛灰の放射能濃度が30万Bq/kgであれば、30億～3億Bq/kgまでの濃縮に対応する。この値は、吸着手法により数倍の増減はある可能性はあるが、安定Cs濃度に依存して濃縮には上限があることが分かる。

図6に、吸着材の特性値として、飛灰洗浄等実証事業で使用した吸着材相当の吸着材を想定し、仮に $K_{Cs/K}$ = 4,100とCEC=2.6 eq/kg、化学共沈法での測定値 $K_{Cs/K}$ = 300,000とCEC=4.6 eq/kg（成果21）を用いて、異なる飛灰洗浄液組成としてK/Csモル比を2,700から130,000とした場合の、吸着材放射能濃度を示す（成果51）。初期溶液の放射能濃度は3.8万Bq/kg（飛灰では27万Bq/kg）である。

Cs選択性が比較的小さい吸着材（飛灰洗浄等実証事業相当）の場合、溶液のK/Csモル濃度比の影響は、液固比が1,000を超えてから現れ始め、液固比10万において、1.4億～3.3億Bq/kgと約2倍の差となった。Cs選択性が比較的大きい吸着材（化学共沈によるフェロシアン化銅）の場合、溶液のK/Csモル濃度比の影響は、液固比が10,000を超えてから現れ始め、液固比100万において、4.6億～140億Bq/kgと約30倍の差となった。

このように、吸着材の性能差は、飽和吸着付近でのみ発現し、溶液組成の差も液固比が十分大きい条件でのみ影響してくる。液固比1万～100万の実験とは、吸着材1 gに対して、溶液を10～1,000 L使用するというものであり、現実的には多数の実験を実施することは難しい。実際の飛灰洗浄・吸着・安定化技術実証事業においては、通液速度1.5 L/hrで約2,000 L通液したので、1,300時間、約2か月の事例が報告されている。吸着材は0.2 kgと報告されているので（環境省、2025）、液固比は10,000となる。通液量と吸着量の関係は依然として増加傾向にあり飽和に達していない可能性もある。理論計算は、このように実験で直接的に実施することができない条件であっても予測することができる点で、検討する価値が改めて確認できた。

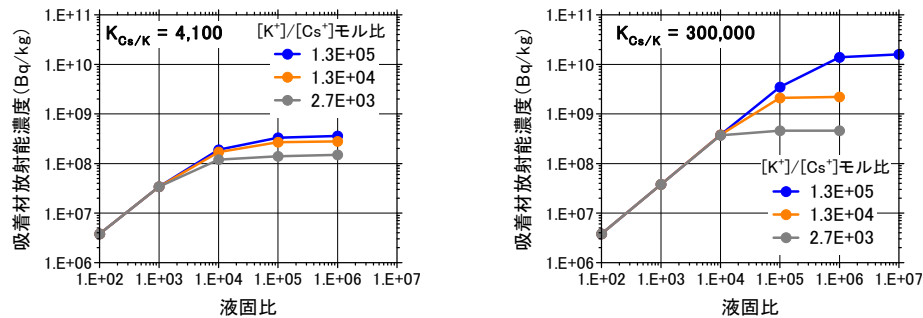


図6 異なるCs吸着性能の吸着材を種々のK/Csモル比の溶液に種々の液固比で作用させた場合の吸着材の放射能濃度（飛灰洗浄液の放射能濃度は3.8万Bq/kg）（成果51）

（2. 2）吸着材の性能評価方法

Cs吸着の目的が減容化であるため、もしできることならば吸着材の吸着量を最大限に利用することが望ましい。最大吸着は少量の吸着材を多量の溶液に投入した場合であり、溶液のCs濃度変化はほとんどない。多段カラムで考えれば最上流のカラムに相当する。この条件における飽和吸着量を実験により求めようとすると、フェロシアン化物錯体のようにCs選択係数が10,000を超える場合には、前述のように必要な液固比が10万以上ともなり、実験が容易ではない。そこで、イオン交換理論を用い、同条件での吸着量を予測した。Cs吸着材の品質評価フローを図7（成果2、9、30）に注意点と併に示す。

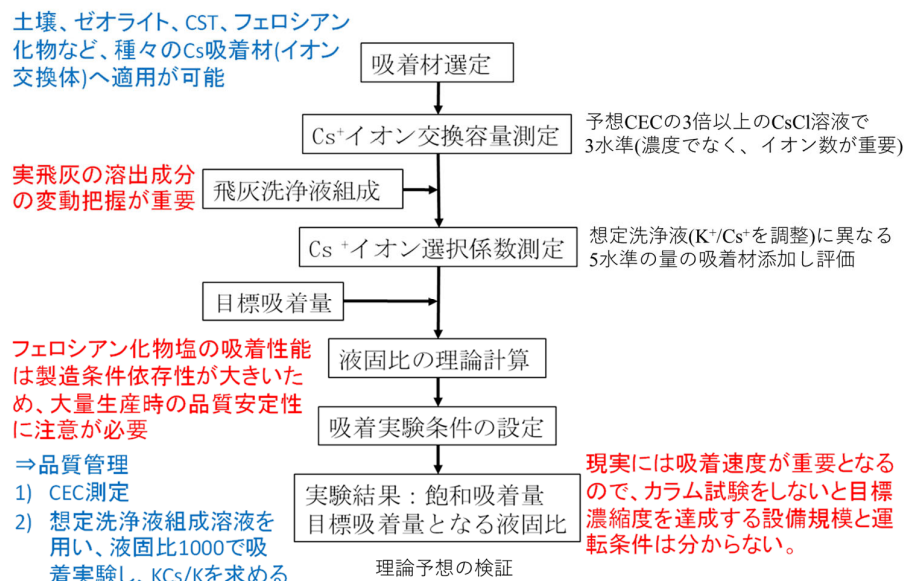


図7 イオン交換理論によるCs吸着材の品質評価フローと注意点（成果2、9、30）

（2. 3）Csのカラム吸着の特性評価

飛灰洗浄等実証事業では、実際の飛灰洗浄液を用い、パイロットスケールの実験を行ったため、詳細な吸着材の吸着特性は評価されていない。本研究では、前述の同等の吸着材を用い、通液速度の影響を評価した。まず、異なるK/Csモル濃度比、異なるK濃度の溶液を用い、吸着速度を調べた。吸着速度を調べた結果、Cs吸着速度はCs濃度と正の相関を有することがわかった。このことから、効率的にカラム吸着を行うには、飛灰洗浄液のCs濃度が高い、つまり飛灰洗浄時の水量が少ない方が適している。もちろん、飛灰洗浄等

実証事業では、残渣側の放射性Cs濃度を下げるために可溶性成分を十分に取り出す条件が検討されているが、効率的減容化の観点からは可能な限り高濃度の洗浄液を取り出し、残渣の洗浄は別に取り扱う方法も検討の余地があると考えられた。

その後、最もCs吸着速度が速くなる溶液条件において、カラム吸着試験を行った。カラム吸着試験結果を初期Cs濃度に対する流出液中のCs濃度の相対濃度として、図8に示す。1.9 cm/h (SV=2.8、1時間当たりカラム体積の2.8倍の溶液が通過) 及び19 cm/hの比較的低流速の条件下では、初期の流出液においてCsがほとんど検出されず、吸着剤の能力が最大限発揮されていた。これに対し、190 cm/h以上の流速では、Csの通過が早まり、吸着能が低下し、Csが十分に吸着・除去されない傾向が観察された(成果58)。

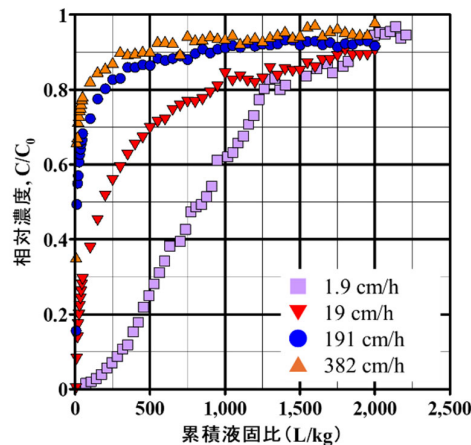


図8 カラム吸着における溶液中のCs残存率に及ぼす通液速度の影響
(溶液は、 $K/C_s=1,000$ 、 K 濃度3.0M)

飛灰洗浄等実証事業では、200 gの吸着材を340 mLのカラムに充填し、 $S/V=5$ の条件で通液したため、流速は十分に小さく、飽和吸着が維持されていたと考えられる。ただし、吸着材が有する飽和吸着までの能力の量の1/5程度を発揮するために2か月を要した。このことから、吸着材の性能を十分に発現させた最大濃縮を目指す場合には、カラム吸着法を採用するのは困難と考えられる(バランスシナリオのような濃縮度であれば問題ない)。本研究の範囲では、操業可能な時間的制約を設定し、吸着設備容量と到達可能なCs濃縮度の算定までには至らなかった。カラム設計の専門家の支援も得ながら、現実的な濃縮度の検討が今後は必要である。

(2. 4) 最大濃縮の検討

Csの高濃縮を目指すすると、カラム吸着法の吸着速度と通液すべき液固比を考えると膨大な時間を要することが分かった。一方、フェロシアン化金属塩を溶液中で合成する化学共沈法を用いると、より高いCs選択性が得られ、その吸着処理速度自体は高速であることが一般的に分かっている。本研究では、化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律の登録物質であり、比較的Cs選択性が高いことが分かっているフェロシアン化銅(CFC)を検討対象とした。対比として、前項までで述べてきた飛灰洗浄等実証事業においてその1事業者が使用した吸着材と同等のCFC造粒体も比較した。

化学共沈法によるCFCのCECは4.6 mmol/gとなり、市販品の2.7 mmol/gと比べて、1.7倍であった。図9に吸着率と $K_{CS/K}$ の関係を示す。市販品では吸着率8% (液固比5,000) で2,186、化学共沈法では吸着率7% (液固比3,769) で340,000であった。市販品の $K_{CS/K}$ は、濃度依存性は限定的で、1,500~4,000程度であった。一方、化学共沈法では吸着率40%までは $K_{CS/K}$ は300,000を超えて極めて大きく、吸着率が40%を超えても40,000と市販品よりも大きい値を示した(成果21)。

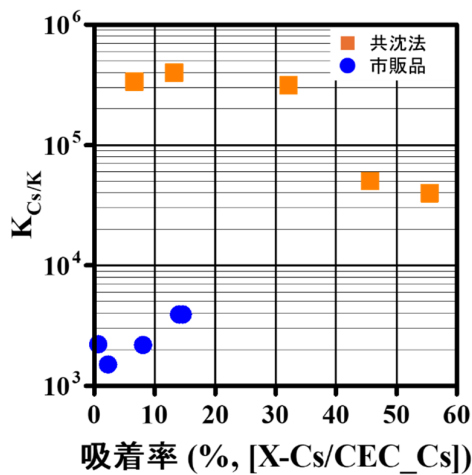
図9 化学共沈法と市販のCFCのCs吸着率と $K_{Cs/K}$

図6に示したが、飽和吸着の実験を再現するCs選択係数は実測値の2,500よりも大きい10,000が適切であった。これは、実験による吸着時間が短くCs吸着量が飽和に達していなかったことによると推定できる。この造粒体の吸着材によるカラム吸着では吸着に時間を要する可能性があるという結果を踏まえて、Csを更に高濃縮するため、二段階にわたる化学共沈法に関して検討した。二段階化学共沈法の流れを図10に示す。一段回目では、飛灰洗浄液の放射能濃度を排水基準である90 Bq/Lにすることを目的として、フェロシアン化カリウムを模擬飛灰洗浄液に溶解させ、塩化銅水溶液を添加して（排水基準を達成できるレベルに液固値を小さく、吸着材添加量を増やす）CFCを合成し、Csを共沈させる。フェロシアン化物はアルカリで分解する性質を有するため、一段回目で合成したCFCを分解することで、その分解液はCFC中のK/Csになるため、飛灰洗浄液と比べて、飛灰洗浄液と比べ極めて低い K^+/Cs^+ モル濃度比の溶液が得られる。この溶液で再びCFCと共沈させることで、一段回目より、高濃縮Cs吸着が可能と考えられる。

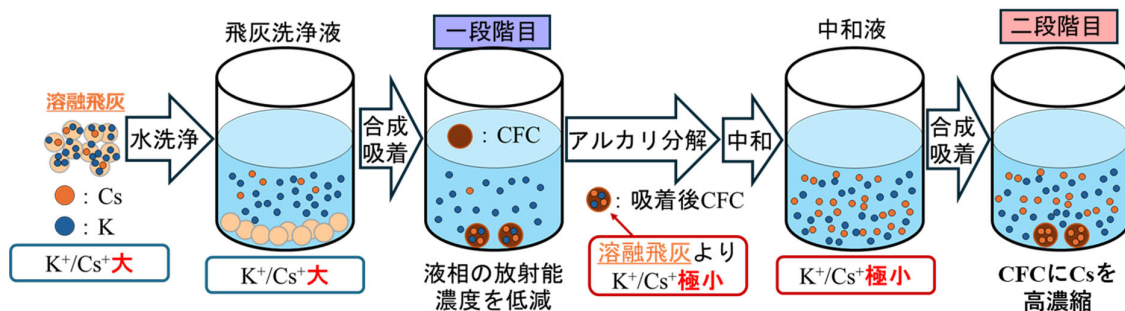


図10 二段階化学共沈法による最大濃縮の流れ

一段回目では、 $[K^+]_0 = 3.0$ 、 $K^+/Cs^+ = 1,000$ の模擬飛灰洗浄液500 mLにCFCの原料である $K_4Fe(CN)_6 \cdot 3H_2O$ を合成量が液固比3,769~75,389になるように溶解した。液固比の設定は、イオン交換理論による予備計算の上で設定した。 $CuCl_2 \cdot 2H_2O$ 溶液を等量でモル比 $Fe : Cu = 1 : 1$ になるように加えて合成し、200 rpmで1時間攪拌後ろ過し、ろ液中のCs濃度 $[Cs]$ をICP-MSで測定した。31万Bq/kgの熔融飛灰4.2万tを液固比7で水洗浄した飛灰洗浄液(44,286 Bq/L)を想定し、実験で得られた吸着量から、液相及び固相の放射能濃度を求めた。一段階目では、液固比3,769で放射能濃度が86 Bq/Lに低減し、排水基準90 Bq/Lをクリアした(成果52)。

第二段階では吸着率を高めて、更に濃縮することを目的とし、一段階で排水基準をクリアできた液固比3,769で合成したCFCを、アルカリ分解(pH13-NaOH)し、沈殿物をろ過し、溶液をさらにHClでpH7に調整したことを想定した模擬中和液($[K^+] = 44.6$ mM, $[Cs^+] = 4.0$ mM, $[Na^+] = 0.1$ M)を用いて、CFCの合成を試みた。液固比は、理論計算を行い188~1,885とし、一段階目と同様の操作を行った。第二段階では、液相の放射能濃度が飛灰洗浄液と同じになる液固比466で、第二段階での特徴を第一段階目と比較する。そのCs吸着率は6.6%から36%まで上昇し、固相の放射能濃度は82.4 MBq/kg (8,200万Bq/kg)から681 MBq/kg (6億8千万Bq/kg)と約8倍に達した。その結果、減容比は一段階目の更に1/8と大幅に増加した(成果52)。二段階目のフェロシアン化銅を再びアルカリ分解することで、その分解液の K^+/Cs^+ は更に1:3程度まで低下する。

ため、モルデナイトやCSTのような吸着材でも高吸着率を得ることができ、安定化操作を含めても最大減容化の可能性はある。

(3) 自然地層の放射性Cs吸着性能に関する検討

Cs濃度が 10^{-3} mol/L未満など、低濃度態で自然地盤へ吸着する際のCs分配係数の調査にはJAEA-SDB systemを用いた。登録されている約46000件の収着データより、Csの地盤に関する吸着定数を抽出し、初期濃度、液固比等を踏まえたデータ整理をおこなった。共存イオンが含まれる海水条件でのCs分配係数は、純水使用時よりも小さくなることが確認された。また、花崗岩では、文献値（実験者）によって初期濃度と液固比の実験条件に約588億倍および1500倍の大きな差があり、最終的なCs分配係数は最大119万倍異なっていた。自然地層を天然バリアとして機能させる場合には、既存データをどのように選定して使用するのかが重要であるといえる。最終処分場から高濃度のCsが漏洩した場合（安全側の考え）として、文献値からCs吸着率が極端に大きい、または小さい場合の吸着試験結果を除外して整理した。Cs吸着率が10～90%のデータを「○」、10%未満および90%超のデータを「×」とした（表12）。天然パーミキュライトを除き、得られる分配係数は著しく大きくなった。これは、試料の分配係数を過大評価しており、バリア機能としては「危険側の考え」に該当する。以上のように、既存データを使用する際は吸着試験が適正な液固比条件にて実施されたものなのかを「文献値を利用する側」が判断する必要がある。

表12 Cs吸着率と分配係数の関係

| 試料 | データ数 | ○ | × | 分配係数 K_d (mL/g) | |
|-----|------|-----|-----|-------------------|---------|
| | | | | ○データの平均 | ×データの平均 |
| 玄武岩 | 107 | 11 | 96 | 388 | < 2300 |
| 泥岩 | 169 | 121 | 48 | 246 | < 1511 |
| 緑泥岩 | 37 | 28 | 9 | 100 | < 472 |
| 花崗岩 | 1061 | 583 | 478 | 84 | < 5618 |
| 砂岩 | 114 | 46 | 68 | 74 | < 1960 |
| 土壌 | 80 | 47 | 33 | 150 | < 5059 |

| 試料 | データ数 | ○ | × | 分配係数 K_d (mL/g) | |
|------------|------|-----|----|-------------------|---------|
| | | | | ○データの平均 | ×データの平均 |
| 砂質土 | 27 | 17 | 10 | 89 | < 1119 |
| イライト | 28 | 4 | 24 | 569 | < 12216 |
| 白雲母 | 16 | 13 | 3 | 552 | < 769 |
| 黒雲母 | 105 | 50 | 55 | 206 | < 801 |
| カオリナイト | 198 | 173 | 25 | 197 | < 922 |
| 天然パーミキュライト | 8 | 3 | 5 | 177 | > 11 |

天然バリアに対するCs吸着パラメータについて、漏洩速度が極めて遅い場合には吸着平衡に達するのに十分な時間を要すると想定し平衡条件での評価（バッチ吸着試験）とし、漏洩速度が速い場合には平衡には至らないと想定して非平衡吸着（カラム吸着試験）として取り扱うこととし、通水速度、Cs吸着阻害物質による影響を明らかにするために、実土壌を用いたCs吸着試験を実施した（成果23）。カラム試験の充填条件等を表13に示す。バッチ試験でのCs吸着しやすさは分配係数 K_d 、カラム試験では見掛けの分配係数 K'_d で示され、以下の式(4)、(5)より算出した。

表13 各土壌のカラム試験条件

| | 校庭 | 森林 | 畑 | 水田 | 掘削 |
|-------------------------------------|------|------|------|------|------|
| カラム充填量(g) | 25.2 | 21.5 | 26.2 | 24.1 | 22.6 |
| 土粒子密度 ρ_s (g/cm ³) | 2.24 | 1.90 | 2.28 | 1.99 | 2.12 |
| 充填密度 ρ_d (g/cm ³) | 1.26 | 1.08 | 1.31 | 1.21 | 1.13 |
| 間隙体積 V_v (cm ³) | 8.76 | 8.71 | 8.54 | 7.89 | 9.37 |
| 間隙率 n | 0.44 | 0.43 | 0.43 | 0.39 | 0.47 |
| 液固比 (mL/g) | 22 | 26 | 21 | 23 | 24 |

$$K_d = \frac{[X-Cs]}{[Cs^+]} \quad (3)$$

$$K'_d = \frac{1}{C_{in}} \cdot \frac{S_{tot}}{\rho_d V} \quad (4)$$

ここに、 $[X-Cs]$ ：試料に吸着されたCs (mg/L)、 $[Cs^+]$ ：溶液中のCs平衡濃度 (mg/L)、 C_{in} ：流入水のCs濃度 (mg/L)、 S_{tot} ：試料に吸着されたCs総量 (mg)、 ρ_d ：試料の乾燥密度 (g/cm³)、 V ：試料体積 (cm³)

バッチ吸着とカラム吸着試験より求めた分配係数等を表14に示す。掘削土にはCsを強く吸着する層状ケイ

酸塩鉱物の白雲母が含まれているためか、 K_d 、 K'_d は共に掘削土が最大であった。また、掘削土は有機物含有量の指標である強熱減量が小さいため、Csの吸着挙動は鉱物主体であると考えられた。本実験では、粒径75 μm 未満の割合や有機物量とCsの吸着量に相関性がなかった。Csの吸着は、土壌の性質よりも鉱物種に依存する結果となった。掘削土のカラム K'_d は、バッチ K_d よりも約1/16小さくなった。カラム試験のような非平衡吸着では、土壌と間隙水との接触時間が短いため、吸着に要する時定数の影響を受け、見掛けの分配係数が小さくなったと考えられる。また、Cs非平衡吸着量は土粒子密度（決定係数 $R^2 = 0.94$ ）や間隙率（決定係数 $R^2 = 0.96$ ）と強い正の相関があった。単位体積あたりの土壌量および液固比（単位体積当たりの固相と液相の比）が影響していると考えられる（成果40）。

カラム通水速度によるCs吸着量の変化を確認するために、通水速度7.48 mL/min（ダルシー流速 6.4×10^{-3} cm/s）と30 mL/min（ 2.5×10^{-2} cm/s）の比較を行った。なお、一般的な帯水層における地下水の流速は $10^{-1} \sim 10^{-2}$ cm/sである。表15より、カラム流速が小さい場合のCs総吸着量は大きく、流速によってCs吸着量が変化することが明らかとなった。

表14 各土壌の平衡・非平衡吸着挙動

| 試料 | バッチ K_d (mL/g) | カラム K'_d (mL/g) |
|----|---------------------|----------------------|
| 校庭 | 61 | 8 |
| 森林 | 96 | 15 |
| 畑 | 68 | 8 |
| 水田 | 60 | 14 |
| 掘削 | 266 | 17 |

表 15 流速によるカラム吸着試験結果の比較

| 試料 | 流速 (mL/min) | Cs総吸着量 q (mg) | 遅延係数 R | カラム K_d (mL/g) |
|----|-------------|-----------------|----------|------------------|
| 校庭 | 7.5 | 3535 | 24 | 8 |
| | 30 | 915 | 7 | 2 |
| 森林 | 7.5 | 5654 | 38 | 15 |
| | 30 | 4146 | 28 | 11 |
| 畑 | 7.5 | 3819 | 27 | 8 |
| | 30 | 2980 | 21 | 7 |
| 掘削 | 7.5 | 6795 | 43 | 17 |
| | 30 | 4809 | 48 | 19 |
| 水田 | 7.5 | 5735 | 43 | 14 |
| | 30 | 1956 | 15 | 5 |

表 16 吸着阻害物質の影響

| 試料 | 流速 (mL/min) | Cs : K | Cs総吸着量 (mg) | 遅延係数 R | カラム K_d (mL/g) |
|----|-------------|--------|-------------|----------|------------------|
| 掘削 | 7.5 | Csのみ | 6795 | 43 | 17 |
| | | 1:1 | 2647 | 27 | 11 |
| | | 1:10 | 1748 | 18 | 7 |
| 校庭 | 7.5 | Csのみ | 3535 | 24 | 8 |
| | | 1:1 | 937 | 11 | 3 |
| | | 1:10 | 782 | 9 | 3 |

Cs吸着量は流速に依存しており、吸着に要する時定数が影響していることが確認された。カラム吸着試験は実地盤条件に近い場合、Csは流速が早い場合は自然地層を移行しやすい可能性があった。掘削土の遅延係数は流速と反比例せず、含まれる白雲母のCs吸着速度が大きいことが影響したと考えられる。

表16に、カリウム（K）を共存させた場合のカラム試験結果を示した。吸着阻害物質としてKを選択した理由は、汚染焼却灰等（一般的にKを多く含む：少なくとも数百mg/L以上）が直接セメント固型化等された場合

を想定したものである。0.1 mol/LのCs:K濃度比=1:1、1:10溶液を調製し、7.48 mL/minで通水させた。K濃度が大きくなるほど、 K_d が減少し、Cs総吸着量は最大80%低下した。Kは価数および水和エネルギー等の化学的性質がCsと類似しているため、Csの吸着を阻害した。土壌はKよりもCsを優先的に吸着する（選択係数が高い）が、K濃度がCs濃度よりも大きい場合はCsの吸着を阻害し、かつ、Cs脱離を促進させた。処分場の天然バリアを想定した場合、間隙内のK/Cs比がCs溶脱に影響するため、漏洩水や自然地下水中のKイオン量が、Csの移行抑制を把握する上で重要である。

（４）Cs-137による水の放射線分解のため安定化体から発生する水素ガスに関する基礎評価

（４．１）純無機水和物からの水素ガス発生

γ 線照射した硫酸カルシウム2水和物（セッコウ）、0.5水和物（焼セッコウ）、0.625水和物からの H_2 発生挙動を調べたところ、照射温度にかかわらず、水和水数の一番多いセッコウにおいて、その H_2 発生収率（ G_{H_2} ）が一番低かった（図11）。これ以外でも、硫酸マンガン5水和物と1水和物、硫酸マグネシウム7水和物と1水和物、水酸化バリウム8水和物と1水和物においても、水和水の多い方の G_{H_2} が小さくなった。唯一このルールから外れるのは硫酸鉄7水和物と1水和物で、7水和物の G_{H_2} は0.653と純無機水和物の中では最大の値を示した。

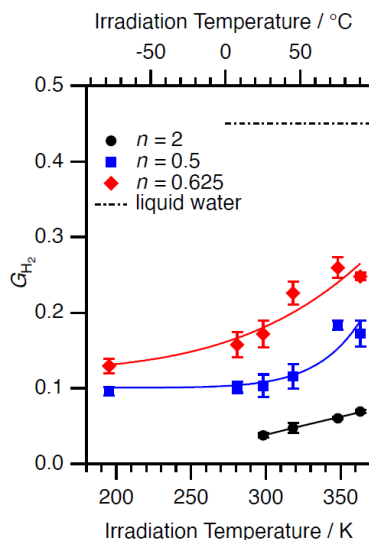


図11 $CaSO_4 \cdot nH_2O$ 結晶の G_{H_2} の照射温度依存性

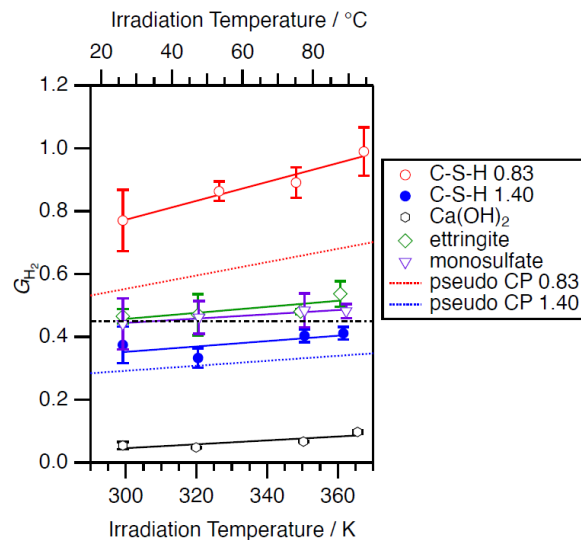


図12 セメントペースト硬化体構成結晶の G_{H_2} の照射温度依存性。点線は、構成結晶の重量比から予想されるセメントペースト硬化体の G_{H_2} を示す

セメントペースト硬化体の構成結晶であるC-S-H, $Ca(OH)_2$, エトリンガイト, モノサルフェートの各結晶についても、 γ 線照射後の G_{H_2} について調べた（図12）。セメントペースト硬化体の γ 線照射による水素生成については、我々以外でも試験されている（Ishikawa, et al., 2019）。その結果は、自由水がある場合は自由水量に比例して水素ガスが発生し、その G_{H_2} は0.45まで達するが、自由水を取り除いて結晶水のみが残っている状態にすると、（105℃で24 h加熱乾燥）、 G_{H_2} は0.03～0.07へと大きく下がるので、結晶水は水素ガス発生にあまり寄与しないとするものであった。それに対し、我々のセメント構成結晶での結果はその10倍大きく、結晶水の分解も水素ガス生成に寄与するという結論に達した（成果14, 15, 24, 25）。

（４．２）セメントペースト硬化体並びに溶融飛灰混合硬化体からの水素ガス発生

炉セメントペースト硬化体B種とジオポリマー、それらに溶融飛灰を混入させた場合の G_{H_2} を調べた。図13に γ 線照射した高炉セメントペースト硬化体の4週間の積算 G_{H_2} を照射後の日数の平方根に対してプロットしたものを示す。水セメント比 $W/C=0.6$ （図13左）と0.22（図13右）の105℃乾燥していない試料（neat）の室温での G_{H_2} と比較すると、 $W/C=0.6$ の積算 G_{H_2} ははるかに大きかった。これは、セメントペースト硬化体内の自由水量は $W/C=0.6$ のほうが多いため、その差が現れたものと考えられる。照射・保持温度の上昇とともに G_{H_2} は上昇する傾向があり、90℃では W/C 値に関係なく照射から28日目で積算 G_{H_2} は液体水のそれと同じ値の約0.45に達していた。いずれの乾燥試料も、積算 G_{H_2} は照射後の日数の平方根に比例して増加していた。これは、セメントペースト硬化体内で γ 線照射によって生成した水素ガスが、硬化体内の拡散律速で拡散しつつ硬化体外に達した様子を観測したことを示している。室温での照射・保管の結果をみると（黒丸）、

われわれの実験結果でもその程度の積算 G_{H_2} 値となっている。しかし、保管温度が上がれば、試験体内における水素ガスの拡散速度が上昇し、その結果として積算 G_{H_2} 値は液体水のそれと同等の値に達し、その後さらに上昇することは確実である。したがって、われわれの実験結果は、セメントペースト硬化体の構成結晶の化学結合水も放射線分解による水素ガスの発生源となることを示している。

36.6 wt% の溶融飛灰が混入した場合の γ 線照射された高炉セメントペースト硬化体（W/C=0.65）の積算 G_{H_2} の照射・保持温度依存性を図14に示す。105℃乾燥した場合は、その照射・保持温度の場合でも飛灰を含まない硬化体試料と比較して積算 G_{H_2} 値は大きくなり、90℃照射・保管の場合は、28日後に1.55と飛灰を含まないものの4倍弱にも上昇した。ここで重要なことは、飛灰を単独で照射しても、水素ガスはまったく発生しなかったことである。飛灰混入による積算 G_{H_2} の増加の原因としては次の2つがあげられる。一つは、飛灰の混入によってセメント構成結晶の成長が阻害され、細孔形成が発達せず、試験体内部で発生した水素ガスが拡散しやすくなったため、早く外に出やすくなったこと、もう一つは飛灰に吸収された γ 線エネルギーのセメントペースト硬化体結晶の水和水へのエネルギー移動効率が高くなったことが考えられる（成果7, 55, 56）。

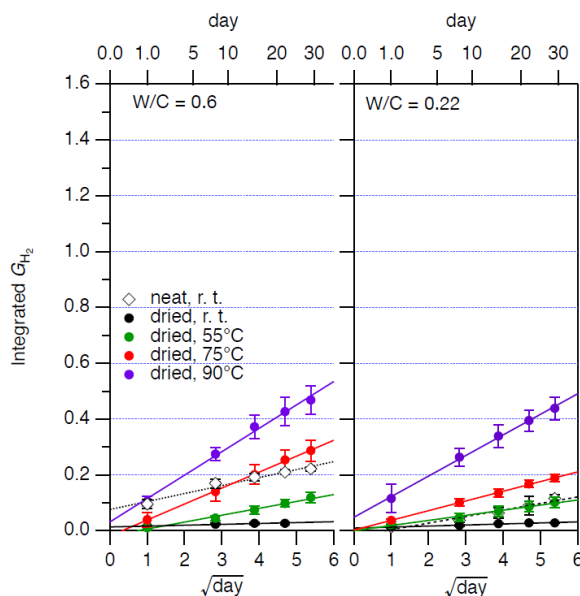


図13 水セメント比の異なる高炉セメントペースト硬化体B種の G_{H_2} の照射後日数と保持温度依存性
 G_{H_2} の γ 線照射後日数と保持温度依存性

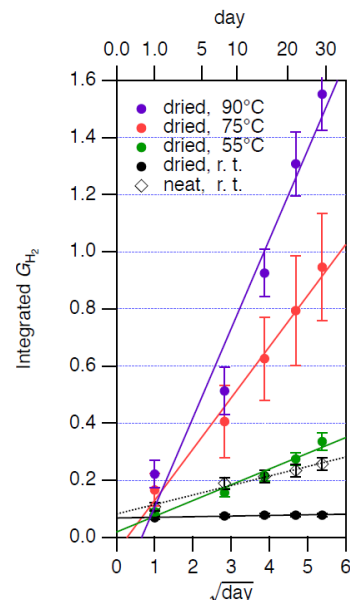


図14 飛灰を36.6 wt%混入した高炉セメントペースト硬化体B種(W/C = 0.65)の積算

(4. 3) ポリマー含浸セメントペーストからの水素ガス発生

ポリマーをコンクリートに含浸させ、物質浸透抵抗性を高めるポリマー含浸セメントペースト硬化体についても調べた。ポリマー含浸セメントペースト硬化体は、セメントペーストを硬化後に加熱真空引きにて自由水を取り除いた後、PMMAモノマーとAIBNラジカル重合開始剤を混ぜた溶液を含浸させた後に加熱により重合を開始してポリマー化したものである。Φ6 mm×50 mmのサンプルを用いた測定結果を図15に示す。90℃で保持したポリマー含浸セメントペースト硬化体（赤丸塗りつぶし）は他の試料より遥かに高い G_{H_2} を示すと共に、照射から240日経過しても水素ガスの発生は止まらず、その積算 G_{H_2} 値は4.8と液体水のそれ（0.45）の10倍以上にまで達した。室温に比べて90℃保持で遥かに G_{H_2} が大きくなる理由は、PMMAのガラス転移温度を超えてポリマーの運動が室温と比べて動的となり G_{H_2} の増加（セメント硬化体細孔内の H_2 の拡散）に寄与しているものと考えられる。

Φ50 mm × 100 mmのポリマー含浸セメントペースト硬化体の90℃で保持した照射後の積算 G_{H_2} を図16に示した。ここで◇塗りつぶしのものについては、照射後20日程度の頃に試料の入ったガラス容器を落下させてしまい、容器は壊れて試験体にクラックが入ってしまった。その試験体を再び別のガラス容器に入れ替えて積算 G_{H_2} の測定を続けたものになるが、クラックの入っていないもの（赤丸塗りつぶし）と比較して、20～40日の間で大幅な G_{H_2} の上昇が観測され、その値は4.5程度にまで達した。この結果は、 γ 線照射されたセメントペースト硬化体内に生成した水素ガスが試験体外まで拡散できず残存していたものが、クラックが入ったことによってクラック近傍の水素ガスが試験体外に急激に出てきたものと解釈される。

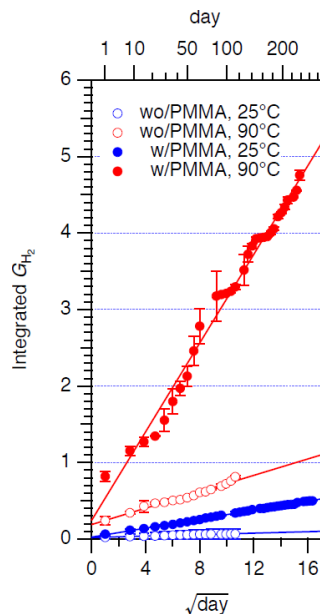


図15 ポリマー含浸高炉セメントペースト硬化体B種の G_{H_2} の照射後日数と保持温度依存性

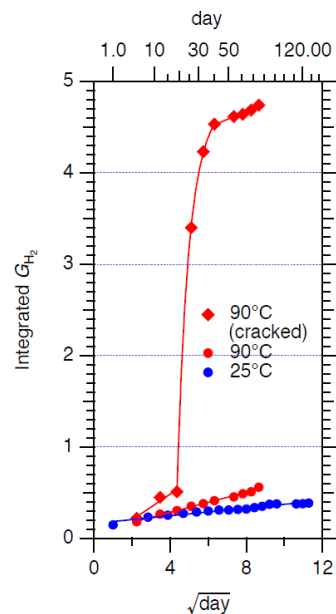


図16 ポリマー含浸高炉セメントペースト硬化体B種の G_{H_2} の照射後日数と保持温度依存性におけるクラックの影響

1. 4. 2. 2 サブテーマ2

1) 飛灰直接固型化体の溶出試験結果

有姿攪拌試験の結果を図17に示す。セメント固型化体は溶媒が蒸留水の場合、試験開始後7日で累積溶出率が90%を超え、試験終了時には99%が溶出した（成果63）。セメント固型化体では、海水溶媒でも同様に溶出率は高く、最終的に74%に達するが、蒸留水溶媒よりも溶出は抑制された。固型化体表面に析出物（カルサイト）が確認され、この析出物が溶出を抑制したものと判断された。ジオポリマー固型化体における累積Cs溶出率は、セメント固型化体に比して全体的に低く、早期に溶出の低減がみられ、時間経過に伴って速やかに累積Cs溶出率はほぼ一定になった（成果65）。常温で養生した固型化体でも最終的な累積溶出率は35%に留まり、養生温度を上げるほど最終的な溶出率は小さくなった。105°Cの固型化体で急激な溶出の増加が見られるが、これは固型化体が崩壊したためである。

なお実汚染灰を用いたセメント固型化体について実施した有姿攪拌試験でも放射性Csの溶出は早く、後述する拡散係数はほぼ同等であった。

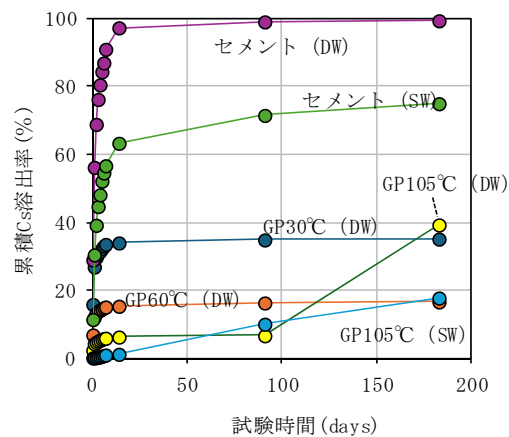


図17 飛灰直接固型化体の有姿攪拌試験の結果

2) フェロシアン化銅Cs吸着を介した固型化体の溶出試験結果

セメント固型化体の有姿攪拌試験の結果を図18に示す。各線は異なる溶媒の結果を示している。セメント固型化体では最初の10日間は、3種類の溶媒による溶出に大きな差は無いが、35日目以降は、各溶媒で溶出

挙動に差が生じた。蒸留水溶媒での累積Cs溶出率は緩やかな上昇傾向を示したのに対し、人工海水では、累積溶出率の増加速度は35日目以降で大幅に低下し、91日後の累積溶出率は39.3%となり蒸留水よりも低くなった。また、模擬飛灰溶出液では、溶出試験中に固型化体の表面に析出（カルサイト）が確認され、この析出により溶出が抑制されると想定されたが、蒸留水溶媒と類似の増加傾向を示した。セメント固型化体では析出が溶出を抑制したが、本固型化体で溶出の抑制が認められなかった理由は不明である。

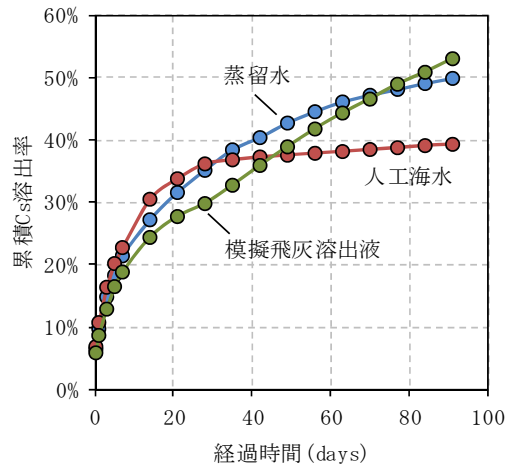


図18 フェロシアン化銅Cs吸着を介して作製したセメント固型化体の有姿攪拌試験結果

ジオポリマー固型化体の有姿攪拌試験の結果を図19に示す。固型化体からのCs溶出は初期（14日迄）に急激に立ち上がり、その後緩やかになる点では3種の溶媒で概ね共通している。蒸留水溶媒では、ジオポリマーの有するイオン交換能により、他の溶媒よりも低い溶出率となっている。一方、人工海水では初期14日以降も緩やかな上昇があり、最終的には最も多くのCsが溶出した。海水を使用した理由は、海水中のNa、Kイオンが固型化体中のCsとイオン交換して溶出を促進すると考えたからであるが、想定していたことが起こったと思われる。模擬飛灰溶出液では、Naは人工海水よりも低いものの、Kは人工海水の10倍程度含まれることから、イオン交換によるCsの放出（KとCsの置換反応）を促すと思われたが、蒸留水と類似の溶出率の増加曲線（初期の急激な溶出以降は僅かな溶出）となった。セメント固型化体と同様に、模擬飛灰溶出液では固型化体表面に析出物が確認され、この表面の析出物が液中のイオンと固型化体内部のCsのイオン交換反応を阻害した可能性が考えられる。

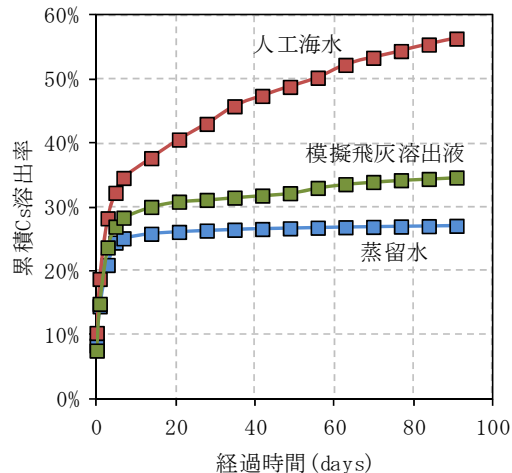


図19 フェロシアン化銅Cs吸着を介して作製したジオポリマー固型化体の有姿攪拌試験結果

3) ゼオライトCs吸着体を介した固型化体の溶出試験結果

長期有姿攪拌試験（JIS K 0058-1）の結果を図20に示す。本試験は溶媒交換を行っていないことに注意が必要である。ゼオライトCs吸着体は、初期にCs溶出量が増加し、1日目以降、再吸着が進むことが分かった。今回採用した長期有姿攪拌試験のように溶媒を交換しない試験方法では、Csが溶出するにつれて溶媒中のCs濃度が上昇しゼオライトがCsを再吸着しやすい環境になるため、埋立時の溶出挙動を十分に評価できな

い可能性がある。焼結体は、時間経過に伴いCs溶出量が増加した。これは粒子表面の非晶質相が溶解しCs溶出量が増加したためと考えられる。セメント固型化体、ジオポリマー固型化体の溶出量は1週間程度で頭打ちとなり、以降は横ばいとなった（成果16）。

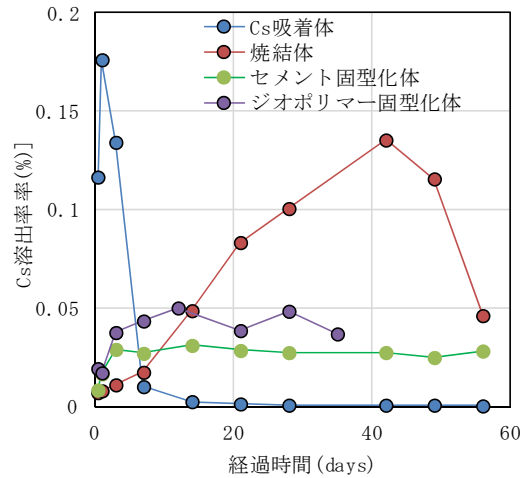


図20 ゼオライトCs吸着体、焼結体、各固型化体の有姿攪拌試験（JIS K 0058-1）の結果

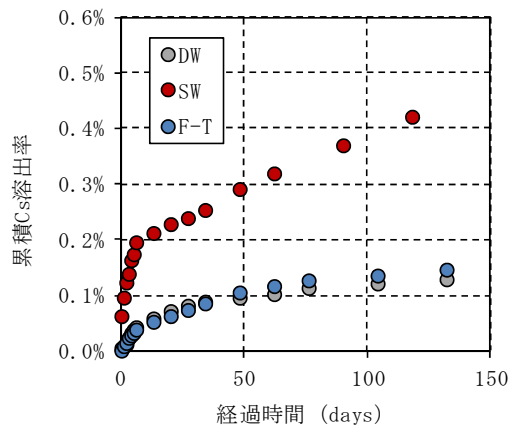


図21 ゼオライトCs吸着体を介して作製したセメント固型化体の有姿攪拌試験結果

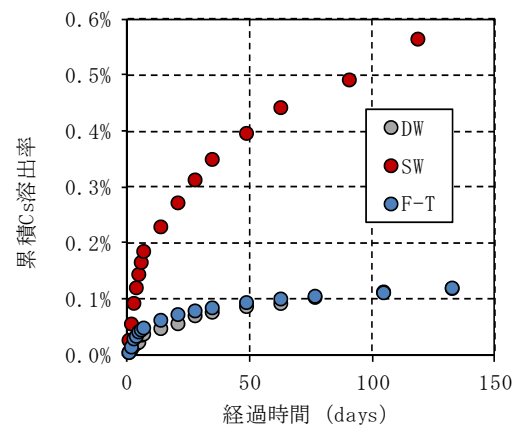


図22 ゼオライトCs吸着体を介して作製したジオポリマー固型化体の有姿攪拌試験結果

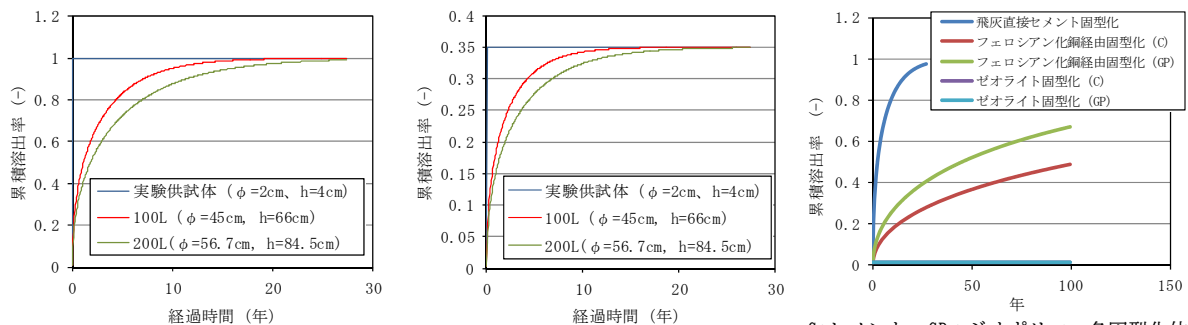
溶媒として、蒸留水（DW）、人工海水（SW）を使用し、さらに凍結融解（F-T）のサイクルを繰り返した固型化体の有姿攪拌試験の結果を図21、22に示す（成果53、60）。ここでの試験は溶媒交換無しのJIS K 0058-1の試験ではなく、ANSI/ANS-16.1に準拠して行っている（溶媒交換有）。いずれの固型化体でも蒸留水溶媒では累積溶出率の勾配は初期が最も急で、次第に緩やかになり130日目ではほぼ溶出しなくなった。セメント固型化体とジオポリマー固型化体の累積溶出率の差は僅かで、セメント固型化体からのCs溶出が0.01%程度ジオポリマーを上回った。凍結融解に供した固型化体は、処理を施していない固型化体とほぼ変わらない経過をたどった。凍結融解処理は、間隙水の膨張と収縮により物理的な破壊が進行すると想定したが、固型化体内の間隙水はCaやNaが高濃度であるため凝固点降下が起こり凍結しなかった可能性が考えられる。海水溶媒は蒸留水と大きく異なる結果となった。海水に浸漬することで、Na、Mg、Ca、Kを多量に含む海水が固型化体内部の空隙に浸透し、空隙内部が高塩濃度溶媒で満たされる。これらの陽イオンとゼオライトに吸着したCsとの間でイオン交換が生じ、Csの溶出が促進されたものと思われる。さらに、ジオポリマー固型化体での溶出率がセメント固型化体を上回った。ジオポリマー固型化体内では、ゼオライトと間隙水の間でのイオン交換、ジオポリマーと間隙水のイオン交換の2つの反応がCsの溶出に関与する。海水中の陽イオンは両方のイオン交換に影響したものと思われる。セメント固型化体では、7日目付近で溶出率の増加傾向が変化している。これは溶媒交換間隔を1日から7日に変化させた影響であると考えられる。溶媒交換間隔を長くすることで、液相のCs濃度が平衡に達して溶出を抑制した可能性がある。そのため、有姿攪拌試験にお

いて溶媒交換を行う場合は、交換間隔は可能な限り一定とすべきである

4) 有姿攪拌溶出試験結果に基づく拡散係数の決定と長期溶出予測

各固化体の有姿攪拌溶出試験における累積Cs溶出率と時間の平方根の関係から決定した拡散係数は、最も溶出の早かった飛灰の直接セメント固化体で $2.4 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{day}$ であり、最も溶出の少なかったゼオライトCs吸着体のジオポリマー固化体で $3.5 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{day}$ で約7桁の差があった。実験から決定した拡散係数であるため当然であるが、実験における累積Cs溶出率の変化は良好に再現された。

円柱体における拡散方程式から得た解析解を用いて、固化体のサイズの影響を計算した結果を図23に示す。図は飛灰の直接固化体に関する計算結果である。実験供試体の寸法は直径2cm、高さ4cmと小さいため、溶出は縦軸に重なるほど早い。セメント固化体では100Lにすると全溶出まで約20年、200Lとすることで約30年となった。一方、図24は本研究で取り扱った各固化体からのCsの溶出を100年間計算した結果である（寸法は200Lとした）。フェロシアン化銅Cs吸着体を介した固化体では100年で約半分程度のCsが溶出する。フェロシアン化銅の固化体は放射能が極めて高くなるため、処分場の構造は極めて厳重なものとする必要がある。一方で、ゼオライトCs吸着体の各固化体は拡散係数が極めて小さいため、100年後もほとんど溶出は起こらない。



(a)セメント固化体

(b)ジオポリマー固化体

図23 Cs溶出予測に寸法の影響（飛灰直接固化体）

図24 200Lの大きさの固化体からのCsの溶出率

5) 安定化体の溶出試験法の提案とCs溶出の長期予測法

本サブテーマでは、安定化体の溶出試験法と長期溶出予測を提案することを一つの目標として設定していた。そのため、以下に本検討から得られた知見を元に試験法と溶出予測手法を提案する。

① 溶出試験法

- 溶出試験は、有姿のシリアルバッチ試験（例えば、ANSI/ANS16.1（米国原子力学会の固化体溶出特性評価法）など）が望ましい。
- 固化体の場合は円柱が良い。寸法は、直径2 cm、高さ4 cm程度で十分である。供試体が均一に作製できるのであれば、小さな固化体の方が少量の放射性物質を取り扱う試験となるため望ましい。供試体のサイズが小さければ（表面積÷体積、つまり表面積体積比が大きければ）、早期に物質が枯渇する条件となるため試験期間を短くすることができるが、固化体を構成する粒径を考慮して慎重に決定する必要がある。
- 溶媒は蒸留水で良い。過酷環境（塩濃度、凍結融解、温度）等は若干の影響があるが、累積溶出率の桁を変えるようなものではないため、特に考慮する必要はないと思われる（本研究で実施した供試体の範囲に限る）。逆に、供試体表面での析出等により溶出が抑制される可能性がある。
- 溶媒交換を行うシリアルバッチ溶出試験が望ましい。これは、再吸着等を回避するためと、新鮮な楊梅を用いることで溶媒と固化体内部の濃度勾配を高く維持するためであり、より安全側の（保守的な）試験結果を得ることができる。
- 攪拌を行うことで溶出を加速できるため行うべきであると思われるが、必ずしも必要ない。
- 試験期間は、初期の溶出が最も速いため20日程度で構わない。初期溶出挙動から得られる溶出拡散係数を決定し、長期的挙動を計算することで安全側の評価が可能となる。

② 溶出試験の整理

- 累積溶出率を経過時間の平方根に対してプロットし、直線関係にあることを確認する（拡散律速となっていることを確認する）。
- 経過時間の小さい初期時の直線関係にあるデータから傾きを得て、溶出拡散係数を決定する。
- 累積溶出率の傾きは、初期が最大であり次第に増加率が小さくなるので、初期のデータを採用することは安全側となる。

③ 長期挙動予測

- ・ 実寸法に応じて拡散係数を元に長期溶出予測を行う。ただし、本手法によって得る拡散係数は試験初期に最大となるため、それを利用する長期的な予測は、最大の拡散係数が長期的に支配するという最も安全側の予測となる。これは、不確実性の大きな将来予測を比較的短期の試験結果から予測しようとするものであり、そのため、やや過大な保守性が必要と考えているためである。
- ・ また、放射能レベルが異なっても本試験結果を使用できるように、濃度勾配に依存しない溶出フラックスとして整理してもよい。

1. 4. 2. 3 サブテーマ3

(1) 既設の処分施設の構造と安全評価（成果8）

遮断型最終処分場は有害物質を含む廃棄物を公共の水域及び地下水と完全に遮断するための外周仕切設備を設け、同等の覆いで閉鎖される処分施設である。限定された施設から排出される特定有害産業廃棄物のうち、処理を実施しても規定の26の有害物質に関する判定基準を超過するもの、及び通常の産業廃棄物のうち「金属等を含む産業廃棄物に係る基準」を満たさない「有害な産業廃棄物」が遮断型最終処分場での埋立処分対象となる。

1977年に総理府と厚生省から共同で示された「一般廃棄物の最終処分場及び産業廃棄物の処分場に係る技術の基準を定める命令（以下、共同命令）」において、鉄筋コンクリート構造などによる外周仕切設備等について要点や設計例が示されている。1998年の共同命令の改正において、面積50 m²超又は容量250 m³超の埋立地は、内部仕切設備により、一区画の面積が概ね50 m²超又は一区画の容量が250 m³超とならないように区画することが定められた。さらに、外周仕切設備、内部仕切設備は以下の要件を満たすことが求められている。

- ① 一軸圧縮強度が25 N/mm²以上の水密性を有する鉄筋コンクリートで造られ、かつ、その厚さが35 cm以上であること又はこれと同等以上の遮断の効力を有すること。
- ② 自重、土圧、波力、地震力等に対して構造耐力上安全な要件を備えていること。
- ③ 埋め立てた廃棄物と接する面が遮水の効力、腐食防止の効力を有する材料で十分に覆われていること。
- ④ 地表水、地下水及び土壌の性状に応じた有効な腐食防止のための措置が講じられていること。
- ⑤ 目視等により点検できる構造であること。

遮断型処分場は、外周仕切設備等の機能を定期的な点検とメンテナンスにより適切に維持することにより、有害な化学物質の処分場外への漏出を未然に防止する。すなわち、半永久的な処分場の管理が前提となっており、有害物質の環境への漏出をそもそも許さない設計思想である。そのため、長期の安全性評価自体は実施されない。また、廃止基準に明記されている「外周仕切設備について、環境大臣の定める措置が講じられていること。」の措置内容が示されていないために、処分場を廃止することは事実上不可能である。このため、実質的に遮断型最終処分場は廃棄物を長期的な管理の下で保管する施設と位置付けられる（山田・遠藤、2012）。以上より、仕切設備等に用いられる鉄筋コンクリートの経年的な劣化に起因する水の浸入や有害物質の漏出を防止することは可能であっても、地震等による突発的な損傷への対応やフェールセーフ機能の確保については課題を有するといえる。ただし、共同命令改正以降、遮断型処分場は整備されていない。

一方、放射性廃棄物は、第一種廃棄物埋設の対象となる高レベル放射性廃棄物（HLW）と第二種廃棄物埋設の対象となる低レベル放射性廃棄物（以下、LLW）に区分されており、LLWについては発生者責任の原則の下、原子力事業者等が処分場所の確保などの取り組みを進めることを基本としている。LLWは、放射能レベルに応じて「放射能レベルの比較的高い廃棄物」（L1）、「放射能レベルの比較的低い廃棄物」（L2）及び「放射能レベルの極めて低い廃棄物」（L3）の3つに区分されている。LLWの処分方法は、深さの違いにより、中深度処分（地表から70 m以深）及び浅地中処分（地表から70 m以浅）に大別されており、浅地中処分は、さらに処分方式によってピット処分とトレンチ処分に区分されている。ピット処分の埋設設備の構造及び設備は許可基準規則によって定められ、原子力規制委員会による許可基準規則の解釈が示されている。基本的な考え方として、廃棄物の受入開始から埋設終了までの期間においては雨水や地下水の浸入を防止する構造及び放射性物質の漏出を防止する構造が相まって、廃棄物埋設地の限定された区域から放射性物質の工学的に有意な漏えいがないこと、埋設終了から廃止措置の開始（300～400年以内）までの期間においては、放射性物質の漏出を低減することが求められる。そのため、外周仕切設備の設置、その表面の土砂等による覆土、およびその他の人工バリアの設置が必要とされる。また、これらの構造には劣化・損傷に対する抵抗性を有すること、劣化・損傷が生じた場合にも機能が維持・修復できること、地下水の浸入を抑制する機能・放射性物質を収着する機能等の機能のうち一つのものに過度に依存しないことが求められる。ピット処分は、放射能が減衰して影響が有意なレベルを下回るまでの期間において、放射性物質の「漏出防止機能」、「遮蔽機能」、及び「移動抑制機能」を担保する人工バリアと、周辺の土壌や地盤（天然バリア）が持つ「移動抑制機能」によって安全性を確保する処分方式である。

「遮蔽機能」は、廃棄体の定置から覆土完了までの期間は埋設設備自体が、覆土完了後は覆土が遮蔽材として機能することにより、平常時における直接ガンマ線、及びスカイシャインガンマ線により、公衆が受ける事業所周辺の線量を十分に低減する。

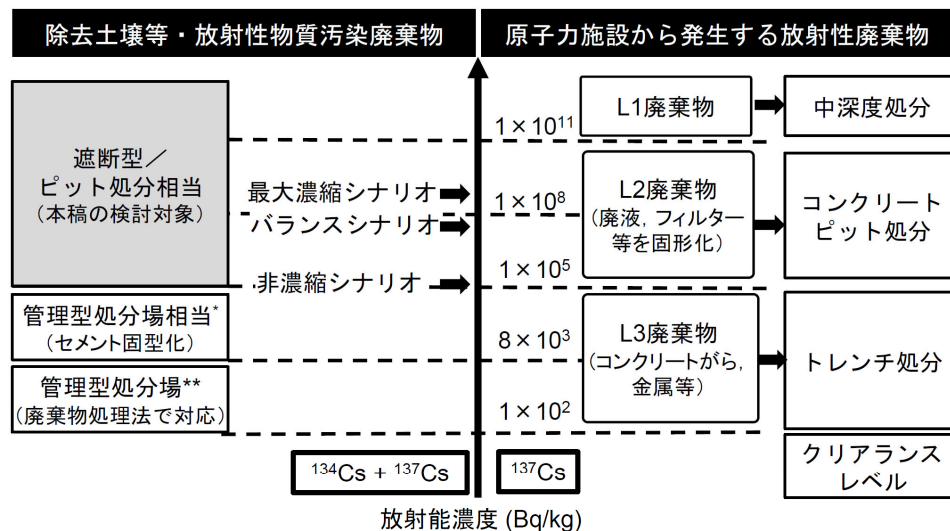
「移動抑制機能」は、「低透水性」による埋設設備に流入する地下水量の抑制、「収着性」による放射性物質の移行遅延、「低透水性及び収着性の組合せ」による廃棄物埋設地外への放射性物質の移動抑制の観点から設計、評価を行い、安全性を確保する。なお、廃棄体の固型化等による溶出性及び拡散性の低下も移動抑制に貢献する可能性が考えられるが、現在の評価においては見込まれていない。

県外最終処分対象の放射能濃度は放射性Cs（Cs-134およびCs-137）で管理をされているが、処分時の主要核種であるCs-137と、法令に定められたLLWの処分方式毎のCs-137濃度上限値を比較する。サブテーマ1を中心に検討されている処理・最終処分シナリオを考慮すると、減容化・処分シナリオ毎の想定放射能濃度は以下のとおりである。

- ・非濃縮シナリオ：9万～20万Bq/kg → $9.0 \times 10^7 \sim 2.0 \times 10^8$ Bq/t
- ・バランスシナリオ：2000万Bq/kg → 2.0×10^{10} Bq/t
- ・最大濃縮シナリオ：7億Bq/kg → 7.0×10^{11} Bq/t

よって、非濃縮シナリオがトレンチ処分相当からやや超える程度、バランスシナリオと最大濃縮シナリオがともにピット処分相当となる。これらの対応関係を図25にまとめる。一方、現実的な最大放射能濃度として六ヶ所サイトの最大放射能濃度と比較すると、最大濃縮シナリオは中深度処分相当に整理され、これ以外のシナリオはピット処分相当となる。

一方で、LLW処分を対象とした評価における主要核種は、L2が ^{14}C （半減期5,730年）、L3が ^{36}Cl （半減期308,000年）であり、いずれも長寿命核種であるとともに、地盤等への収着が小さい核種である。一方、県外最終処分安定化体の主要核種はCs-137（半減期30.2年）であり、長寿命核種ではないことと合わせて土壌等への収着が大きい核種であることが知られている。このようなLLW処分の安全評価の背景との相違を考慮すると、県外最終処分における処分方法と安定化体の放射能（Cs-137）濃度上限値の対応については改めて検討する必要があるといえる。



* 福島県内廃棄物は特定廃棄物埋立処分施設で処分。ただし、対策地域内廃棄物の可燃物を焼却する際に発生する焼却残渣のうち ^{137}Cs の溶出量が150 Bq/L以上のものを埋立処分する場合、および放射性Cs濃度が10万 Bq/kg以下の指定廃棄物を管理型相当の処分場に埋立処分する場合にセメント固型化が必要となる

** 特定一般廃棄物・産業廃棄物の埋立処分では上乗せ基準がある

図25 放射性物質汚染廃棄物の放射能濃度に応じた処分方法と放射性廃棄物処分の区分との比較 (成果1を加筆修正)

基本的な考え方として、対象廃棄物は「遮蔽」、「漏出防止」及び「移動抑制」に係る設計やその安全評価においてピット処分と同様の考え方を適用すべき廃棄物である。また、遮断型最終処分場の現行設計でも「漏出防止」及び「遮蔽」機能は確保できると考えられる。「移動抑制」については、対象廃棄物が放射能濃度・核種の観点からL2に比べて相対的に放射能レベルが低い廃棄物であり、放射性Cs濃度を管理することで放射線リスクの管理が可能となることが大きな相違点である。よって、基本的にはピット処分施設（六ヶ所サイ

ト)を参考として、低透水性と収着性を機能させることで安全性を確保することが妥当である。特に、L2と比較して半減期の短いCsが主要な核種であることから、平常時・事故時を含めて人工・天然バリアの収着力を最大限利用し、安全な放射能レベルに減衰するまで生活環境への移動を遅延させることが合理的な処分システムの検討に重要な観点と考えられる。

一方で、慎重な安全評価を実施しつつも、国際放射線防護委員会（以下、ICRP）の勧告に従い、経済的及び社会的要因に与える影響の違いを考慮して、過度に保守的であることなく計画する必要がある。ICRPは作製中の浅地中処分を対象とした勧告であるTask Group 97報告書案で、「未来の人々の尊厳を尊重することに努める一方、受益／非受益の観点から、彼らの利益を損なってはならない。そのためには、将来世代に与える影響を考慮し、現在世代とのバランスをとることが必要であり、浅地中処分においては、過度に保守的であることなく、将来世代を保護するような慎重な行動方針と決定が必要である。」としている。特に、対象廃棄物の放射能レベルの低さについて、同報告書案で「低レベル及び極低レベル放射性廃棄物の処分で採用される基本戦略は、短寿命放射性核種がもはや有意な被ばくを生じないレベルまで崩壊するまで廃棄物を封じ込め、隔離することであり、処分施設の封じ込め・隔離能力が低下する可能性がある長期においても、線量とリスクが確実に制限されるように、長寿命放射性核種の放射能含有量を制限することである。加えて、非放射性汚染物質から起こりうる影響からの防護も考慮する必要がある。」としている。対象廃棄物の安全評価にあたっては、短寿命放射性核種の濃度が十分に低いことと合わせて、長寿命放射性核種等の放射能含有量の制限が、重要と考えられる。対象廃棄物はL2と比較して、必要となる漏出防止機能（L3は漏出低減機能）が低いレベルで安全性を満足すると想定され、重金属等の非放射性環境影響物質が一定量以上含まれることが予測される場合においては、より一層の配慮が重要になる。

さらに、最終処分場の場所を決定する際には、放射線影響はもとより環境側面や輸送の安全性といった非放射線学的な側面も考慮し、最適化を総合的に検討する必要がある。施設の建設に要する資材の生産に伴う資源やエネルギー消費、建設副産物の発生、建設資材の生産や建設発生土などの輸送ならびに放射性廃棄物の輸送によるCO₂の排出など環境影響が多岐にわたるものと考えられる。発生場所から廃棄物埋設施設までの輸送システムや輸送距離に応じて相当の影響を受けることが想定され、交通への影響なども含めた社会的要因を考慮することが必要である。

（２）バリア材料の基礎物性データの取得とセシウム浸透に関する室内試験

１）コンクリートの基礎物性試験

各配合における時間経過ごとのモルタルフローの結果を図26に示す。ここで、ZV50_W/C50及びZV50_W/C_60については材料分離の傾向が高かったため、供試体作製及び各試験の実施が不可能であった。また、ZV70_W/C40及びZV70_W/C50については、単位水量が少なく、練り混ぜが不可能だったため、他の5つの配合について試験を行った。

ZV70_W/C60は、30分後で、測定不可となった。また、ZV60_W/C40は、60分後で、測定不可となった。その他の3配合は練り混ぜ直後は300mm以上のフロー値が得られ、ZV60_W/C50及びZV50_W/C40は120分後で150mm程度となり、ZV60_W/C60は120分後で200mm程度となった。

図27に圧縮強度試験の結果を示す。結果として、ゼオライト混合率及び水セメント比が高くなるほど強度が低下する傾向が確認された。これは、ゼオライト自体は強度が低く、圧縮強度の結果はほとんどセメントマトリクスの強度に依存していると想定されることから、セメント量が多くW/Cが小さい配合であるZV50_W/C40が高い圧縮強度となったと考えられる。一方で、7日から28日にかけての強度増進については、ゼオライト混合率が高い配合のほうが大きくなった。この理由としては、ゼオライトのポズラン反応によるものだと考えられる。ゼオライトのポズラン反応については、力学性能や長期の化学安定性などにおいて人工バリア性能を高めることが期待されるが、一方で収着性能を阻害することも懸念されることから、ゼオライトの活性についての長期影響評価が必要である。

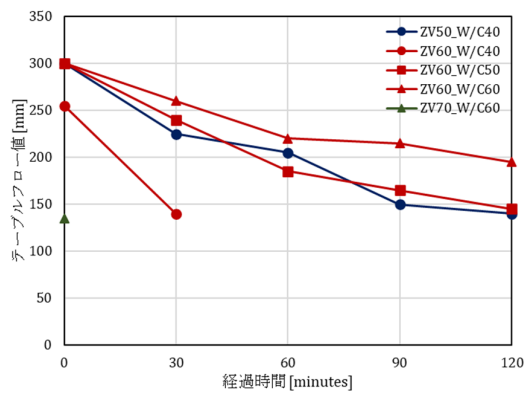


図 26 テーブルフロー試験

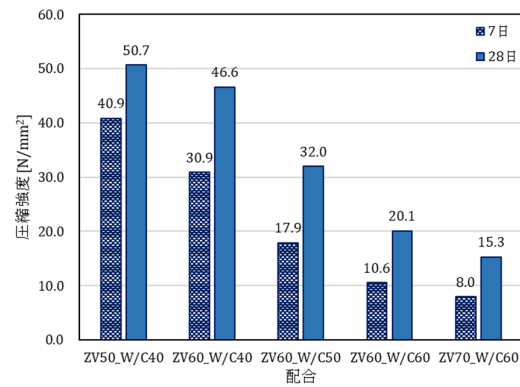


図 27 圧縮強度試験

ゼオライトセメント固化体に対するCsの分配係数(K_d)を図28に示す。予備試験においてCs収着能が高いことを確認できたので、当初液固比100:1で実施予定だったところを500:1についても追加で収着試験を実施した。「収着試験後の収着物質の濃度(C)/初期(ブランク)の収着物質の濃度(C_0)」は、収着試験における収着物質初期濃度や固液比等の条件設定及び試験結果の妥当性を判断する指標であり、 C/C_0 が0や1に偏ると正確な分配係数が得られないことがある。今回の試験では、 C/C_0 が0.01から0.02の低い値であったことから、信頼性の高い K_d を得るためには液固比及び収着物質の初期濃度を十分に検討する必要がある。

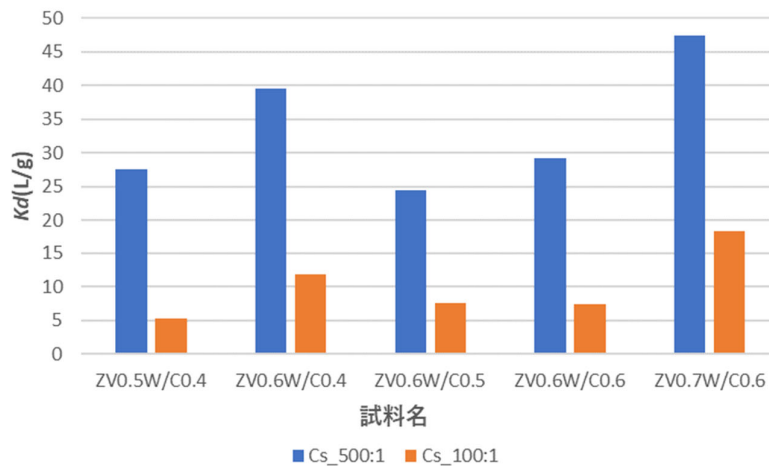


図 28 ゼオライトセメント固化体における分配係数

(2) ペントナイト系材料の基礎物性試験

各種溶液に対するCs平衡濃度 (mg/L) とCs吸着量 (mg/kg) の関係を示した吸着等温線を図29に示す(成果41)。実験結果をHenry型吸着等温線でフィッティングすることによって得られる分配係数 K_d (L/kg) とその決定係数 R^2 を図中に併せて示す。 Ca^{2+} 、 K^{+} イオンが存在しない場合の分配係数 $K_{d,0-0}$ はNa型ペントナイトが 2.05×10^2 L/kg、Ca型ペントナイトが 2.31×10^2 L/kgと大きな相違はみられなかった。Na型ペントナイト、Ca型ペントナイトともに供与液の Ca^{2+} 、 K^{+} イオン濃度の上昇に伴い、Cs吸着性能は低下し、0.50 mol-Ca/L + 1.0 mol-K/L溶液においては、蒸留水と比較して70%程度 K_d が低下した。これは Ca^{2+} 、 K^{+} イオンがCsの吸着と競合し、Csの吸着が阻害されるためである。Na型ペントナイトとCa型ペントナイトの分配係数はいずれの溶液に対しても概ね同様の値を示し、 Ca^{2+} および K^{+} イオンがCs吸着特性に及ぼす影響に大きな相違はみられなかった。

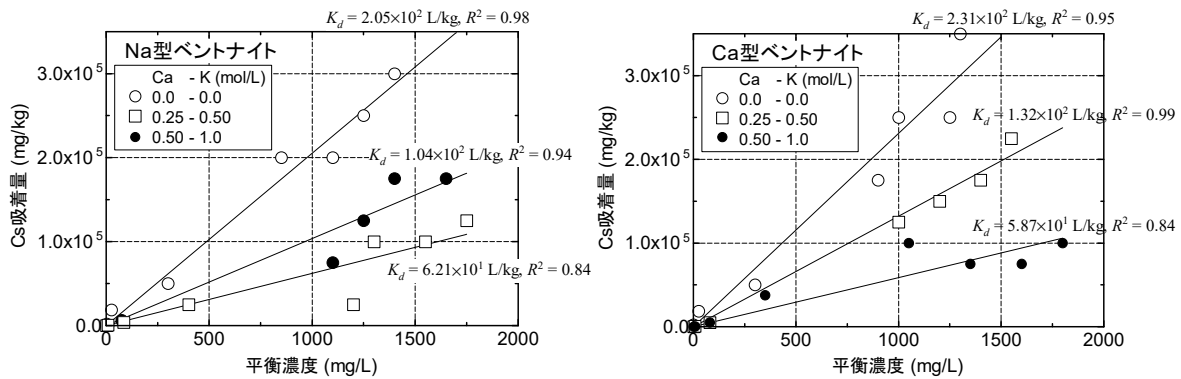


図29 バッチ吸着試験結果と得られた分配係数 (左: Na型ベントナイト、右: Ca型ベントナイト)

本実験では、2水準の異なる濃度で Ca^{2+} 、 K^+ イオンが存在する場合のCsに対する分配係数を同定した。しかし、実際の浸出水の Ca^{2+} イオンや K^+ イオン濃度を事前に把握することは難しいため、任意の濃度でこれらのイオンが存在する場合の分配係数を予測できることが望ましい。ここでは、イオン交換理論をNa型ベントナイトのCs吸着試験結果に適用する。本研究で用いた理論の詳細は山田ら（成果2）によるCs濃縮するための吸着材を対象とした理論に基づいており、詳細についてはそちらを参照されたい。イオン交換理論では、選択係数 $K_{Cs/A}$ を把握することが重要であるため、Cs + Ca、Cs + Kの2成分系でのバッチ吸着試験を実施した。バッチ吸着試験の供与液としてはCa: 0.25 mol/L、0.5 mol/L、K: 0.5 mol/L、1.0 mol/L溶液に所定の初期濃度でCs(CsCl)を溶解させたものを用いた。Cs初期濃度は10 mg/L、100 mg/L、500 mg/L、1000 mg/Lに設定した。その結果、選択係数は平均的に200付近で推移していることが確認された（成果70）。今回の実験のようにCs初期濃度が高濃度の範囲にあるとき、選択係数が一定の値付近で推移することは、ゼオライト等の吸着材を対象とした検討結果（成果2、28）でも確認されており、ベントナイトを用いた今回の実験においても同様な結果が得られた。これら一連の実験結果を下に、3成分系吸着等温線の予測結果と実験値を比較し図30に示す。イオン交換理論から予測した分配係数は実験で得られた値と近い値となった。このことは、個々のイオンに対するCs選択係数が分かれば、複数種のイオンが共存する場合においてもイオン交換理論を用いることで、おおよその分配係数を予測できることを示している。しかし、イオン交換理論に基づいて予測した分配係数は実験で得られた分配係数と比較すると約20%程度の相違が生じる結果となった。イオン交換理論の適用可能性をより詳細に検証するためには、様々な共存イオン濃度での再現性の確認が必要である。

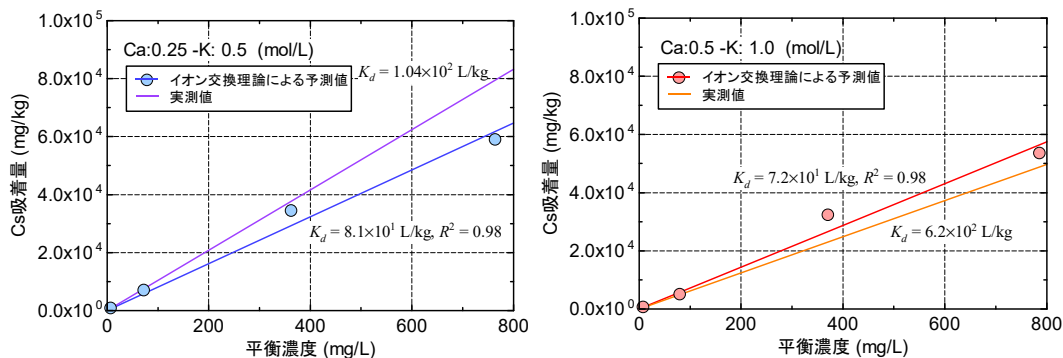


図30 3成分系吸着等温線の予測結果と実験値の比較

(左: Ca: 0.25 mol/L + K: 0.5 mol/L溶液、右: Ca: 0.5 mol/L + K: 1.0 mol/L)

カラム試験で得られた各条件におけるベントナイト混合土の有効粘土密度と透水係数の関係について表16にまとめる。ここで事前水和なしのケースでは、透水試験装置に供試体をセットした後に蒸留水による通水を行わず、高濃度塩水による通水を開始している。

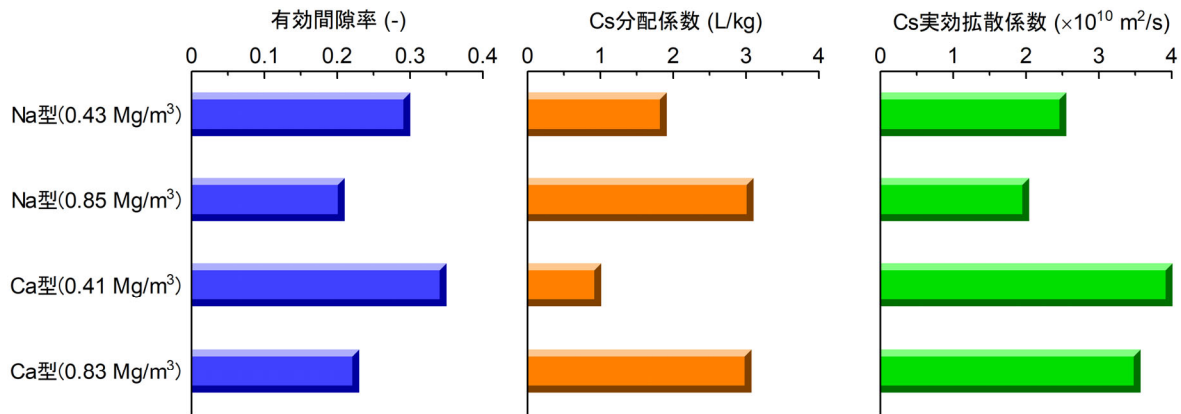
ベントナイト混合率の増加に伴い透水係数は低下する結果となった。透水係数の低下度合いはNa型ベントナイトを使用ケースの方がCa型よりも2倍ほど大きく、Na型ベントナイトを20%混合した場合、高濃度塩水に対しても透水係数は 10^{-11} m/s オーダーまで低下した。Na型ベントナイトとCa型ベントナイトで蒸留水を通水した時の透水係数を比較すると、Na型ベントナイトを使用した方が透水係数が低く、遮水性能が高いことが分かった。高濃度塩水を通水した時の透水係数は蒸留水を通水した時の透水係数より増加する結果となり、高濃度の陽イオンがベントナイトの透水係数を上昇させることが分かった。透水係数の上昇度合いは、

Na型で約6倍の上昇、Ca型で約2倍の上昇となり、Na型ベントナイトの方がCa型ベントナイトより透水係数の上昇幅が大きくなった。この結果は膨潤試験の結果と整合している。膨潤性能においてもNa型ベントナイトは高濃度塩水の影響を強く受け、大幅にその性能が悪化することが分かった。その影響が遮水性の低下にも繋がっていると考えられる。対してCa型ベントナイトは高濃度塩水の影響によって膨潤性能は多少悪化するものの、その影響はNa型ベントナイトと比較して小さく、高濃度塩水条件下においても安定した性能を有していた。

表 16 ベントナイト混合土の透水係数

| 試料の種類 | ベントナイト 混合率(%) | 有効粘土密度 (g/cm ³) | 事前水和 | 透水係数(m/s) | |
|-------|------------------|--------------------------------|------|-----------------------|-----------------------|
| | | | | 純水 | 高濃度塩水 |
| Na型 | 10 | 0.43 | あり | 8.6×10^{-11} | 3.1×10^{-10} |
| | 20 | 0.85 | あり | 1.5×10^{-11} | 8.4×10^{-11} |
| | | | なし | — | 3.3×10^{-10} |
| Ca型 | 10 | 0.41 | あり | 1.4×10^{-10} | 3.6×10^{-10} |
| | 20 | 0.83 | あり | 5.6×10^{-11} | 1.2×10^{-10} |
| | | | なし | — | 1.5×10^{-9} |

高濃度塩水が流下した場合のベントナイト混合土の有効間隙率、実効拡散係数、Cs分配係数等の物質移行パラメータを図31の通りカラム試験の結果から同定した。これらの物性値は、遮断型処分場やプット処分施設相当の最終処分施設構造の封じ込め性能の考察と安全性評価において有用と考えられる。



()内はベントナイト混合土の有効粘土密度

図31 高濃度陽イオンが共存する環境下におけるベントナイト混合土中のCs移行パラメータ

(3) セシウムの浸透試験

安定化体を最終処分する施設について、鉄筋コンクリート構造の遮断型処分場のCsの封じ込め性能について検討した。処分対象とする廃棄物にはCs以外に、津波や処分対象物由来の塩類が、熱処理により高濃縮され、溶出しやすい状態で含まれている。Csほかの成分の溶出抑制された安定化体が処分施設に処分される可能性を考えれば、処分施設からのCs溶出の可能性も小さくなるはずである。しかし、処分施設に仮設灰処理施設からの熱処理飛灰がセメント固型化され処分される場合や一般廃棄物の焼却残渣が近傍に処分される場合等も可能性としては存在し、これらの処分対象物から高濃度塩水が発生する可能性は否定できない。一般に、可燃性廃棄物の焼却・熔融時に発生する排気ガスの無害化のために、石灰が使用され、結果としてCaCl₂もしくはCaClOHが発生し、これらの塩は大気中の水分の吸水による潮解を起こし、飽和塩水を自然に発生する可能性もある。よって、もしも最終処分場における数十年～数百年の管理期間中に廃棄物から塩類が溶出することとなれば、塩害やコンクリート自体の化学的劣化が生じる恐れがあることを考えておく必要がある。先行研究においては、塩化カルシウムによるコンクリートの劣化では複塩の3CaO・CaCl₂・15H₂O (3-1-15と略記)が生成し、膨張圧によって浮きや剥離が生じることが報告されている。鉄筋コンクリートの塩害による鋼材腐食については多くの研究があるが、焼却残渣を処分するという特異な条件でのコンクリートの耐久性として、CaCl₂による化学的劣化に着目して検討した。

コンクリートのCaCl₂による劣化は、コンクリートを構成するセメントペーストとCaCl₂との反応によると考えられるため、検討は普通ポルトランドセメント(OPC)及びより耐久性が高いと考えられる高炉スラグ

微粉末を50%添加した高炉セメント（B50）によりセメントペーストを作製して行った。試験体寸法は40×40×80 mmで、40×40 mmの一面を暴露面とし、その他の面をエポキシ樹脂塗装した。浸漬溶液は、CsClは0.1 mol/Lで共通とし、CaCl₂を0、10、20、30 wt%の4水準とした。比較のため、KClを20 wt%でも検討した。



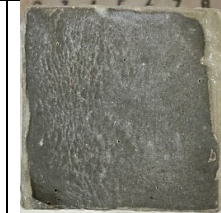

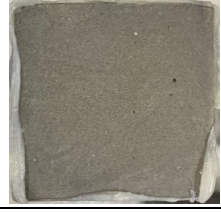
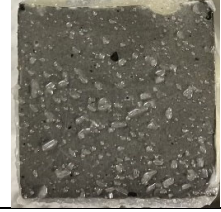
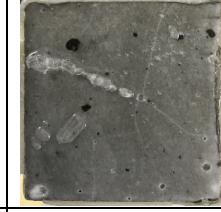
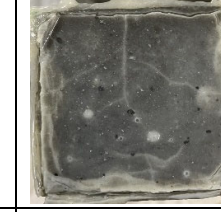
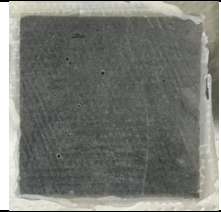
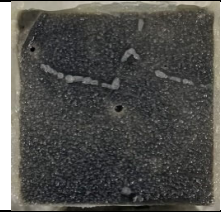

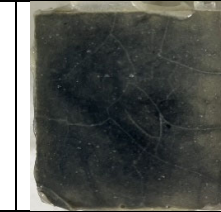


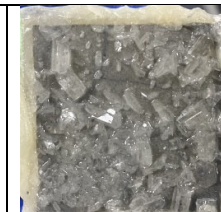

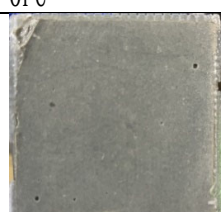
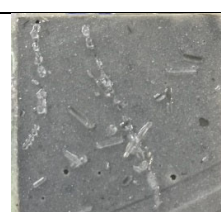
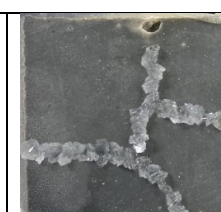

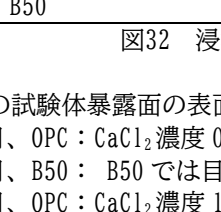
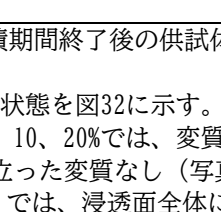
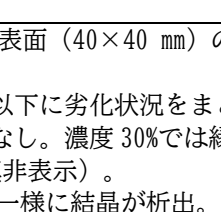
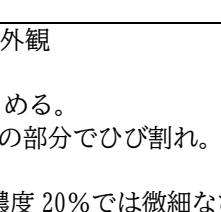
| | | | | |
|-------|---|---|--|---|
| 3 カ月 |  |  |  |  |
| | CsCl 共存塩 0% | CsCl+CaCl ₂ 10% | CsCl+CaCl ₂ 20% | CsCl+CaCl ₂ 30% |
| | OPC | | | |
| |  |  |  |  |
| | CsCl 共存塩 0% | CsCl+CaCl ₂ 10% | CsCl+CaCl ₂ 20% | CsCl+CaCl ₂ 30% |
| 6 カ月 |  |  |  |  |
| | CsCl 共存塩 0% | CsCl+CaCl ₂ 10% | CsCl+CaCl ₂ 20% | CsCl+CaCl ₂ 30% |
| | OPC | | | |
| |  |  |  |  |
| | CsCl 共存塩 0% | CsCl+CaCl ₂ 10% | CsCl+CaCl ₂ 20% | CsCl+CaCl ₂ 30% |
| 12 カ月 |  |  |  |  |
| | CsCl 共存塩 0% | CsCl+CaCl ₂ 10% | CsCl+CaCl ₂ 20% | CsCl+CaCl ₂ 30% |
| | OPC | | | |
| |  |  |  |  |
| | CsCl 共存塩 0% | CsCl+CaCl ₂ 10% | CsCl+CaCl ₂ 20% | CsCl+CaCl ₂ 30% |
| | B50 | | | |

図32 浸漬期間終了後の供試体表面（40×40 mm）の外観

浸漬試験後の試験体暴露面の表面状態を図32に示す。以下に劣化状況をまとめる。

- ・ 浸漬3か月、OPC：CaCl₂濃度0、10、20%では、変質なし。濃度30%では縁の部分でひび割れ。
- ・ 浸漬3か月、B50：B50では目立った変質なし（写真非表示）。
- ・ 浸漬6か月、OPC：CaCl₂濃度10%では、浸透面全体に一様に結晶が析出。濃度20%では微細なひび割れ

が見られ、それに沿うように結晶が析出。濃度 30%では劣化進行、縁の部分に層状にひび割れ。

- ・ 浸漬 6 か月、B50 : CaCl_2 濃度 10%、20%では、微細なひび割れと共にそれに沿う結晶が析出。濃度 30%では一部ひび割れが確認。劣化の程度 OPC よりも小。
- ・ 浸漬 12 か月、OPC : CaCl_2 濃度 10%、20%では結晶の析出量が増加。特に 20%では浸透面の全面で結晶析出。濃度 30%においては劣化が進行し層状のひび割れや浮きによって供試体が破壊。これは CaCl_2 の作用により複塩が生成し、その膨張圧によって供試体側面に塗布していたエポキシ樹脂が壊れ、浸透面以外からも浸漬溶液が作用することで劣化が加速し、図のような状態になったと推定。OPC の CaCl_2 濃度 30%の溶液に 7 か月浸漬した時点の OPC の浸透面を写真 1 に示す。この時点で表面のセメントペーストの軟化や浮きは進行しており、さらに、エポキシ樹脂の一部が割れていることが確認できた。浮きや剥離が生じることで CaCl_2 溶液が内部へより作用しやすくなり、劣化の進行が加速することが考えられる。
- ・ 浸漬 12 か月、B50 : OPC と比較すると劣化が抑制。濃度 30%では、ひび割れが浸透面中心まで到達。

X線回折分析によると、 CaCl_2 濃度10%、20%で見られた浸透面に析出した結晶は、Portlandite ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) であった。 CaCl_2 が作用することでセメント硬化体中のPortlanditeが溶出し、表面で再結晶化した。 CaCl_2 30%溶液に12か月浸漬したOPCとB50については、供試体をひび割れに沿って割裂した際にひび割れに沿った形で白色の粉末状の物質が析出していた。

OPCの劣化部の主な鉱物はCalcite、フリーデル氏塩、3-1-15相であった。 CaCl_2 の作用と塩化物イオンの作用により複塩であるフリーデル氏塩や3-1-15相が生成し、その膨張圧によって劣化が進行していた。また、浸漬終了後からXRDの分析までの期間が約2か月であったため、炭酸화가進行した。

B50のひび割れに析出した塩類からは3-1-15相のみのピークが得られ、セメント硬化体中の空隙に生成した3-1-15相がその生成に伴う膨張圧によって空隙を広げ、ひび割れを発生させたと考えられる。

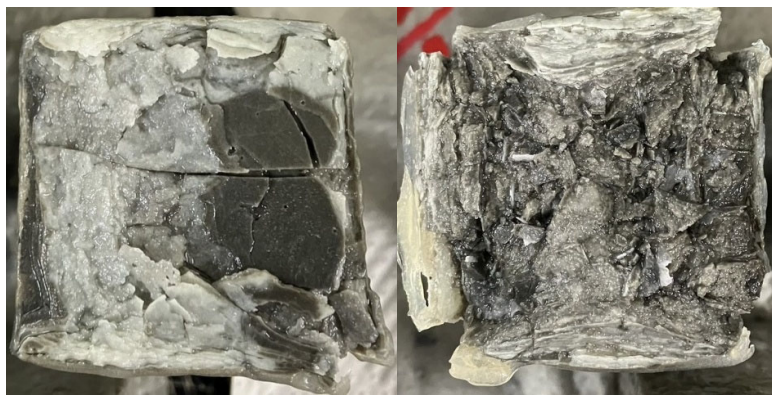


写真1 $\text{CsCl}+\text{CaCl}_2$ 30%の浸漬溶液に7か月浸漬した時点のOPCの浸透面の劣化

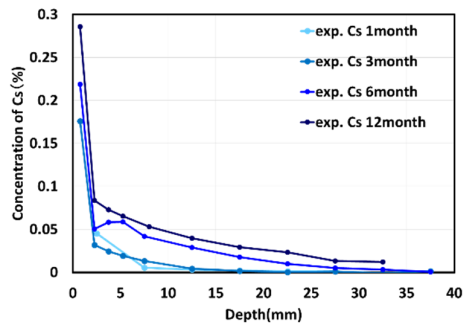
次に、Csの浸透状況を図33に示す。いずれも材齢の進行とともに、Csは深部へと浸透した。ただし、その進行度合いは、セメント種類と CaCl_2 濃度により大きく変化した。

- ・ OPC 共存塩 0%では、材齢の進行とともに、深部へ浸透するだけでなく、表面濃度も増加した。これはCa溶脱により、アルカリ金属すべての吸着量が増加した可能性がある。
- ・ CaCl_2 の存在により、Csの浸透プロファイルは単純な拡散プロファイルから複雑化した。
 - 最大深度は12か月で比較するとおよそ40 mmであり、 CaCl_2 の影響は小さかった。ただし、浸透先端に至るまでの濃度が大きく増加し、その状況が濃度により変化した。
 - 濃度10%では、材齢1~6か月では拡散プロファイルのような単調減少を示したが、材齢12か月では表層5 mmにおいて極小値を示した。
 - 濃度20%では、極小の位置が3 mmでその材齢が3~6か月となり、12か月では単調減少となった。
 - 濃度30%では、すべての材齢で（12か月は測定できていない）、表層から内部に増加傾向を示し、極大値が材齢とともに奥に移動した。
- ・ B50 共存塩 0%では、OPCよりも表面濃度が高くなったが、OPCでは12か月で40 mm浸透したのに対し、材齢が経過しても浸透深さは変わらず、10 mm程度と小さかった。
- ・ CaCl_2 が存在しても、浸透深さは15 mm程度と大きくは増加しなかったのはOPCと同様である。
- ・ OPCで見られたように、B50でも、 CaCl_2 が存在すると、表層付近に極小値が見られた。10%では12か月のみ、20%では3~6か月、30%では極小値はなく3~6か月で極大値のみが認められた。
- ・ OPCとB50で共通することとして、 CaCl_2 の存在により、Csの浸透先端に至るまでの経路でCs濃度が著

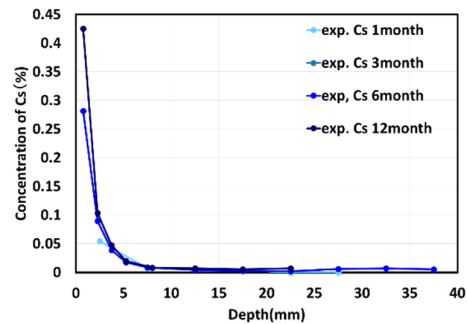
しく増加したが、これは、組織が劣化することで、何らかのCs吸着機構が発生しているものと推定される。

- さらに、OPCとB50で共通するが、 CaCl_2 が存在すると表面濃度は抑制される。CsCl単独では、溶液にCa溶出することで、Csを含むアルカリ金属がセメントペーストにCaになって吸着されるが、 CaCl_2 が存在すると、Ca溶脱が抑制されることがその原因と推定できる。

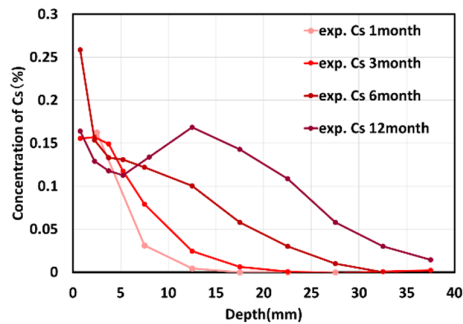
Csの浸透は拡散による移動が支配的であると考えられているが、以上の結果から、Csの表面での吸着や、共存塩類による劣化や変質によってセメント硬化体内部のCsの濃度分布は影響を受けていることが分かる。B50では、表面Cs吸着量がOPCよりも大きくなり、 CaCl_2 が存在しても内部の浸透に関しても浸透深さが大きくなり、Csの移動を停滞させる。以上の結果よりCsの浸透抵抗性はB50の方が高い可能性が示唆された。



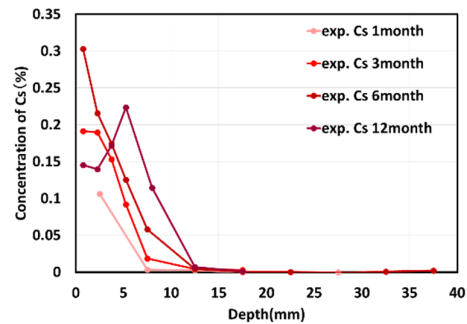
(a) OPC、共存塩 0%



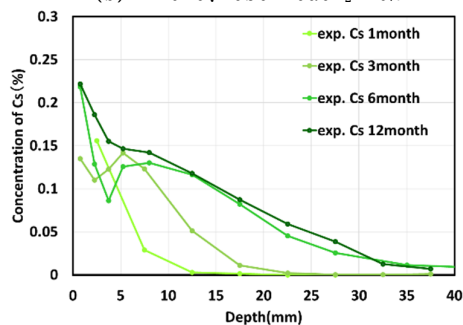
(e) B50、共存塩 0%



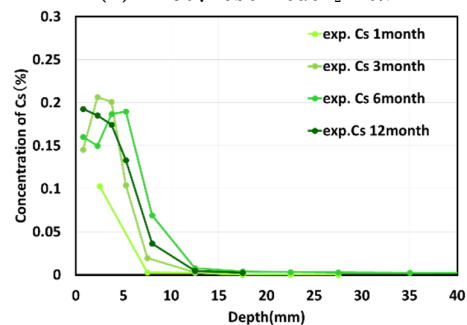
(b) OPC、CsCl+ CaCl_2 10%



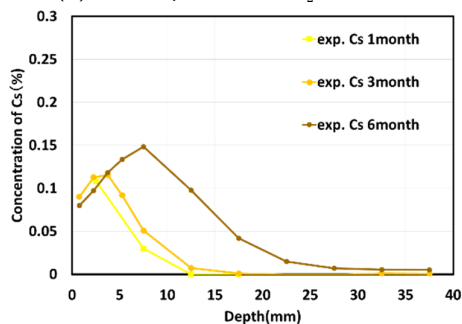
(f) B50、CsCl+ CaCl_2 10%



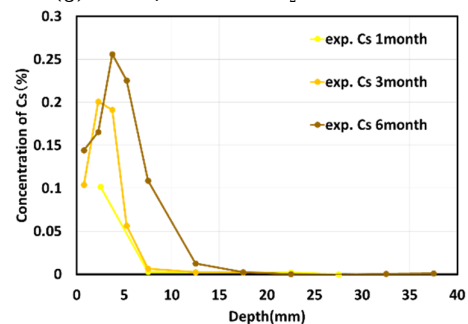
(c) OPC、CsCl+ CaCl_2 20%



(g) B50、CsCl+ CaCl_2 20%



(d) OPC、CsCl+ CaCl_2 30%



(h) B50、CsCl+ CaCl_2 30%

図33 異なる CaCl_2 含有量の溶液からOPCとB50へのCs浸透プロファイルの材齢依存性

CaCl₂に加え、KClのCs浸透に及ぼす影響を図34に示す。評価材齢は6か月である。OPCとB50、いずれもCsの浸透深さという点では、共存塩が大きな影響を与えなかったが、そこに至るCsプロファイルは大きく異なった。いずれのセメントでも、共存塩により、表面から深部への浸透途中のCs濃度は増加した。OPCでは、CaCl₂の効果が顕著に大きかったが、B50では同等であった。KClは、Cs浸透に影響しないという考えもあったが、本結果によると、CaCl₂に合わせて、熱処理飛灰に多く含まれるKがCs浸透に影響を及ぼす可能性が示された。

長期的Cs浸透を考えると、OPCに比較し、高炉スラグを50%添加したB50が浸透抵抗性は大きい、時間の経過とともに組織の劣化が進行することで、Csの浸透も大きくなるものと考えられ、さらに現実の熱処理飛灰の化学組成を考えると、Kが複合的にCs浸透を大きくする可能性がある。

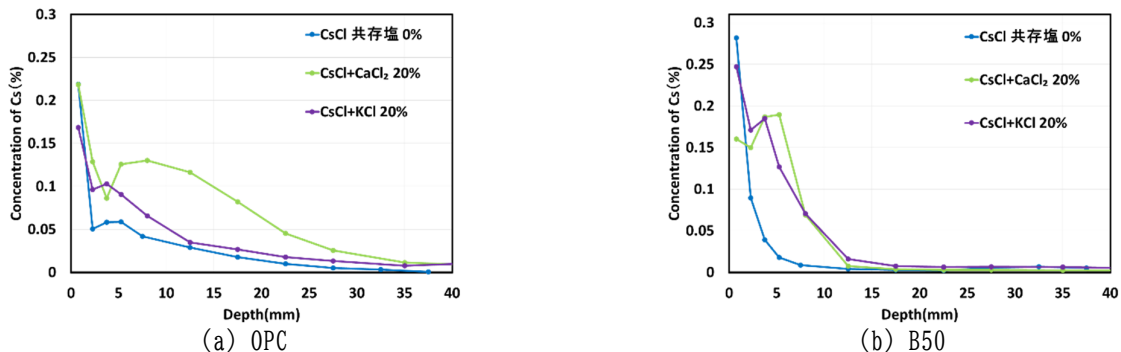


図34 Cs浸透プロファイルに及ぼすCaCl₂とKClの影響(材齢6か月)

参考文献

- 市川恒樹、山田一夫、芳賀和子(2022)：セシウム吸着剤を用いた放射性セシウム汚染廃棄物の超減容化処理－イオン交換体とイオン交換反応、環境放射能除染学会誌、10(2)、77-96
- 大山 将・中島卓夫・遠藤和人(2020)：特定廃棄物セメント固型化処理における配合設計について、第31回廃棄物資源循環学会研究発表会、pp. 435-536
- 環境省(2024)：クリーンセンターふたば埋立処分実施要綱(案)、令和6年1月
- 環境省環境再生・資源循環局(2025)：第10回中間貯蔵施設における除去土壌等の再生利用方策検討ワーキンググループ、参考資料4、飛灰洗浄・吸着・安定化技術実証事業の実施状況について、2025年2月7日
- 環境放射能除染学会(一般社団法人環境放射能とその除染・中間貯蔵および環境再生のための学会)(2021)：県外最終処分に向けた技術開発戦略の在り方に関する研究会活動報告書Ver.2、p. 42
- 原子力発電環境整備機構：国内産ベントナイトおよびベントナイト混合土の基本特性データ、2022、https://www.numo.or.jp/technology/technical_report/TR-21-02.pdf (2024年10月1日参照)
- 杉橋直行・馬場勇介・遠藤和人(2015)：放射性セシウムを含む一般廃棄物焼却飛灰のセメント固型化処理に関する研究、土木学会論文集E2、71(1)、pp. 14-28
- 高崎幹大・木戸玄德・南 公隆・川本 徹・吉野和典(2016)：フェロシアン化銅粉末の粒径とセシウム吸着特性、第5回環境放射線除染研究発表会要旨集、p. 83
- 西崎吉彦・市川誠吾・寺崎淳一・平前太基・有馬謙一・倉持秀敏・大迫政浩(2020)：ばいじん等からのCs分離回収とその安定化技術の検証、第31回廃棄物資源循環学会研究発表会、pp. 422-426
- 前原裕治・佐野良和・永山貴志・釜田陽介・上林史郎(2017)：溶融飛灰中放射性セシウムの水溶解－吸着による再減容化に関する基礎的検討、第28回廃棄物資源循環学会研究発表会、pp. 365-366
- Inui, T. et al.: Cesium sorption/desorption characteristics of sodium bentonite affected by major cations in leachate from MSW incinerator ash, Japanese Geotechnical Society Special Publication, Vol.2, No.53, pp.1841-1844, 2016
- Ishikawa, S, Maruyama, I, Takizawa, M, et al.(2019): Hydrogen Production and the Stability of Hardened Cement Paste under Gamma Irradiation. J Adv Concr Technol., 17(12), 673-685

1. 5. 研究成果及び自己評価

1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献

<得られた研究成果の学術的意義>

サブテーマ1では、県外最終処分を実現する上でリスクやベネフィットの洗い出しを行った。リスクとしては、多量の温室効果ガス排出につながる処理プロセスや輸送プロセス、処分システムにおける長期安全性評価である。一方、ベネフィットとしては、技術への需要増加等があり、そうしたリスクや機会が県外最終処分実現の社会受容性にどのように影響するかについてサブテーマ3と共に評価を行い、減容化技術の選択と最終処分場の施設成立性の関係を整理した。このように、定性的な傾向や定量的な予測を含むシナリオを含め、人-環境システムの将来可能性について、統合された評価がなされたことはなく、学術的にも意義が大きいと考える。

熱処理飛灰の洗浄・濃縮処理に用いる吸着材に関する基礎的研究では、汚染飛灰の減容化という観点から、灰洗浄液から最大濃縮することを念頭に、理論的、及び実験的検討を行った。最大濃縮を行うには、カラム濃縮では吸着材に膨大な量の溶液を作用させる必要があり、多数の実験は現実的ではないことが理論的にも実験的にも分かった。これまでは吸着材のCs吸着特性は固液間のCsの分配比である分配係数を用いて表現されてきた。しかし、溶液組成が変化すると分配比は変化し、最大吸着量がどうなるかの予測には使えなかった。そこで、陽イオン交換容量とCs選択係数という吸着材の特性値をもとに、イオン交換理論により、任意の飛灰洗浄液の化学組成と液固比でのCs吸着挙動を計算できるようにした。このような理論的取り組みに前例はなく、学術的意義が大きい。

事故時の天然バリアへのCs吸着の評価に関して、バッチ吸着試験法の留意点等を明らかにし、カラム吸着試験との比較を行い、平衡状態と非平衡状態に着目して、前者を事故時漏洩水の流量が少ないとき、後者を多いときと仮定して評価した。バッチ吸着試験は、1点法で求める場合もあるが、確実に実施するためには少なくとも3点以上の多点法で実施するべきと考えられる。単純な試験系であるにもかかわらず、多点法で得られた実験値がバラツキ、近似曲線の相関係数が大きくなることも多い。そこで、過去の検討を元にして、特に初期濃度と液固比の調整を適切に行うことで、確実に多点法で、適正な分配係数を得ることができると明らかにした。本試験方法の考え方は、吸着試験における基本的な留意事項に近く、広範な学術領域へと展開可能と思われる。

水のγ線照射による G_{H_2} は0.45であり、 G_{H_2} が5近くになる材料は、有機物を含めて殆ど知られていない。セメントペースト硬化体にさらにポリマー含浸して水素ガスを放出しやすくすることにより、水素の供給源として安定化体を使う道もあるのではないかと、この知見を得た。本研究成果は、これまで報告されていない水素ガス発生挙動であり、学術的な意義は大きいと考えられる。

サブテーマ2では、各種安定化体の溶出試験を実施することで、県外最終処分対象物の溶出特性を網羅的に把握することができた。このような安定化体からのCsの溶出挙動に関する網羅的な検討についての報告はこれまでない。

特定廃棄物で10万Bq/kg以下の焼却残渣については、セメント固型化による処分が行われているが、溶融飛灰のセメント固型化は行われていない。溶融飛灰にはセメントの硬化阻害成分であるZnやPbが多量に含まれる。今回の検討からアルミン酸Naの添加により、溶融飛灰の固型化が可能で、また具体的な配合を示した学術的意義は大きい。

各固型化体に関して得た学術的知見を以下に列挙する。

溶融飛灰の直接セメント固型化は、Csを物理的に捕捉しているため、Csの溶出は避けられないが、より高い強度とすることで拡散係数を低下させ（実飛灰で検討）、固型化体のサイズを大きくすること（予測計算で検討）で、全溶出までの時間を稼ぐことができることを示した。ジオポリマーによる飛灰直接固型化体は、アルミノケイ酸塩の構造からCsを捕捉する能力を有するためにCsの全溶出が起これないことを示した。また、養生温度を上昇させることでCsの溶出率を下げることも示した。

フェロシアン化銅Cs吸着体を介した固型化体は、熱分解処理を行うことでCsが易溶性となるため、セメントもしくはジオポリマーで固型化しても比較的高い溶出が起これることを示した。本固型化手法は多量のCsを含み、放射能が極めて高いために厳重な構造を有する処分施設が必要となることを示した。

ゼオライトCs吸着体を介した固型化体からCsの溶出はほとんど起これない。固型化される対象自体がCsを保持する能力（吸着能）を有しているからである。ゼオライトCs吸着体からのCsの見かけの拡散係数は10-13m²/dayと極めて低くなることも示した。

そして、長期的な溶出挙動を評価するための試験法の開発は、長年の課題であるが、本研究では有姿シリアルバッチ試験によって体系的に整理する方法について、実験的かつ理論的に説明することで、溶出試験結果と実挙動を繋げる研究の一端を担うことができたと考えており、学術的な意義は大きい。

サブテーマ3では、封じ込め性能を担うセメント系材料およびベントナイト系遮水材の人工バリアとしての基本物性データを取得した。特に、共存塩類として高濃度のCaCl₂やKClが作用する場合の影響を分析し、材料の変質による封じ込め性能の変化、そのメカニズム、さらには材料設計による影響軽減についての知見を

提示できたことは、学術的にも意義のある成果が得られたといえる。具体的には、以下の知見を得た。

Cs収着能が高いゼオライトを混合したセメント系材料においては、既往のセメント系材料（現在操業中の低レベル放射性廃棄物処分の廃棄体周辺に配置されているセメント系材料）のCs-137の分配係数である0.03 g/Lと比べ、10.9 g/Lの分配係数となった。K共存下でのCs分配係数は、1～2桁小さくなった。また、長期強度増進が大きく、これはゼオライトのポゾラン反応によるものと考えられた。ベントナイト系材料においては、 Ca^{2+} 、 K^{+} イオン濃度の上昇に伴い、Cs吸着性能は低下するが、Na型ベントナイトとCa型ベントナイトの分配係数は概ね同様の値を示し、分配係数はイオン交換理論によって説明できた。また、ベントナイト系材料の透水係数は、高濃度塩水を通水することで蒸留水を通水した時の透水係数より増加する結果となり、高濃度の陽イオンがベントナイトの透水係数を上昇させることが分かった。この透水係数の上昇度合いは、Na型で約6倍の上昇、Ca型で約2倍の上昇となり、Ca型ベントナイトを用いることで透水係数の上昇幅を抑制できることが示された。さらに、セメント系材料へのCs浸透については、高濃度塩が共存することで表層が変質し、Csの浸透も増加することが分かった。一方、結合材に普通ポルトランドセメントではなく高炉セメントを使用することで共存する高濃度塩による化学的な変質を大幅に抑制でき、Csの浸透も小さくなることが示された。

<環境政策等へ既に貢献した研究成果>

環境省が10回にわたって開催した「中間貯蔵施設における除去土壌等の減容化技術等検討ワーキンググループ」において、本研究成果の一つであるシナリオ評価や、溶出特性、最終処分施設の在り方について、研究成果に基づいた助言を行った。なお、環境省も最終的にシナリオ評価をとりまとめているが、本研究での仮定条件等を取り除いた現実的な物量が用いられているため、最終的な安定化体の数量等は異なっている。

また、環境省に対して、セメント固型化物からの溶出特性の考え方、最終処分場の放射性Cs挙動の考え方、水処理施設や将来的な維持管理に向けた留意点等について助言を行い、実施設において、本研究成果の一部の知見が実装されている。

<環境政策等へ貢献することが見込まれる研究成果>

環境省は、「中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略 工程表」にしたがって2024年度に基本的な考え方や、最終処分の方向性の検討について書かれた資料を発出した。本研究で実施した、シナリオ評価や、溶融飛灰の直接セメント固型化、最大濃縮の技術的検討、高濃度安定化体からの水素ガス発生挙動、長期的な放射性Cs溶出挙動の評価方法、封じ込め施設に求められる要求性能に関する知見は、これまでに検討されていないため、県外最終処分を実現させるために2025年度以降に必要な技術開発項目であり、今後の環境政策に貢献できる知見を含んでいる。

これまで、焼却飛灰の直接セメント固型化は実施されているが、溶融飛灰の直接セメント固型化は実施されておらず、かつ、焼却飛灰に比較して溶融飛灰の固型化が困難であることを理論的に説明しつつ、その解決策についても提示している。また、最大濃縮を目指すのであれば、カラム吸着法では最大吸着までに長い時間を要するため化学共沈法により最大濃縮を行うプロセスを提案し、現在、JESCOと実汚染飛灰を利用し、直接セメント固型化と化学共沈法の有効性を実証する取り組みへと本研究は発展しており、国が実施してきた飛灰洗浄等実証事業を補完する点で、環境行政への貢献も期待できる。

安定化体を最大濃縮シナリオ(SF-3、7億 Bq/kg)、バランスシナリオ(SF-2、2000万 Bq/kg)で作製した場合の、水素ガス発生の見積りを粒子・重イオン輸送計算コードPHITSを用いて計算し、安全を見て G_{H_2} を10とした場合、処分場での水素ガスの爆発限界(4%)を超えるまでの時間は、SF-3の場合は190日、SF-2.1では33年となったことから、最終処分場において水素ガス発生リスクを考慮すべきとの結論を得ている。このことは、最終処分の方向性の検討に貢献できる知見であり、強制換気もしくは自然換気レベルの検討に役立つといえる。

今後、最終処分を進めていくにあたり、安定化体は現場でロット毎に溶出特性を評価することになると推定されるが、試験条件（供する試料のサイズ、用いる溶媒、試験法（振盪／拡散）、試験時間）、評価指標（濃度、フラックス、拡散係数等）の情報について本研究で示すことができた。また、安定化体の具体的な溶出試験法とその結果を用いたCs溶出の長期予測法も具体的に示したことから、今後の環境政策（最終処分の方向性の検討）において一助になると考えている。

既存の低レベル放射性廃棄物処分施設や遮断型最終処分場の設計思想や安全性評価手法を比較検証することで、熱処理飛灰を洗浄・吸着処理した場合の安定化体の最終処分施設の設計や安全性評価には、放射性処分施設の中のL2が参考となるものの、低レベル放射性廃棄物とは異なり、事故由来放射性物質は半減期の短いCs-137が主要な核種であることから、平常時・事故時を含めて人工・天然バリアの収着力を最大限利用しつつ、構造基準や維持管理基準を考えていくことが重要であることを示した。この基本的な考え方は、今後の最終処分場の方向性の検討において重要と考えられる。

1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価

<全体達成状況の自己評価>

2. 目標を上回る成果をあげた

「県外最終処分を実現させるための技術システムの開発研究」（国立研究開発法人国立環境研究所、遠藤和人）

| 全体目標 | 全体達成状況 |
|---|---|
| 中間貯蔵施設内やその周辺地域の環境回復に向け、除去土壌や副産物の有効利用や汚染廃棄物等の県外最終処分を着実に実現するため、効率的かつ低コストな技術の組合せを意識した技術システムのシナリオ最適化の考え方を提案する。同時に、国の戦略目標の2024 年度以降に必要と考えられる安定化体の長期安定性（溶出性等）評価手法、ならびに県外最終処分施設に求められる封じ込め性能について技術的知見を提示する。 | <p>（１）県外最終処分に向けた減容化技術導入と安定化方法の組合せに関するシナリオを提示することができた。また、シナリオに応じた最終処分システムも提案し、それぞれのシステムにおける放射性Csの挙動、ならびに、施設設計の在り方について提案した。国が実施していない減容化技術として、溶融飛灰の直接セメント固型化と最大減容化についての実験的検討も実施して研究成果を公表できた。また、国で具体的に検討が進められていない水素ガス発生挙動について、室内試験から将来的な検討の必要性を示すデータを得ている。</p> <p>（２）シナリオ毎の減容化技術と安定化方法を再現し、各種の安定化体を作製して、それぞれの溶出挙動を示す国内初のデータを得た。また、長期的な溶出挙動を室内実験から予測するための一連の考え方を整理し、保守的な考え方に則りつつ、試験労力を最小限にする手法を提案することができた。</p> <p>（３）シナリオに応じた安定化体は、それぞれ溶出する塩濃度や放射性Csの溶出挙動が異なる。異なる溶出挙動に応じた封じ込め施設である最終処分場の構造に係る留意点や挙動解明について実験的に明らかにした。全ての挙動を説明できてはいないが、低レベル放射性廃棄物処分施設（炉規法）と遮断型最終処分場（廃掃法）における安全設計の考え方を整理することで、過剰にならず、工学的に確からしい方法によって検討するための基本的な考え方について取り纏めており、どのような挙動であっても考え方を統一するための基本方針を提示するに至っている。</p> |

<サブテーマ1 達成状況の自己評価>

3. 目標どおりの成果をあげた

「県外最終処分に向けた導入技術システムのシナリオ最適化」（国立環境研究所、遠藤和人）

| サブテーマ1 目標 | サブテーマ1 達成状況 |
|--|--|
| 本研究の最終目標は、県外最終処分に向けた減容再生利用技術戦略の戦略目標である2024年以降の研究や技術開発の方向性、県外最終処分の具体的な検討に資する研究成果を提供することである。本申請課題であるサブテーマ1では、そのための処理・処分シナリオを複数提示し、経済性も含めた総合的評価を行うことで処理から処分までを一体とした導入技術の選定シナリオとその考え方を明らかにすることを目標としている。サブテーマ2と3は、それぞれ具体的な県外最終処分を考えるための安定化体（最終処分される廃棄体）の長期安全性評価と、最終処分施設自体の躯体（封じ込め性能等）に関する検討である。シナリオ評価において、どのような安定化体 | <p>（１）処理・処分シナリオ評価と処分時における放射性Cs挙動評価に関する研究の目標としては、「処理・処分シナリオを複数提示し、経済性も含めた総合的評価を行うことで処理から処分までを一体とした導入技術の選定シナリオとその考え方を明らかにすること」であった。本研究で三つのシナリオを策定することで、今後県外最終処分を実現する上で必要となるコスト把握や、処分システムの長期安全性を求めることができるようになった（図3、図4、5、表8）（成果29、54、61、107）。またCO₂排出量の評価を行うことでシナリオ毎の得失を把握できるようになり、研究目標を十分に達成した。</p> |

を作製する必要があるのかという要求性能を明らかにすることは、導入される導入技術の選定において重要であり、最終処分施設の構造躯体は、経済性のみならず維持管理要件等にも関係することから、各サブテーマは密接に関係しており、サブテーマ間の連携が必須となっている。なお、サブテーマ1では減容化技術の開発自体は実施しないが、溶融飛灰の減容工程における洗浄・濃縮技術について、吸着材のCs-137に対する分配係数という見掛けの吸着性能ではなく、イオン交換理論を用いることにより、実践的な吸着材管理の考え方についての検討を行うこととする。更に、サブテーマ2では考慮されていない安定化体からの水素ガス発生評価（高濃縮時に放射線分解による水素発生が水素爆発に繋がる恐れ）について、サブテーマ1で研究することとし、その成果をサブテーマ3の処分施設の構造要件へと反映させる。

具体的なシナリオ検討の一例を以下に示す。

例えば、減容化していない高濃度土壌は放射性Csが安定的に吸着していることから、溶出性（系外への放出性）が小さく、例えば10万Bq/kgを超過していたとしても適切な遮蔽を行うことで最終処分できる可能性が高い（制度的制約というよりも安全性評価という観点）。ただし、大きい容量の最終処分施設を整備する必要があり、運搬やコスト、維持管理といった観点で欠点がある。仮に熱処理によって減容化した場合、熱処理飛灰の洗浄・濃縮工程が必要で追加のコストが発生するが、最終処分量は相当に小さくできる可能性があり、最終処分施設の整備は比較的容易になると想定される。このようにコストと最終処分の受け入れやすさとのバランスが減容化戦略において重要であり、テーマ3で検討する県外最終処分に対する社会受容性とも関係する。県外最終処分を全国で1箇所とすることに社会受容性があれば、処理コストがかかっても処分量を最小化した方が円滑な県外最終処分が可能となるが、数億Bq/kgといった超高濃度にまで濃縮した安定化体では受け入れられないことも考えられる。一方、各都道府県に1箇所ずつ整備することの社会受容性が大きい場合、運搬コストと労力を考えれば減容化は必須であるが、処分施設をいくつも整備することを考えると、重厚な処分施設ではない方が現実的といえる。そのためには、減容化率を制御し、安定化体が高濃度にならないようにしつつ、溶出性を極めて低く制御可能な吸着材と安定化工法の選択が求められることになる。このように、社会受容性や最終処分施設構造、安全評価上から求められる溶出性の上限値、そして安定化体の長期安定性と維持管理の考え方によって、導入すべき減容化技術が選択されることになる。以上は一例であるが、既に実施されている熱処理飛灰や、吸着材の選定と安定化工法の組み合わせ、分級後の高濃度土壌（脱水ケーキ）など、減容化工程の全てにおいて種々のシナリオが存在し、かつ二次廃棄物や副次産物が発生する。本サブテーマでは、これら多くの処理・処分シナリオを網羅的に把握・評価し、

(2) 熱処理飛灰の洗浄・濃縮処理に用いる吸着材に関する基礎的研究の目標は、「イオン交換理論を用いることにより、実践的な吸着材管理の考え方についての検討」「数億Bq/kgといった超高濃度にまで濃縮した安定化体」について明らかにすることであった。従来の評価法では予測できなかった任意の化学組成の飛灰洗浄液に対し高濃縮に必要な大きな液固比条件でのCs吸着を理論解析（図6）（成果51）できるようになり、かつ使用する吸着材の品質管理手法を提案し、従来のカラム濃縮よりも短時間で極限まで高濃縮できる化学共沈法（図9、10）（成果21）を提案し、研究目標を十分に達成した。

(3) 天然バリアとしての土壌へのCs吸脱着挙動に関する基礎的研究の目標は、「自然地層に関する吸着定数の既存データを正しく用いるための考え方を提示すること」「地盤内における漏洩水の流速依存性・吸着妨害物質の影響等を明らかにすること」であった。Cs吸着定数を適正に導出または文献値から利用するための考え方を理論的かつ、実験的に明らかにできた。天然バリアに到達した漏洩水のCs吸着形態・流速依存性・共存イオンによるCs吸着阻害影響をバッチおよびカラム吸着試験より把握できるようになり、研究目標を十分に達成した（表15、16）（成果23、40）。

(4) Cs-137による水の放射線分解のため安定化体から発生する水素ガスに関する基礎評価の目標は、「考慮すべき高濃縮した吸着材の安定化体を設定し、水素ガス発生を測定する体制を整えること」、「前年度準備した水素ガス発生量測定方法により、標準的な安定化体で水素ガス発生が懸念されるものを実際に評価すること」、「特に水素ガス発生が顕著となると考えられる含水率が低く温度が高い条件で水素ガス発生量評価を行い、リスクの判定と必要に応じて対策を提示すること」であった。これらの目標は、ほぼ全て達成できてはいるが（図11、12、13）、放射線照射によってセメントから発生する水素ガスの放射線化学収率(G_{H_2})の最終値は、セメントペースト硬化体中の水素ガスの驚くべき拡散速度の遅さ（90℃でも1年以上かかる）からまだ決定できていない（図14）。

マスバランスと経済性評価という指標によって、減容化戦略の方向性を決めるための尺度を明らかにしようとするものである。

<サブテーマ2達成状況の自己評価>…………… 2. 目標を上回る成果をあげた

「各種安定化体の長期溶出特性の評価」（北海道大学、東條安匡）

| サブテーマ2目標 | サブテーマ2達成状況 |
|--|---|
| <p>研究を実施する各年度においての到達目標は次の通り。</p> <p>2022 年度：</p> <p>1. 安定化体の長期溶出特性評価法（廃棄物（セメント固型化体等）、放射性廃棄物（ガラス固型化体等））について網羅的な調査を行い、整理を完了する。</p> <p>2. 現在、検討されている各種安定化体（①飛灰直接セメント体、②吸着材直接セメント固型化体、③吸着体熱処理残渣セメント固型化体、④吸着体熱処理残渣ジオポリマー固型化体、⑤吸着体熱処理残渣リン酸ガラス化）の作製を完了し、それぞれの安定化体に対して強度試験を実施する。</p> <p>2023 年度：</p> <p>1. 前年度に作製した各安定化体について各種溶出試験を実施し、それぞれの基礎的な溶出特性を把握して、各安定化体がCsを捕捉している機構の整理、その捕捉機構に作用してCsの放出を促進する要因等を明確にする。</p> <p>2. 処分時の環境として想定される範囲で最悪シナリオを設定し、それぞれの安定化体からCsの放出が促進される環境を模擬した溶出試験（過酷環境）を行う。その結果を基に、各安定化体のCs長期溶出を評価するために採用すべき溶出試験条件を安定化体ごとに取りまとめる。</p> <p>2024 年度：</p> <p>この年度に、環境省の技術開発戦略の1つの目標が完了し、最終処分対象となる安定化体の候補がある程度、明確化する。そのため、2023年に取りまとめた溶出試験条件をベースに、候補と考えられる安定化体に特化した長期溶出特性評価手法（試験条件、評価指標、長期挙動予測）を提案する。</p> <p>最も重要な目標は、研究終了時点で、実際に処分のために選択される安定化体の長期溶出特性を評価する手法を提案できていることである。</p> | <p>（1）安定化体（固型化体）の作製については、硬化する条件と固型化体として求められる流動性と強度を検討し、満足する配合を決定した。9種の安定化体（①飛灰直接セメント固型化体、②飛灰直接ジオポリマー固型化体、③実飛灰（汚染有）のセメント固型化体、④フェロシアン化銅Cs吸着体を介したセメント固型化体、⑤同ジオポリマー固型化体、⑥ゼオライトCs吸着体、⑦⑥の焼結体、⑧⑥のセメント固型化体、⑨⑥のジオポリマー固型化体）を実験室で作製し、それぞれについて、13号溶出試験、シリアルバッチ溶出試験、有姿攪拌溶出試験（JIS K 0058-1もしくはANSI/ANS-16.1）を実施し、Csの溶出特性を把握した（図20、21、22）。</p> <p>（2）それぞれの固型化体に対して、Csの溶出に影響を与えると想定された溶媒（蒸留水、人工海水、模擬飛灰溶出液）、物理的崩壊（凍結融解）、崩壊熱、養生温度等を変化させた上で、有姿での溶出試験を行い、長期のCsの溶出特性を追跡した。設定した条件ではジオポリマー固型化体の海水溶媒でCsの溶出が増大する傾向が認められたが、それ以外の条件はCsの溶出挙動を大きく変化させるものではなかった（図19）。</p> <p>（3）溶出試験法については、JIS K 0058-1では累積溶出率の評価が難しく、また再吸着も起こるため、不適であると結論付けた。そのため、溶媒交換型の有姿でのシリアルバッチ試験が望ましいとした。ただし、溶媒交換間隔を変化させると累積溶出率の勾配が変化するため、可能な限り一定間隔が望ましいことにも言及した。飛灰のような微細粒子からなる試料では、小さい試験体で20日程度の試験により拡散係数を取得可能であり、その拡散係数を用いて長期の予測が行えることも示した。但し、初期の溶出から決定される拡散係数は最大であり、それを利用した予測は、最大の溶出が長期間起こるという想定の保守的評価であることにも言及した。</p> |

<サブテーマ3達成状況の自己評価>…………… 3. 目標どおりの成果をあげた

「県外最終処分施設に求められる封じ込め性能に関する研究」（広島大学、半井健一郎）

| サブテーマ3目標 | サブテーマ3達成状況 |
|--|--|
| <p>県外最終処分施設に求められる封じ込め性能について技術的知見を提示するため以下の2項目を実施する。</p> <p>（1）既存の処分施設において求められる封じ込め機能およびそれを実現するための施設構造を整理</p> | <p>県外最終処分施設に求められる封じ込め性能について技術的知見を提示するための研究を行い、以下に示すように、いずれの項目についても当初の目標を十分に果たすことができた。</p> <p>（1）既存の処分施設において求められる封じ込め</p> |

| | |
|---|--|
| <p>し、県外最終処分施設の構造検討に資する情報を明らかにする。</p> <p>(2) 県外最終処分施設における封じ込め性能の評価を行うため、サブテーマ2から提供される条件を踏まえ、処分施設に用いるコンクリートおよびベントナイト系遮水材の基本物性データを取得し、サブテーマ1で実施予定の安全評価のために提供する。また、サブテーマ1で実施する安全評価の妥当性の検証に活用するため、セメント系材料の浸漬試験を実施し、セシウムなどの浸透状況を実測することで人工バリアの封じ込め性能を明らかにする。</p> | <p>機能およびそれを実現するための施設構造の整理し、県外最終処分施設の構造検討に資する情報を明らかにする目標に対しては、特に、第一種廃棄物埋設の対象となる高レベル放射性廃棄物 (HLW) と第二種廃棄物埋設の対象となる低レベル放射性廃棄物 (以下、LLW) に区分されている放射性廃棄物の処分施設の考え方を中心に整理し、「放射能レベルの比較的低い廃棄物」(L2) の施設が参考となることを示し、当初の目標を果たすことができた(図25)(成果1)。</p> <p>(2) 県外最終処分施設における封じ込め性能の評価を行うため、サブテーマ2から提供される条件を踏まえ、処分施設に用いるセメント系材料およびベントナイト系遮水材の基本物性データを取得し、サブテーマ1で実施予定の安全評価のために提供する目標については、処分施設に用いるセメント系材料における骨材あるいは共存塩類の影響による分配係数や実行拡散係数の変化、ベントナイト系遮水材におけるベントナイト種類や共存塩類の影響による分配係数や実行拡散係数、透水係数の変化などの基本物性データを取得でき、当初の目標を十分に果たすことができた(図29、表16、図31)(成果2、28、70)。</p> <p>また、サブテーマ1で実施する安全評価の妥当性の検証に活用するため、セメント系材料の浸漬試験を実施し、セシウムなどの浸透状況を実測することで人工バリアの封じ込め性能を明らかにする目標に対しては、高濃度のCaCl₂による表層の変質を伴うCsのセメント系材料への浸透を明らかにするとともに、使用するセメント種類による変質抑制効果を示し、当初の目標を果たすことができた(図33)。</p> |
|---|--|

1. 6. 研究成果発表状況の概要

1. 6. 1. 研究成果発表の件数

| 成果発表の種別 | 件数 |
|------------------|----|
| 産業財産権 | 0 |
| 査読付き論文 | 4 |
| 査読無し論文 | 4 |
| 著書 | 0 |
| 「国民との科学・技術対話」の実施 | 15 |
| 口頭発表・ポスター発表 | 68 |

| | |
|---------------|---|
| マスコミ等への公表・報道等 | 2 |
| 成果による受賞 | 8 |
| その他の成果発表 | 6 |

1. 6. 2. 主要な研究成果発表

| 成果 番号 | 主要な研究成果発表 (「研究成果発表の一覧」から10件まで抜粋) |
|----------|--|
| 1 | 乾 徹 (2022) 安定化体を対象とした最終処分施設構造の検討にむけた技術的課題, 廃棄物資源循環学会誌, 33(6), 467-476 |
| 2 | 山田 一夫, 市川 恒樹, 遠藤 和人, 三浦 拓也, 大迫 政浩 (2023) 放射能汚染した飛灰洗浄液からCs濃縮するための吸着剤の性能評価の事例, 環境放射能除染学会誌, 11(1), 3-13. |
| 3 | 庭瀬 一仁, 赤坂 翼, 今泉 有人 (2023) ゼオライトを混合したセメント系材料の高吸着人工バリアへの適用性に関する基礎研究, コンクリート工学年次論文集, 45, 964-969. |
| 4 | 山田 一夫, 市川 恒樹, 安河内 隆仁, 東條 安匡, 遠藤 和人 (2024) 硬化阻害成分であるZnを含有した溶融飛灰のセメント固型化方法の開発, 環境放射能除染学会誌, 12(3), 71-78. |
| 5 | Yamada K., Ichikawa T., Arai H., Yasukochi T., Endo K. (2024), Study on the mechanisms of retardation of cement hydration by zinc and acceleration of hardening by sodium aluminate from crystallographic phase analysis, Journal of Material Cycles and Waste Management, https://doi.org/10.1007/s10163-024-02059-6 . |
| 6 | 遠藤 和人, 三成 映理子, 山田 一夫, 田中 悠平 (2025) 県外最終処分に向けた減容化シナリオと技術的課題, 廃棄物資源循環学会誌, 36(2), 129-138. |
| 7 | 熊谷 純 (2025) γ 線照射セメントペースト硬化体・ジオポリマーからの水素生成挙動: 照射・保持温度, 飛灰混入依存性, 廃棄物資源循環学会誌, 36(2), 139-146. |
| 8 | 乾 徹, 庭瀬 一仁, 半井 健一郎 (2025) 放射性セシウムを含有する熱処理飛灰安定化体の最終処分施設構造について, 廃棄物資源循環学会誌, 36(2), 147-156. |

注：この欄の成果番号は「研究成果発表の一覧」と共通です。

1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動

本研究課題での成果普及活動は、合計で15件（国民との科学・技術対話：15件とマスメディア等への公表：2件）を実施した。NEW環境展・地球温暖化防止展への出展は、環境や温暖化に係わる約9万人の参加者があるため、国民の中でも環境意識の高い、もしくは関連業務を行っている方々との対話を行うことができ、その後も多くの反響があった。福島県環境創造センターでの一般人（子供を含む）向けのセミナー等を実施しており、フェロシアン化物の合成等を体験して頂いている。環境放射能除染学会の講演会は、東京や福島等で一般公開として実施されており、反対派の住民が多く参加する中、本研究成果のパネルディスカッションも実施した。また、その他の成果発表は学会や国際機関での講演会であり、6件を実施している。国民との対話では無いが、原子力分野の方々との対話も重要だと考えている。なぜなら、現状、原子力の埋設処分と特措法の圏外最終処分の双方における制度、技術、哲学に精通した技術者が世界に数名しかいないためである。今後、圏外最終処分を実現させるためには、異分野同士での積極的かつ柔軟な議論が必要と考えている次第である。

1. 7. 国際共同研究等の状況

<国際共同研究の概要>

国際共同研究を実施していない。

1. 8. 研究者略歴

<研究者（テーマリーダー及びサブテーマリーダー）略歴>

| 研究者氏名 | 略歴（学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等） |
|-------|--|
| 遠藤和人 | テーマリーダー及びサブテーマ1リーダー 京都大学工学研究科博士後期課程修了 博士（工学） 国立環境研究所資源循環センター研究員を経て、 現在、国立環境研究所福島地域協働研究拠点室長 中環審廃棄物処理基準等専門委員会、汚染水処理対策委員 専門は環境地盤工学、研究テーマは県外最終処分を含む廃棄物最終処分技術 |
| 東條安匡 | サブテーマ2リーダー 北海道大学大学院工学研究科修士課程修了 博士（工学） 修士課程終了後、北海道大学工学部に助手として採用、現在、同大学工学研究院で准教授 主に最終処分技術や重金属等の挙動解明を研究 |
| 半井健一郎 | サブテーマ3リーダー 東京大学工学系研究科博士課程中途退学 博士（工学） 東京大学助手、群馬大学准教授等を経て、 現在、広島大学大学院先進理工系科学研究科教授 中国地方生産性向上研究会委員長、土木学会コンクリート委員会幹事長 専門はコンクリート工学、研究テーマは耐久性 |

2. 研究成果発表の一覧

(1) 産業財産権

| 成果 番号 | 出願 年月日 | 発明者 | 出願者 | 名称 | 出願以降 の番号 |
|----------|--------------|-----|-----|----|-------------|
| | 特に記載する事項はない。 | | | | |

(2) 論文

<論文>

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ | 査読 の有無 |
|----------|----------|--|--------------|-----------|
| 1 | 2022 | 乾 徹 (2022) 安定化体を対象とした最終処分施設構造の検討にむけた技術的課題, 廃棄物資源循環学会誌, 33(6), 467-476 | 3 | 無 |
| 2 | 2023 | 山田 一夫, 市川 恒樹, 遠藤 和人, 三浦 拓也, 大迫 政浩 (2023) 放射能汚染した飛灰洗浄液からCs濃縮するための吸着剤の性能評価の事例, 環境放射能除染学会誌, 11(1), 3-13. | 1 | 有 |
| 3 | 2023 | 庭瀬 一仁, 赤坂 翼, 今泉 有人 (2023) ゼオライトを混合したセメント系材料の高吸着人工バリアへの適用性に関する基礎研究, コンクリート工学年次論文集, 45, 964-969. | 3 | 有 |
| 4 | 2024 | 山田 一夫, 市川 恒樹, 安河内 隆仁, 東條 安匡, 遠藤 和人 (2024) 硬化阻害成分であるZnを含有した熔融飛灰のセメント固型化方法の開発, 環境放射能除染学会誌, 12(3), 71-78. | 2 | 有 |
| 5 | 2024 | Yamada K., Ichikawa T., Arai H., Yasukochi T., Endo K. (2024), Study on the mechanisms of retardation of cement hydration by zinc and acceleration of hardening by sodium aluminate from crystallographic phase analysis, Journal of Material Cycles and Waste Management, https://doi.org/10.1007/s10163-024-02059-6 . | 2 | 有 |
| 6 | 2025 | 遠藤 和人, 三成 映理子, 山田 一夫, 田中 悠平 (2025) 県外最終処分に向けた減容化シナリオと技術的課題, 廃棄物資源循環学会誌, 36(2), 129-138. | 1 | 無 |
| 7 | 2025 | 熊谷 純 (2025) γ線照射セメントペースト硬化体・ジオポリマーからの水素生成挙動: 照射・保持温度, 飛灰混入依存性, 廃棄物資源循環学会誌, 36(2), 139-146. | 1 | 無 |
| 8 | 2025 | 乾 徹, 庭瀬 一仁, 半井 健一郎 (2025) 放射性セシウムを含有する熱処理飛灰安定化体の最終処分施設構造について, 廃棄物資源循環学会誌, 36(2), 147-156. | 3 | 無 |

(3) 著書

<著書>

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ |
|----------|----------|--------------|--------------|
| | | 特に記載する事項はない。 | |

(4) 口頭発表・ポスター発表

<口頭発表・ポスター発表>

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ | 査読 の有無 |
|----------|----------|--|--------------|-----------|
| 9 | 2022 | 山田一夫、市川恒樹、三浦拓也、遠藤和人、大迫政浩(2022)灰洗浄・イオンクロマトグラフィ濃縮に用いる吸着材の性能評価の試み、第11回環境放射能除染研究発表会、S1-2 | 1 | 無 |
| 10 | 2022 | 三成映理子、山田一夫、市川恒樹、遠藤和人、大迫政浩(2022)放射性セシウムに着目した県外最終処分の施設成立性：システム設計及び数学モデル検討、第11回環境放射能除染研究発表会、P1-9 | 1 | 無 |
| 11 | 2022 | 三浦拓也、山田一夫、市川恒樹、遠藤和人、大迫政浩(2022)共存イオン比とイオン選択係数がCs吸着能評価に与える影響、第11回環境放射能除染研究発表会、P1-8 | 1 | 無 |
| 12 | 2022 | 市川恒樹、東條安匡、山田一夫(2022)イオン交換クロマトグラフィーによる放射性セシウム除去に用いた使用済みフェロシアン化銅吸着剤の各種固型化処理、第11回環境放射能除染研究発表会、S1-5 | 1 | 無 |
| 13 | 2022 | Yamada, K., End, K., Minari, E., Osako, M. (2023) Review of Activities to Develop a Strategy for the Final Disposal of Contaminated Waste Off-Site Outside Fukushima Prefecture, WM Symposia, 23055 | 1 | 有 |
| 14 | 2022 | 熊谷 純, 細見 奎輔, 長谷川 晋也, 根岸 久美, 井田 雅也, セメント構成結晶の放射線分解水素生成収率照射温度の影響, 日本原子力学会2022年秋の大会, 3C10 | 1 | 無 |
| 15 | 2022 | 熊谷 純, 細見 奎輔, 長谷川 晋也, 根岸 久美, 井田 雅也, セメント構成結晶の放射線分解水素生成収率照射温度の影響, 第65回放射線化学討論会, 0-02 | 1 | 無 |
| 16 | 2022 | 岡田早紀, 東條安匡, 松尾孝之, 黄仁姫 (2022) ゼオライトを用いた各種安定化体からのセシウム溶出挙動の把握、令和4年度廃棄物資源循環学会北海道支部研究発表会 | 2 | 無 |
| 17 | 2023 | Yamada, K., Ichikawa, T., Tojo, Y., Endo, K. (2023) Leaching Characteristics of Cs from the Decomposed Cu Ferrocyanide Adsorbent Solidified by Portland Cement and Geopolymer, SynerCrete, 739-748, 2023 | 2 | 有 |
| 18 | 2023 | 市川恒樹, 山田一夫, 新井裕之, 東條安匡(2023)亜鉛含有汚染飛灰のセメント固型化に対するアルミン酸ナトリウムの添加効果、第12回環境放射能除染学会研究発表会、S2-5 | 2 | 無 |
| 19 | 2023 | 安河内隆仁, 山田一夫, 新井裕之, 東條安匡, 市川恒樹, 遠藤和人(2023)溶融飛灰のセメント固型化手法の検討、第12回環境放射能除染学会研究発表会、S2-2 | 2 | 無 |
| 20 | 2023 | 三成映理子, 山田一夫, 遠藤和人, 大迫政浩(2023)県外最終処分に向けた処理・処分シナリオの総合的比較検討の試み、第12回環境放射能除染学会研究発表 | 1 | 無 |

| | | | | |
|----|------|--|---|---|
| | | 会、P1-14 | | |
| 21 | 2023 | 田中悠平, 山田一夫, 遠藤和人(2023)フェロシアン化銅のCs吸着能に対する製造方法の影響、第12回環境放射能除染学会研究発表会、P1-09 | 1 | 無 |
| 22 | 2023 | 市川恒樹, 山田一夫, 東條安匡(2023) 放射性セシウムのイオンクロマトグラフィー除去に用いるフェロシアン化銅造粒体のイオン交換特性、第12回環境放射能除染研究発表会、S3-6 | 2 | 無 |
| 23 | 2023 | 相澤夏瞳, 我妻佑哉, 遠藤和人, 三浦拓也(2023) 福島県内土壌におけるCs平衡・非平衡吸着挙動の一考察, 第12回環境放射能除染学会研究発表会, p.24 | 1 | 無 |
| 24 | 2023 | 熊谷 純・根岸久美・井田雅也, セメント硬化体構成結晶の放射線分解水素生成収率と照射温度依存性, 第12回環境放射能除染除染研究発表会, S6-3 | 1 | 無 |
| 25 | 2023 | 熊谷 純・根岸久美・井田雅也, セメント硬化体構成結晶の放射線分解水素生成収率と照射温度依存性, 第66回放射線化学討論会, 0-20 | 1 | 無 |
| 26 | 2023 | 三成映理子, 山田一夫, 遠藤和人, 大迫政浩(2023) 県外最終処分の実現に向けた放射性物質汚染廃棄物の処理・処分シナリオ分析, 廃棄物資源循環学会研究発表会講演集A1-5-0 | 1 | 無 |
| 27 | 2023 | 田中 悠平, 山田 一夫, 遠藤 和人(2023)高濃縮を目的とした放射性 Cs 吸着材におけるイオン交換理論の有用性, 廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, F3-2-0 | 1 | 無 |
| 28 | 2023 | Tanaka, Y., Yamada, K., Endo, K. (2023) Evaluation of Cs adsorption performance of certain natural mordenite type zeolite with ion exchange theory, 15th Symposium of Japanese Environmental Geotechnology | 1 | 有 |
| 29 | 2023 | Minari, E., Yamada, K., Endo, K., Osako, M. (2023) Preliminary Study on Treatment/Disposal Scenario Building and Comprehensive Evaluation Toward the Final Disposal of the Radioactively Contaminated Waste Outside Fukushima Prefecture, 15th Symposium of Japanese Environmental Geotechnology | 1 | 有 |
| 30 | 2023 | Yamada, K., Tanaka, Y., Ichikawa, T., Miura, T., Minari, E., Endo, K. (2024) Application of Ion-exchange Theory to the Performance Assessment of Cs Adsorbents and Estimation of Conditions for Maximum Concentration, Proceedings of WM2024 Conference, 24169 | 1 | 有 |
| 31 | 2023 | Hu, Y., Tojo, Y., Matsuo, T., Hwang, I-H. (2023) Preparation of stabilized bodies by using copper ferrocyanide and evaluation of cesium leaching characteristics, The 12th China-Japan Joint Conference on Material Recycling and Waste Management. | 2 | 無 |
| 32 | 2023 | Hu, Y., Tojo, Y., Matsuo, T., Hwang, I-H. (2023) Preparation of stabilized bodies by using copper ferrocyanide and evaluation of cesium leaching characteristics, 第30回衛生工学シン | 2 | 無 |

| | | | | |
|----|------|--|---|---|
| | | ポジウム. | | |
| 33 | 2023 | 小島脩平, 安河内隆仁, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之(2023) セシウム濃縮飛灰のセメント・ジオポリマー固化体, 令和5年度廃棄物資源循環学会北海道支部研究ポスター発表会. | 2 | 無 |
| 34 | 2023 | 西村 拓己, Hu Yuke, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之(2023) フェロシアン化銅經由Cs安定化体のCs溶出に及ぼす温度の影響, 令和5年度廃棄物資源循環学会北海道支部研究ポスター発表会. | 2 | 無 |
| 35 | 2023 | Hu Yuke, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之(2023) Preparation of stabilized bodies by using Copper ferrocyanide and evaluation of Cesium leaching characteristics, 令和5年度廃棄物資源循環学会北海道支部研究ポスター発表会. | 2 | 無 |
| 36 | 2023 | 安河内隆仁, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之(2023) ゼオライトを用いた除染廃棄物安定化体からのCs溶出特性評価, 令和5年度廃棄物資源循環学会北海道支部研究ポスター発表会 | 2 | 無 |
| 37 | 2023 | Lang, L., Toda, K., Saito. T., (2023) Leaching behavior of Cs from cement and geopolymer solidified forms of Cs adsorbent and fly ash, 日本原子力学会2023年度春の大会. | 2 | 無 |
| 38 | 2023 | 三浦 拓也, 遠藤 和人(2023)イオン選択係数とCECがCs分配係数の導出に与える影響, 第36回日本イオン交換研究発表会, 01-09 | 1 | 無 |
| 39 | 2023 | 今井 大智, 遠藤 和人, 三浦 拓也(2023)福島県内土壌に対するCs吸着形態と共存イオンがCs吸着能に与える影響, 第36回日本イオン交換研究発表会, PI-03 | 1 | 無 |
| 40 | 2023 | 相澤 夏瞳, 遠藤 和人, 三浦 拓也(2023)カラム吸着試験による福島県内土壌のCs吸着パラメータ評価, 第36回日本イオン交換研究発表会, PI-08 | 1 | 無 |
| 41 | 2023 | 三橋知矢, 乾徹, 緒方奨: カチオンを高濃度で含有する浸出水に対するベントナイトのCs吸着特性の評価, 第28回地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会, No. S1-15 | 3 | 無 |
| 42 | 2023 | 三橋知矢, 乾徹, 緒方奨: 放射性物質汚染廃棄物等を対象とした最終処分施設構造の検討と陽イオンを高濃度で含む浸出水に対するベントナイトのCs吸着特性の評価, 第58回地盤工学研究発表会, No. 11-2-5-08 | 3 | 無 |
| 43 | 2023 | 今泉有人・庭瀬一仁・山本武志・佐藤宏: 高吸着人工バリアの開発に資する高CECモルデナイト型ゼオライトを混合したセメント系材料の諸特性, 第77回セメント技術大会, 令和5年5月17日 | 3 | 無 |
| 44 | 2023 | 庭瀬一仁・今泉有人: 各種ゼオライトを混入したセメント系材料の分配係数, 2023年原子力学会秋の年会, 令和5年9月8日 | 3 | 無 |
| 45 | 2023 | Yuto Imaizumi, Kazuhito Niwase, Takeshi Yamamoto, Hiroshi Sato: Basic Study on Applicability to Artificial Barriers for Radioactive Waste Disposal Facility for Various Zeolites, The 7th International Conference on Structural and Civil Engineering | 3 | 有 |

| | | | | |
|----|------|---|---|---|
| 46 | 2023 | Yuto Imaizumi, Kazuhito Niwase: Conventional technology and future development of artificial barriers for disposal of low-level radioactive waste in Japan, Materials In Nuclear Energy Systems | 3 | 有 |
| 47 | 2024 | 相澤 夏瞳, 遠藤 和人, 三浦 拓也(2024) 地盤および溶液条件が各種土壌のCs吸着定数に与える影響, 第59回地盤工学研究発表会, 23-8-1-06 | 1 | 無 |
| 48 | 2024 | 田中悠平, 山田一夫, 遠藤和人(2024)可燃性除染廃棄物等の高度減容化に向けたCs吸着材評価, 廃棄物資源循環学会 令和5年度関東支部主催講演会、研究発表会(ポスター) | 1 | 無 |
| 49 | 2024 | Tanaka, Y., Yamada, K., Endo, K. (2024) Development of Evaluation Method for Cs Adsorbent for Advanced Volume Reduction of Decontamination Waste in Fukushima, 2024 Spring Scientific Conference by Korea Society of Waste Management | 1 | 無 |
| 50 | 2024 | Yamada, K. (2024) Ion exchange theory and its application for the interaction of alkali metal ions with cation exchangers such as Cs adsorbent and geopolymer -numerical simulation and experiments, Intl Conf Atomistic Simulation of Cementitious Materials | 1 | 無 |
| 51 | 2024 | 山田一夫, 田中悠平, 小田俊司, 遠藤和人(2024)飛灰中のK/Csモル濃度比が飛灰洗浄・吸着濃縮に与える影響の試算、第13回環境放射能除染学会発表会、同要旨集、19 | 1 | 無 |
| 52 | 2024 | 田中悠平, 山田一夫, 遠藤和人 (2024) フェロシアン化銅の二段階化学共沈法による最大減容化に向けた検討、第13回環境放射能除染学会発表会、同要旨集、22 | 1 | 無 |
| 53 | 2024 | 安河内隆仁, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之, 戸田賀奈子, 山田一夫, 遠藤和人(2024)Cs吸着ゼオライト固型化体の凍結融解、海水浸漬によるCs 溶出特性の変化、第13回環境放射能除染学会発表会、同要旨集、23 | 2 | 無 |
| 54 | 2024 | 三成映理子, 山田一夫, 遠藤和人(2024)複数の減容化技術シナリオにおける処分システムの安全性の検討、第13回環境放射能除染学会発表会、同要旨集、26 | 1 | 無 |
| 55 | 2024 | 熊谷純, 山田一夫, 遠藤和人(2024)飛灰を導入したγ線照射高炉セメント硬化体とジオポリマーの放射線分解水素発生挙動、第13回環境放射能除染学会発表会、同要旨集、20 | 1 | 無 |
| 56 | 2024 | 熊谷純, 山田一夫, 遠藤和人(2024)γ線照射された高炉セメントペースト硬化体のGH ₂ 照射・保持温度と飛灰導入の影響、日本原子力学会 2024年秋の大会、同予稿集、3M10ka | 1 | 無 |
| 57 | 2024 | 三成映理子, 山田一夫, 遠藤和人(2024)複数の処理・処分シナリオによるオフサイト廃棄物の県外最終処分: 処分モデルに関する検討、日本原子力学会 2024年秋の大会、同予稿集、1C08 | 1 | 無 |
| 58 | 2024 | 田中悠平, 新井裕之, 山田一夫, 遠藤和人(2024)除染廃棄物等の飛灰洗浄液に着目した高度減容化に関 | 1 | 無 |

| | | | | |
|----|------|---|---|---|
| | | する検討～フェロシアン化銅を対象としたカラムとバッチ試験の比較～、第35回 廃棄物資源循環学会研究発表会、同講演要旨集、479-480 | | |
| 59 | 2024 | 山田 一夫, 市川 恒樹, 新井 裕之, 安河内 隆仁, 遠藤 和人(2024)亜鉛によるセメントの水和阻害とアルミ酸ナトリウムによる硬化促進の機構のXRDによる解析, 廃棄物資源循環学会研究発表会講演集 F1-2-0 | 2 | 無 |
| 60 | 2024 | 安河内 隆仁, 東條 安匡, 黄 仁姫, 松尾 孝之, 戸田 賀奈子, 山田 一夫, 遠藤 和人(2024)Cs吸着ゼオライト(天然モルデナイト)のセメント、GP固型化体からのCs溶出特性評価, 廃棄物資源循環学会研究発表会講演集, F1-6-0 | 2 | 無 |
| 61 | 2024 | Minari E., Yamada K., Endo K. (2024) Study on the construction of disposal scenarios and a tentative migration modeling of cesium for the final disposal pf radioactively contaminated waste outside of Fukushima Prefecture, 9th Clay Conference | 1 | 無 |
| 62 | 2024 | Yamada, K., Endo, K. (2025) Cement solidification of incineration fly ash containing heavy metals with sodium aluminate, Proc. Waste Management Symposium, 25160. | 2 | 有 |
| 63 | 2024 | 小島脩平, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之, 戸田賀奈子(2024)Cs濃縮飛灰のセメント/ジオポリマー直接固型化体におけるCs溶出特性, 第13回環境放射能除染研究発表会 | 2 | 無 |
| 64 | 2024 | 西村拓己, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之, 戸田賀奈子(2024)フェロシアン化銅吸着経由安定化体からのCs溶出に及ぼす温度の影響, 第13回環境放射能除染研究発表会 | 2 | 無 |
| 65 | 2024 | 小島脩平, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之, 戸田賀奈子(2024)Cs濃縮飛灰のセメント/ジオポリマー直接固型化体におけるCs溶出特性, 第31回衛生工学シンポジウム | 2 | 無 |
| 66 | 2024 | 西村拓己, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之, 戸田賀奈子(2024) フェロシアン化銅吸着経由安定化体からのCs溶出に及ぼす温度の影響, 第31回衛生工学シンポジウム | 2 | 無 |
| 67 | 2024 | 安河内隆仁, 東條安匡, 黄仁姫, 松尾孝之, 戸田賀奈子(2024) Cs 吸着ゼオライト固型化体からのCs溶出メカニズムと凍結融解, 海水浸漬の影響, 第31回衛生工学シンポジウム | 2 | 無 |
| 68 | 2024 | 戸田賀奈子, 郎朗, 齊藤拓巳, 東條安匡(2024) Cs encapsulation by calcined copper ferrocyanide 69solidified with cement and geopolymer, 日本原子力学会2024年度春の大会 | 2 | 無 |
| 69 | 2024 | Toda, K., Saito, T., Tojo, Y, (2024) Interfaces of solidified Cs adsorbents arising in volume reduction of fly-ash in the interim storage facility, Fukushima prefecture, Interfaces Against Pollution. | 2 | 無 |
| 70 | 2024 | 三橋知矢, 乾徹, 緒方奨: 陽イオン交換理論に基づいた高濃度陽イオンを含む浸出水に対するベントナイトのCs吸着予測, 第29回地下水・土壌汚染とそ | 3 | 無 |

| | | | | |
|----|------|--|---|---|
| | | の防止対策に関する研究集会, No. S2-18 | | |
| 71 | 2024 | 三輪将人, 半井健一郎: セメント硬化体中へのCs浸透におけるCaCl ₂ の影響, 令和6年度土木学会全国大会第79回年次学術講演会, No. CS12-04 | 3 | 無 |
| 72 | 2024 | 今泉有人, 古川雄, 庭瀬一仁: 高CECゼオライトを混合したセメント系材料の県外最終処分施設バリア材料への適用性に関する研究, 第13回環境放射能除染研究発表会, p. 24 | 3 | 無 |
| 73 | 2025 | Yamada, K., Endo, K., Sugihashi, N. (2025) Non-toxicification of incinerated ash by cement solidification for landfill disposal, 8th Recycling Conference 2025, Rome, Italy | 2 | 無 |
| 74 | 2025 | Yamada, K., Yasukochi, T., Tojo, Y., Endo, K. (2025) Cement solidification of MSW incineration fly ash containing cement hydration inhibitors and dissolution characteristics of Pb, 20 th Int. Symp. On Waste Management, Resource Recovery and Sustainable Landfilling, Sardinia, Italy | 2 | 無 |
| 75 | 2025 | Viaud, M., Toda, K., Saito, T., (2025) Immobilization of radionuclides in fly-ash/slag-based geopolymers matrices, 日本原子力学会2025年度春の大会 | 2 | 無 |
| 76 | 2025 | 麻生蓮太, 乾徹, 緒方奨: 放射性セシウムを含有する熱処理飛灰セメント固型化体の最終処分施設構造に関する一考察, 第60回地盤工学研究発表会 | 3 | 無 |

(5) 「国民との科学・技術対話」の実施

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ |
|----------|----------|--|--------------|
| 77 | 2022 | 山田一夫、遠藤和人：県外最終処分に向けた包括的な処理・処分シナリオ検討の重要性、環境創造センター成果報告会，福島，9月29日 | 1 |
| 78 | 2022 | 遠藤和人：中間貯蔵施設周辺復興地域の融合的な環境再生・環境創生に向けて，第11回環境放射能除染学会企画セッション2（一般公開），郡山，8月25日 | 1、2、3 |
| 79 | 2023 | NEW環境展・地球温暖化防止展2023，5月24～26日，東京ビッグサイト | 1、2、3 |
| 80 | 2023 | 三成映理子，山田一夫，遠藤和人，大迫政治：県外最終処分に向けた導入技術システムのシナリオ分析、令和5年度環境創造センター成果報告会、口頭発表要旨・ポスター集、31，福島，10月3日 | 1 |
| 81 | 2023 | 田中悠平，山田一夫，遠藤和人，高濃縮減容化を目的としたCs吸着材の性能評価，令和5年度環境創造センター公開成果報告会，10月3日 | 1 |
| 82 | 2023 | コミュタニアルラボのブース出展，福島県環境創造センター コミュタニアルラボ11月4日 | 1 |
| 83 | 2024 | 三成映理子：県外最終処分に向けた技術シナリオ，環境放射能除染学会第20回講演会，東京，1月19日 | 1 |
| 84 | 2024 | 遠藤和人：中間貯蔵施設周辺復興地域の融合的な環境再生・環境創生に向けた研究，第13回原子力政策・福島復興シンポジウム，オンライン，3月9日 | 1、2、3 |
| 85 | 2024 | NEW環境展・地球温暖化防止展2024，5月22～24日，東京ビッグサイト | 1 |
| 86 | 2024 | 三成映理子，山田一夫，遠藤和人：県外最終処分に向けた導入技術シ | 1 |

| | | | |
|----|------|---|-------|
| | | ステムシナリオ、令和6年度環境創造センター成果報告会、要旨集、17, 福島, 6月25日 | |
| 87 | 2024 | 田中 悠平, 山田 一夫, 遠藤 和人, 特定廃棄物(飛灰)の最大減容化に向けた二段階化学共沈法, 令和6年度環境創造センター公開成果報告会, 6月25日 | 1 |
| 88 | 2024 | コミュタン福島・国環研 福島拠点 見学バスツアー, 8月24日 | 1 |
| 89 | 2024 | 国環研一般公開2024でのブース出展, 国立環境研究所 国環研一般公開2024, 10月19日 | 1 |
| 90 | 2025 | 遠藤和人: 中間貯蔵施設周辺復興地域の環境創生に向けた研究~推進費SII-9, 環境放射能除染学会第21回講演会, 東京, 1月31日 | 1、2、3 |
| 91 | 2025 | 三成映理子: 東京電力福島第一原子力発電所事故で生じた除去土壌等の県外最終処分実現に向けて~減容化への取り組みと処分後の放射性セシウムの挙動~, 国環研 View Deep, https://www.nies.go.jp/kokkanken_view/deep/column-20250512.html#gsc.tab=0 | 1 |

(6) マスメディア等への公表・報道等

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ |
|----------|----------|-----------------------|--------------|
| 92 | 2024 | 日本経済新聞, 第33面, 7月18日朝刊 | 1 |
| 93 | 2025 | 福島民友, 第1面, 1月11日朝刊 | 1 |
| | | | |

(7) 研究成果による受賞

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ |
|----------|----------|--|--------------|
| 94 | 2023 | 環境放射能除染学会 優秀口頭発表賞、安河内 隆仁他、溶融飛灰のセメント固型化手法の検討 | 2 |
| 95 | 2023 | 環境放射能除染学会 最優秀ポスター発表賞、相澤 夏瞳他、福島県内土壌におけるCs平衡・非平衡吸着挙動の一考察 | 1 |
| 96 | 2023 | 環境放射能除染学会 優秀ポスター発表賞、三成映理子他、県外最終処分に向けた処理・処分シナリオの総合的比較検討の試み | 1 |
| 97 | 2023 | The 12th China-Japan Joint Conference on Material Recycling and Waste Management, Student Presentation Award, Hu Yuke, Preparation of stabilized bodies by using copper ferrocyanide and evaluation of cesium leaching characteristics | 2 |
| 98 | 2023 | 廃棄物資源循環学会北海道支部ポスター発表会、優秀ポスター発表賞、安河内隆仁、Cs吸着ゼオライト固型化体からのCs溶出メカニズムと凍結融解、海水浸漬の影響 | 2 |
| 99 | 2024 | 環境放射能除染学会 最優秀口頭発表賞、三成映理子他、複数の減容化技術シナリオにおける処分システムの安全性の検討 | 1 |
| 100 | 2024 | 環境放射能除染学会 優秀口頭発表賞、田中 悠平他、フェロシアン化銅の二段階化学共沈法による最大減容化に向けた検討 | 1 |
| 101 | 2024 | 9th Clay Conference, Poster Prize, Eriko Minari, etc. Study on the construction of disposal scenarios and a tentative migration modeling of cesium for the final disposal of radioactively contaminated waste outside of Fukushima Prefecture. | 1 |

(8) その他の成果発表

| 成果 番号 | 発表 年度 | 成果 情報 | 主たる サブテーマ |
|----------|----------|--|--------------|
| 102 | 2022 | 熊谷 純：放射線と物質との相互作用の基礎，日本放射線影響学会第66回大会招待講演，大阪，9月17日 | 1、2 |
| 103 | 2023 | 遠藤和人：1F事故廃棄物とオフサイトの除去土壌等の処理技術における関連性・共通的な話題について，土木学会エネルギー委員会研究討論会，オンライン，9月12日 | 1、2 |
| 104 | 2023 | 遠藤和人：中間貯蔵施設周辺復興地域の融合的な環境再生・環境創生に向けた研究，第80回環境システムシンポジウム（第51回環境システム研究論文発表会），郡山，10月21日 | 1 |
| 105 | 2023 | 三成映理子：Research on Environmental Restoration and Ecosystem Development in the Reconstruction Zone Surrounding the Interim Storage Facility 1. Scenario optimization of installed technology system for final disposal outside Fukushima Pref., ICRP主委員会メンバー福島視察会，福島，11月1日 | 1 |
| 106 | 2023 | 遠藤和人：県外最終処分に向けた状況と今後の技術開発に向けて，早稲田大学循環型環境技術研究会講演会，東京，12月4日 | 1、2、3 |
| 107 | 2024 | 遠藤和人：県外最終処分を実現させるための技術的な検討について，令和6年度土木学会全国大会研究討論会（21），仙台，9月4日 | 1、2、3 |

権利表示・義務記載

特に記載する事項はない。

この研究成果報告書の文責は、研究プロジェクトに参画した研究者にあります。
この研究成果報告書の著作権は、引用部分及び独立行政法人環境再生保全機構（ERCA）のロゴマークを除いて、原則的に著作者に属します。
ERCAは、この文書の複製及び公衆送信について許諾されています。

Abstract**[Project Information]**

Project Title : Research and Development of Technical Systems to Realize Final Disposal Outside of Fukushima Prefecture

Project Number : JPMEERF22S20910

Project Period (FY) : 2022-2024

Principal Investigator : Endo Kazuto

(PI ORCID) : ORCID 0000-0003-2575-7678

Principal Institution : National Institute for Environmental Studies
10-2 Fukasaku, Miharu Town, Fukushima, JAPAN
Tel: +81 247 61 6569
E-mail: k-endo@nies.go.jp

Cooperated by : Nagoya University, National Institute of Technology: Fukushima College, Hokkaido University, University of Tokyo, Hiroshima University, Osaka University, JGC JAPAN CORPORATION

Keywords : Removed soil and decontamination waste, volume reduction, solidification/stabilization, final disposal outside of Fukushima, scenario evaluation

[Abstract]

Various technologies for volume reduction and stabilization have been developed for the final disposal of radioactive cesium (Cs)-contaminated melting fly ash (MFA) and removed soil, which were generated during the remediation activities after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. This study focuses on the scenario analysis that optimizes the combination of such technologies and on some basic investigations required for the analysis, i.e., evaluation of the performance of Cs concentration from ash-washing effluents of MFA, Cs sorption/desorption in natural barriers (soils), and hydrogen gas generation from stabilized wastes.

The process of final disposal of contaminated materials consists of volume reduction, stabilization and disposal. Related technologies of each process have been summarized in three representative scenarios, and these are analyzed from the point of view of mass balance, economic assessment, and CO₂ emissions in addition to safety assessment. According to the Japanese regulation applied to this remediation activity, which is based on general waste management regulations but not on radioactive waste management, we propose the control of Cs-137 concentration in the landfill leachate for the safety assessment, but not the evaluation of human radiation exposure.

MFA containing Cs in water-soluble form has been generated by sending all combustible contaminated wastes to incinerators and melting furnaces. The volume of this MFA can be reduced by washing and adsorption. Based on the ion exchange theory, we proposed a performance evaluation method for adsorbents used in column adsorption. The process of column adsorption is

a relatively slow process for high concentration. A faster and effective process based on chemical co-precipitation was developed for the maximum concentration up to 2 mol/kg adsorbent and 1 GBq/kg.

Under accidental scenarios, Cs migration in soil becomes critical. A sorption/desorption model was developed based on kinetic considerations: Equilibrium theory was applied for slow leak migration and non-equilibrium theory for rapid transport. This allows for a more accurate assessment of the safety of the natural barrier, and allows for a better understanding of how the natural barrier works.

In the maximum concentration scenario, the radioactivity level reaches almost 1 GBq/kg. Therefore, the high risk of hydrogen gas generation by radiolysis of water and stabilizer at high temperatures must be evaluated. As stabilizers, blast-furnace slag mixtures of cement and geopolymer and mixtures with MFA have been investigated. Surprisingly, hydrated cement showed more than 10 times higher hydrogen gas yield than water. In order to avoid hydrogen explosion, the disposal facility for such a high-radiation stabilized form requires ventilation systems.

[References]

| |
|--|
| Yamada K., Ichikawa T., Arai H., Yasukochi T., Endo K., (2024) Study on the mechanisms of retardation of cement hydration by zinc and acceleration of hardening by sodium aluminate from crystallographic phase analysis, Journal of Material Cycles and Waste Management, https://doi.org/10.1007/s10163-024-02059-6 . |
| |
| |

This study was supported by the Environment Research and Technology Development Fund of the ERCA (JPMEERF22S20910) funded by the Ministry of the Environment.