

## 【1-1702】 放射性 Cs や Sr で汚染された廃棄物の中間貯蔵と最終処分のための安定化技術に関する研究(H29~H31)

研究代表者 米田 稔 (京都大学)

### 1. 研究開発目的

放射性 Cs および Sr で汚染された廃棄物を焼却処分した場合に、廃棄物の性状によって、これら核種の溶出特性がどのように変化するかを明らかにし、その溶出を十分なレベルで抑制する方法を提案する。この目標を達成するために主に処分対象物の濃度に応じて、以下の方法を検討する。

1) 比較的低濃度の廃棄物：これまでの研究によって、土壌には Cs を吸着する主に3種類のサイトが存在し、Sr の場合には2種類のサイトが存在することがわかってきた。これらの吸着サイトはそれぞれ異なった、吸着イオンの選択特性を有し、これら各吸着サイトの量と、共存イオンの種類と量を知ることで、除染廃棄物のような土壌と廃棄物との混合物、あるいはその焼却物からの Cs や Sr の溶出量がほぼ推定できることが明らかになりつつある。本研究ではこのような吸着を決定する各種パラメータの値を簡単に求める方法を開発するとともに、これら様々な性状の廃棄物や熱処理物を混合することで、安価かつ大量に放射性物質の溶出量をコントロールする方法を提案し、比較的低濃度の廃棄物の安定処理方法確立に貢献する。

2) 比較的高濃度の廃棄物：現在、放射能で汚染された廃棄物はその減容化と安定化のために仮設焼却炉での焼却が進められているが、中間貯蔵所においては一段の減容化・減量化が要求される。その結果、さらなる高温での熔融処理や焼成処理では比較的高濃度の放射性物質と塩類を含む熱処理残渣が排出される。通常の飛灰などの安定固化方法としてはセメント固化が行われるが、セメント固化では放射性 Cs や Sr の十分な溶出抑制ができないことが明らかになりつつある。したがって、さらに高濃度に塩類や放射性物質を含む残渣に対応できる固化法が求められている。これまでの研究によって、通常の飛灰に対してはジオポリマーを用いた安定固化方法が有効であることが明らかになりつつある。本研究では可溶性の高い熱処理残渣時の固化法としてジオポリマー法を確立する。今年度は、適切なジオポリマー材料の調査を行い、その後、焼成処理模擬飛灰及び熔融飛灰でのジオポリマー固化の最適条件を探索した。

### 2. 研究の進捗状況

除染廃棄物などで、かなりな量の土壌を含む場合、その廃棄物を熱処理したものからの Cs および Sr の溶出率を推定する Langmuir 型の競争吸着理論に基づく一般式を求めた。この一般式に含まれるパラメータの値から、溶出率を求める実験において、Cs の添加量は廃棄物に含まれるフレイドエッジサイト容量よりも十分に小さければ、Sr の場合は陽イオン交換容量の値よりも十分に小さければ、放射性同位体を使用した低濃度での実験結果と安定同位体を用いた高濃度での実験結果がほぼ同じになることが期待できることを示した。ただし、バックグラウンドとして廃棄物に含まれる Cs や Sr の量が、添加する量に比べ無視できない場合には、バックグラウンドとして存在する量も考慮する必要がある。一般式に含まれるパラメータで特に測定に時間を要するのは Cs の溶出量を支配する放射性 Cs 捕捉ポテンシャル (RIP) であるが、このパラメータの迅速測定法を Cs 溶出率の一般式から提案し、現在、その有効性を検証する実験を実施中である。また、土壌混入廃棄物からの Cs の溶出率を表す一般式で必要となるパラメータの中で、個々のサンプルで大きく値が異なる可能性があるパラメータが土壌混入率とカリウムの存在量の比であることを示し、このパラメータを現場において可搬型蛍光 X線分析装置を用いて簡便に測定できる可能性を示した。今後はさらに多くの種類の土壌や廃棄物について、基礎式の有効性を示すとともに、実際の除染廃棄物焼却灰などを用いた実験を行っていく予定である。

可溶性塩類を多量に含む飛灰に対して、ジオポリマー材料の見直しを行った。これまではアル

ミノケイ酸塩としてカオリンクレーの一種である焼成パイロフィライトを用いてきたが、このパイロフィライトではCsの溶出が防げなかった。種々のアルミノケイ酸塩に対して、熱特性やAlやSiの溶出率などの基礎的な特性を把握した後、影響を及ぼすパラメータについて実験的に検討することで、溶出率を5%以下に保てる材料及びジオポリマー作成条件を明らかにした。焼成処理を模擬した飛灰だけでなく、熔融飛灰に対する条件も検討し、低溶出率を達成できる条件を見出した。Srについての検討はまだであるが、過年度の研究よりSrはCsに比べてジオポリマー固化体からの溶出性は極めて低いことがわかっており、Csに対する最適条件を求めることを優先している。今後はCsの固定化機構の解明を行う。

### 3. 環境政策への貢献(研究代表者による記述)

今後、フレコンバッグに収納された比較的低濃度の除染廃棄物焼却灰などを埋立処分する場合には、個々のサンプルからの放射性Cs溶出率を簡便に測定することで、もっとも溶出率が少なく一般環境への影響が最少になると考えられる埋立処分時の焼却灰の組み合わせといった検討が可能となる。また、灰洗浄を行うことによって、最終処分量の減容化を行う場合に、目標とする洗浄率を得るための洗浄条件も定量的に予測することが可能となる。本報告ではCsと競争吸着関係にある陽イオンとして、K<sup>+</sup>に注目した解析結果を示したが、同様な陽イオンとしてアンモニウムイオンを用いた場合は、洗浄液からアンモニウムイオンのみを除去することが比較的容易に行え、洗浄液からの放射性Csの回収も容易になると考えられる。この場合に本報告で示した一般式を利用した定量的解析を行うことで、灰洗浄による減容化の実用性も高まると考えられる。

双葉町の間蔵施設において減容化施設が決まり、熔融施設が導入されることとなった。Csは熔融飛灰に濃縮されることになるが、その処理処分方法は現時点では決まっていないが、今後決定する必要がある。そのためには、Csを安全に確実に固定化する技術が求められ、その一つの方策となるのがジオポリマー技術である。本方法によれば、熔融飛灰の場合は1%程度の溶出率が達成可能であり、Cs-137で30万Bq/kg程度の熔融飛灰であれば、直接固化を実施可能である。直接固化を実施するかどうかは別にして、熔融飛灰の様々な影響を調べることは今後の中間貯蔵・最終処分に関する政策を支える科学的知見になると考えられる。

### 4. 委員の指摘及び提言概要

当初の目標に沿った研究の進展があり、地道な成果が認められる。低濃度の放射性汚染物質の場合は、近似による溶出モデルを開発して、リーズナブルな成果をあげている。ジオポリマーについての見通しについて及び実験室レベルから処理場でのスケールレベルまでもって行く技術的な見通しについて、技術評価を行う必要がある。福島の実状を踏まえたコスト・効果等の実用可能性の追求(他技術と比較した優位性の追求)が強く望まれる。

### 5. 評点

総合評点：A