

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：505-1 放射性廃棄物処理

2024年9月11日(水) 14:45 ~ 16:50 K会場(講義棟B棟2F B200)

[1K08-15] 1F廃棄物2

座長:中瀬 正彦(東工大)

14:45 ~ 15:00

[1K08]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(44)フェロシアン化物を含む模擬スラッジの低温固化処理適用範囲の検討

*谷口 拓海¹、倉持 亮¹、坂本 亮²、大澤 紀久²、金田 由久²、松澤 一輝³、山本 武志³、黒木 亮一郎¹、岡田 尚¹、吉田 幸彦¹ (1. JAEA、2. 太平洋コンサルタント、3. 電中研)

15:00 ~ 15:15

[1K09]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(45) 低温固化可能性検査手法における水素ガス発生量簡易評価法の検討

*清水 恒輝¹、倉持 亮¹、榎本 真由¹、松本 早織¹、谷口 拓海¹、黒木 亮一郎¹、岡田 尚¹、吉田 幸彦¹、大杉 武史¹ (1. JAEA)

15:15 ~ 15:30

[1K10]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(46) 低温固化可能性検査手法における材料分離の判定基準の検討

*平木 義久¹、谷口 拓海¹、岡田 尚¹、吉田 幸彦¹、大杉 武史¹ (1. JAEA)

15:30 ~ 15:45

[1K11]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(47) 低温固化可能性検査手法における浸出特性簡易評価手法の検討

*大澤 紀久^{1,2}、金田 由久¹、坂本 亮^{1,2}、谷口 拓海²、黒木 亮一郎²、岡田 尚²、吉田 幸彦²、大杉 武史² (1. 太平洋コンサルタント、2. 日本原子力研究開発機構)

15:45 ~ 16:00

[1K12]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(48) セメント、ガラス、スラグに対する統一した浸出特性評価試験

*高橋 裕太¹、松本 早織¹、谷口 拓海¹、黒木 亮一郎¹、岡田 尚¹、吉田 幸彦¹、大杉 武史¹ (1. JAEA)

16:00 ~ 16:15

[1K13]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(49) 白華試験法による低温処理材料の長期変遷と加速度合いに関する検討

*松本 早織¹、倉持 亮¹、清水 恒輝¹、佐藤 淳也¹、谷口 拓海¹、黒木 亮一郎¹、岡田 尚¹、吉田 幸彦¹、大杉 武史¹ (1. JAEA)

16:15 ~ 16:30

[1K14]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(50) 加温養生と促進中性化による低温処理材料の長期変質と加速度合いの検討

*坂本 亮^{1,2}、金田 由久¹、小林 佑太朗¹、芳賀 和子¹、谷口 拓海²、黒木 亮一郎²、岡田 尚²、吉田 幸彦²、大杉 武史² (1. 太平洋コンサルタント、2. JAEA)

16:30 ~ 16:45

[1K15]

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発

(51) AAM固化体中の非晶質相の結晶化に関する検討（その2）

*小林 佑太朗¹、大澤 紀久^{1,3}、芳賀 和子¹、金田 由久¹、ハイルン ラウダトゥル イスラム^{2,3}、佐藤 努²、谷口 拓海³、黒木 亮一郎³、岡田 尚³、吉田 幸彦³ (1. 太平洋コンサルタント、2. 北大、3. JAEA)

16:45 ~ 16:50

座長持ち時間

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発
(44)フェロシアン化物を含む模擬スラッジの低温固化処理適用範囲の検討

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste
at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(44) Investigation of solidification range for simulated sludge containing ferrocyanide

*谷口 拓海¹, 倉持 亮¹, 坂本 亮^{1,2}, 大澤 紀久^{1,2}, 金田 由久², 松澤 一輝³, 山本 武志³,
黒木 亮一郎¹, 岡田 尚¹, 吉田 幸彦¹, 大杉 武史¹

¹ 日本原子力研究開発機構, ² 太平洋コンサルタント, ³ 電力中央研究所

福島第一原子力発電所の汚染水処理で発生する汚染水処理二次廃棄物に関して、実処理に適用可能な処理技術の抽出を目指して、廃棄物と処理技術の組み合わせを調査している。本報では、除染装置スラッジ(模擬として硫酸バリウムとフェロシアン化物の混合物)に対して低温固化処理(セメント及び AAM 固化)を適用し、廃棄物充填率や配合組成を変化させて安定した固化処理が可能な範囲(固化処理範囲)を調査した。

キーワード：汚染水処理二次廃棄物、セメント固化、AAM 固化、固化処理範囲

1. 緒言

福島第一原子力発電所の汚染水処理で発生する汚染水処理二次廃棄物に関して、実処理に適用可能な処理技術を抽出する手法構築に資するため、各種固化処理技術の適用性評価に必要なデータの取得を進めている。本報では除染装置から発生するスラッジの模擬物を対象に、低温固化処理を適用した場合に十分な流動性やハンドリング時間を確保し、均一で強度を確保した固化体が作製可能となる固化処理範囲について調査した。

2. 材料と試験方法

除染装置スラッジの実廃棄物の分析結果^[1]を参考に、硫酸バリウム(以下、BaS)とフェロシアン化物(以下、FCN)を 4:1 の割合で混合したものを模擬スラッジとして使用した。固型化材料として、セメント固化(以下、OPC 固化)では普通ポルトランドセメントと純水を使用した。アルカリ活性材料固化(以下、AAM 固化)ではメタカオリンと高炉スラグを 10 : 0、6 : 4 の質量比で混合した 2 種類の粉体及びケイ酸ナトリウム溶液と水酸化ナトリウムを純水に溶解したアルカリ溶液を使用した。OPC 固化では廃棄物充填率及び水/固体比(以下、W/S 比)、AAM 固化では廃棄物充填率、W/S 比及びアルカリ溶液組成を変化させて、混練物の流動性、凝結時間、28 日間養生後の圧縮強度、外観の各基準を満たす組成を調査した。得られた組成から固型化材料と水、模擬廃棄物の割合で表す固化処理範囲を検討した。

3. 試験結果、考察及び結論

固化処理範囲の検討結果を図 1 に示す。流動性による制限を赤線、凝結時間による制限を緑線、圧縮強度による制限を青線、固化体外観による制限を黒線で示しており、基準を全て満足する固化処理範囲(線に囲まれた領域)を見出した。既報の BaS のみを模擬廃棄物とした場合の三角図^[2]と比較して、組成に占める水分の割合が増加した。これは BaS の吸水量(0.25 mL/g)に比べて、FCN の吸水量(0.65 mL/g)が大きいことが影響したものと考えている。また、AAM 固化は OPC 固化と比較して、固化処理適用範囲が狭くなった。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に係る研究開発)」』によって実施したものである。

参考文献 [1]比内ら, 日本原子力学会 2019 年秋の大会, 2B11(2019 年 9 月)

[2]谷口ら, 日本原子力学会 2023 年秋の大会, 2E01(2023 年 9 月)

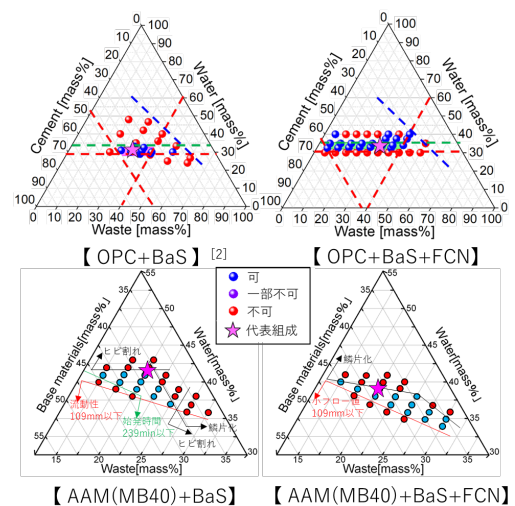


図 1 低温固化可能な組成の範囲

* Takumi Taniguchi¹, Ryo Kuramochi¹, Ryo Sakamoto^{1,2}, Norihisa Osawa^{1,2}, Yoshihisa Kaneda², Kazuki Matsuzawa³, Takeshi Yamamoto³, Ryoichiro Kuroki¹, Takashi Okada¹, Yukihiko Yoshida¹, and Takeshi Osugi¹

¹JAEA, ²Taiheiyo Consultant, ³CRIEPI.

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発
(45) 低温固化可能性検査手法における水素ガス発生量簡易評価法の検討

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste
at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(45) Investigation of simple evaluation methods of hydrogen gas generation for the purpose of establishing a
feasibility test method for room temperature solidification.

*清水 恒輝, 倉持 亮, 榎本 真由, 松本 早織, 谷口 拓海,
黒木 亮一郎, 岡田 尚, 吉田 幸彦, 大杉 武史
日本原子力研究開発機構

廃炉汚染水処理の二次廃棄物の固化体性能に関する簡易評価法(スクリーニング)を構築することを目的に、放射線の影響による固化体からの水素ガス発生量を簡易に評価するため方法を検討している。今回、外部照射施設(Co-60)と汎用の X 線発生装置を用いた照射試験の比較を行い、G 値に与える影響を評価した。

キーワード：汚染水処理二次廃棄物、スクリーニング、放射線分解、水素ガス発生、G 値

1. 緒言

福島第一原子力発電所の汚染水処理で発生する汚染水処理二次廃棄物の固化体性能(水素ガス発生量)は外部照射施設で水素ガス発生量を評価してきた。一方で水素ガス発生量の評価を現地で簡便に評価可能とする合理的な簡易評価法の構築を進めており、実験室内で使用可能な汎用の X 線発生装置を利用した評価法を検討している。既報[1]の外部照射施設で得られた水素ガス発生の G 値と比較し、G 値に与える影響及び本法の適用性を評価した。なお、試料容器は他の簡易評価項目に合わせ、ポリエチレン製の遠沈管を使用した。

2. 試料と試験方法

本試験では、試料に X 線を照射し、発生した水素ガスを測定した。試料は、普通ポルトランドセメント(以下、OPC)固化体を充填した遠沈管と空の遠沈管を石英製の密閉容器(図 1)に封入したものを使用した。OPC 固化体は、OPC と純水を水セメント比 0.45 にて混練し、混練物を遠沈管に充填し、20℃、28 日間封緘養生し作製した。試料には、図 2 に示す X 線照射装置((株)トーレック製、TRIX-150LEO-SB)の X 線(管電圧 150kV、管電流 3mA)を照射した。X 線照射後、密閉容器内の水素ガスはガスクロマトグラフ((株)島津製作所製、GC-2014)で測定した。吸収線量は密閉容器に貼付した線量計(ラジエ工業(株)製、Radix W)の吸光度(280nm)を分光光度計(日本分光(株)製、V-550DS)で測定し算出した。水素ガス発生量、吸収線量及び OPC 固化体重量から水素ガス発生の G 値を算出した。

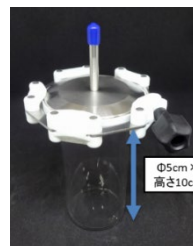


図 1. 密閉容器

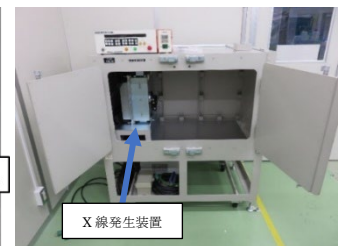


図 2. X 線照射装置

3. 試験結果及び結論

遠沈管(OPC 固化体)と遠沈管(空)の両方から水素ガスが発生したが、遠沈管(OPC 固化体)からは十分な量の水素ガス発生を確認した (表 1)。また、今回の試験条件では、X 線照射装置で得られた G 値は、外部照射施設の結果と比べ、2 割ほど低い結果が得られた(表 2)。G 値が低くなった要因として、X 線照射装置から照射される低エネルギーから高エネルギーの X 線の内、低エネルギーの X 線は物質との相互作用による影響が大きい特徴があるため、線量計や密閉容器、遠沈管に遮蔽され、OPC 固化体の吸収線量が低下し水素ガス発生量が低下したためと考えられる。X 線照射装置を用いて水素ガス発生量を測定し比較することで、現地で簡便に水素ガス発生量を評価する簡易評価法として適用可能であると評価した。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」』によって実施したものである。

参考文献 [1] 谷口ら, 日本原子力学会 2019 年秋の大会, 1B12, 富山大学 2019 年 9 月

* Koki Shimizu, Ryo Kuramochi, Mayu Enomoto, Saori Matsumoto, Takumi Taniguchi, Ryoichiro Kuroki, Takashi Okada, Yukihiro Yoshida and Takeshi Osugi
JAEA

表 1. 各遠沈管からの水素ガス発生量

	水素ガス発生量 [nmol]
遠沈管(OPC 固化体)	0.9
遠沈管(空)	0.4

表 2. 外部照射施設及び
X 線照射装置により取得した G 値

	G 値
外部照射施設	0.009
X 線照射装置	0.007

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発 (46)低温固化可能性検査手法における材料分離の判定基準の検討

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste at
Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(46) Criteria for material separation in test methods to verify the possibility of solidification

*平木 義久¹, 谷口 拓海¹, 岡田 尚¹, 吉田 幸彦¹, 大杉 武史¹

¹ 日本原子力研究開発機構

汚染水処理から発生する様々な廃棄物に対して、低温処理技術(セメント固化等)による固化処理の適用可能性を簡易に検査する手法を検討している。廃棄物混練時の材料分離は、固化体の品質に影響する。そのため画像判定装置を用いて、セメントと模擬廃棄物の沈降速度差を計測することで、材料分離の影響に関して、混練時に均一な固化体を作製可能か簡易に判定できる方法を整理した。

キーワード：福島第一原子力発電所、汚染水処理二次廃棄物、スクリーニング検査、セメント固化

1. 緒言

福島第一原子力発電所で発生する汚染水処理二次廃棄物に関して、低温処理技術による固化処理の適用可能性検討を行っている。廃棄物の性状は多様であり、化学組成によっては固化しない等で、固化処理が適用できない可能性がある。種々の廃棄物に対し、JIS 規格準拠の混練試験により固化可能性を確認すると膨大な時間を要する。そのため実処理に先立ち、可視画像と熱画像を連続撮影できる画像判定装置を用いて、簡易的に低温固化処理可能性を判定する検査手法を開発している。本研究の過去の試験で、固化体の表層に材料分離が原因とみられる鱗片化があった。材料分離は強度の低下等の原因となり、固化体の品質が確保できなくなる。そのため、材料分離性の確認を検査項目に追加し、普通ポルトランドセメント(OPC)や沈降速度の異なる模擬廃棄物を用いて、廃棄物混練時に均一な固化体を作製可能か判定する評価方法を検討した。

2. 検討手順・試験方法

固型化材料と廃棄物の沈降速度の差が一定以上になると、材料分離が生じると推定し、沈降速度を用いた判定基準値を検討した。はじめに、画像判定装置を用いて、OPC および模擬廃棄物の水中における沈降速度を測定し、その沈降速度差を算出した。ストークスの式によると、沈降速度は対象物の密度および粒子径の影響を受ける。そのため模擬廃棄物は、過去の検討で材料分離が生じた硫酸バリウムのほか、アルミナ、ジルコン、ジルコニア等で、かつ様々な沈降速度となるよう、粒子径の異なるものを数種類用意した。沈降速度は、試料を入れた 50mL の遠沈管に水を 40mL 投入し、振とう後の水中の試料界面を経時的に撮影し、界面の経時変化から算出した。次に、固型化材料(OPC)と模擬廃棄物を液固比 0.429、廃棄物混合率 30mass%で混練した際に、図 1 のように材料分離(ブリーディングの残留、鱗片化等)が発生するかを確認した。試験で得られた沈降速度差と材料分離発生との関係性を整理することで、廃棄物単体の沈降速度測定により、混練時の材料分離発生を判定可能な基準値を検討した。

3. 試験結果・結論

沈降速度は、OPC が 111 cm/h、模擬廃棄物はアルミナで 34 cm/h、ジルコニアで 372 cm/h 等であった。OPC+模擬廃棄物の混練試験では、沈降速度の差に応じたブリーディングの状態の違いが得られた。模擬廃棄物と OPC の沈降速度差が 190cm/h 以内(アルミナ等)では、混練から 24 時間以内にブリーディングが消失した。一方、沈降速度差が 261cm/h 以上(ジルコニア等)では、24 時間後もブリーディングが残留した。以上の沈降速度差と材料分離発生との関係性から、低温固化処理可能性検査手法における、廃棄物を OPC 混練した際に均一な固化体を作製可能か判定する条件を整理できた。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」』によって実施したものである。

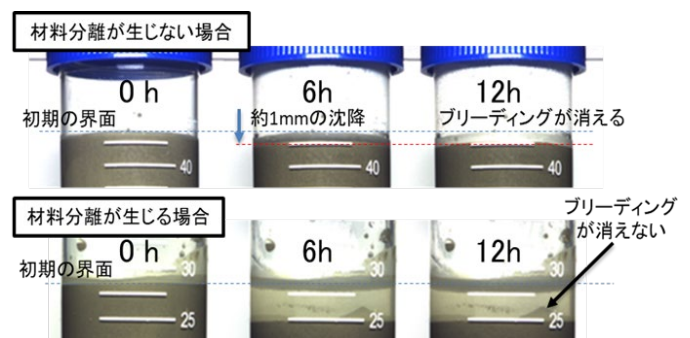


図 1 材料の沈降とブリーディングの様子
(上：OPC、下：OPC+ジルコン(500μm))

* Yoshihisa Hiraki¹, Takumi Taniguchi¹, Takashi Okada¹, Yukihiro Yoshida¹ and Takeshi Osugi¹

¹JAEA

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発 (47) 低温固化可能性検査手法における浸出特性簡易評価手法の検討

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste
at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(47) Study on simple evaluation method of leaching characteristics in low-temperature solidification possibility screening

*大澤 紀久^{1,2}, 金田 由久¹, 坂本 亮^{1,2}, 谷口 拓海², 黒木 亮一郎², 岡田 尚²,
吉田 幸彦², 大杉 武史²

¹太平洋コンサルタント, ²日本原子力研究開発機構

汚染水処理から発生する様々な廃棄物に対して、低温処理技術（セメント固化等）による固化処理プロセスの適用可能性を簡易に検査（スクリーニング）するため、固化体中の元素浸出性を簡易的に評価する手法について検討した結果の一部を紹介する。

キーワード：低温固化処理, スクリーニング検査, 核種浸出性, 液固比, 接触面積比

1. 緒言 福島第一原子力発電所の汚染水処理において発生する多様な廃棄物に対して、低温固化処理の適用を簡易に判定する検査手法の開発を進めている^{[1],[2]}。その検査手法の 1 つとして、廃棄物をセメントなどで固化した固化体からの核種の浸出特性を簡易的に評価する手法について検討した。

2. 実験 前報の結果^[2]を踏まえて、表 1 に示すように、接触面積比を 10 に統一し、試料サイズと液固比を変化させて浸出試験（以下、簡易法）を実施し、ANS 浸出試験（以下、ANS 法）の結果と比較評価した。なお、試験には、模擬核種として、Cs、Sr、Ce、Sn を模擬廃棄物（模擬炭酸塩スラリー：CS）

表 1 比較した各浸出試験の条件

水準	試料サイズ	液固比	接触面積比
ANS	Φ 50×H 50 mm	7-7.5	10
2023 Case1	Φ 40×H 40 mm	8.6-8.8	
2023 Case2	Φ 30×H 30 mm	11.6-11.9	
2023 Case3	Φ 20×H 20 mm	17.5-17.9	
2023 Case4	Φ 10×H 10 mm	35-36.7	

の 0.1 wt.% 添加し、28 日間養生したセメント固化体およびアルカリ活性化材料（AAM）固化体を用いた。

3. 結果 実施水準の中で最も小さい試料サイズである、2023 Case4 の Cs、Ce の溶出指標：Leachability Index（以下、LI 値）を基準にした比（LI 比）の結果を図 1 に示す。図 1 では、前報と同様に、検出下限値未満のものを 0 に近い数値とするために、検出下限値の 1/100 を代入して LI 比を算出した。また、検出下限値未満の取扱い方法を変更（分析装置の保証値＝検出下限値を代入）して算出した LI 比と、評価時間についての取扱いも変更（試験開始からの浸出時間を 120 時間から 24 時間まで短縮）して算出した LI 比も示した。

図 1 より、検出下限値未満の取扱いを変更することで、溶出率が低い（浸出試験 24 時間で 0.1 % 以下）Ce について、ANS 法の結果に近づいた。また、評価時間を 120 時間から 24 時間に短縮することで、溶出率が高い（24 時間の浸出率 20 % 以上）Cs についても、ANS 法の結果に近づいた。

これらの結果から、2023 Case4 では、容積 50 cc 程度の遠沈管内で簡易的に浸出試験を実施可能であり、核種の浸出特性をスクリーニングする水準として最適であることが示唆された。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）」』によって実施した。

参考文献 [1] 田畑 他 (2022), 日本原子力学会 2022 年秋の大会予稿集 3A05

[2] 大澤 他 (2023), 日本原子力学会 2023 年秋の大会予稿集 2E03

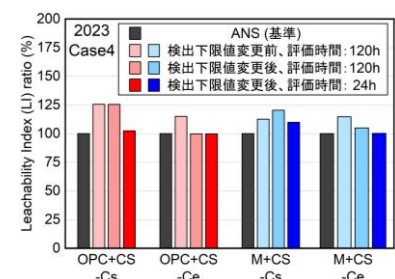


図 1 LI 比の比較結果(2023 Case4)

*Norihiisa Osawa^{1,2}, Yoshihiisa Kaneda¹, Ryo Sakamoto^{1,2}, Takumi Taniguchi², Ryoichiro Kuroki², Takashi Okada², Yukihiro Yoshida² and Takeshi Osugi². ¹Taiheiyo Consultant, ²JAEA

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発 (48) セメント、ガラス、スラグに対する統一した浸出特性評価試験

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste
at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(48) Study of Unified Leaching Test for Cement, Glass, and Slag Solidified Body

*高橋 裕太¹, 松本 早織¹, 谷口 拓海¹, 黒木 亮一郎¹, 岡田 尚¹, 吉田 幸彦¹, 大杉 武史¹

¹ 日本原子力研究開発機構

福島第一原子力発電所の廃炉作業で生じる汚染水処理二次廃棄物をセメント、ガラス、スラグを用いて固化した固化体について、共通的な評価を実現するための浸出試験の検討を行った。セメント固化体、ガラス固化体及び熔融固化体（スラグ）を対象に、統一した試験体系の構築に向けた浸出試験を行い、固化体中の元素の Leachability Index (LI 値) を算出し、各種固化体の浸出特性を比較した。

キーワード： OPC 固化体, ガラス固化体, スラグ固化体, 処分環境条件, 浸出試験

1. 緒言

福島第一原子力発電所の廃炉作業で生じる汚染水処理二次廃棄物を普通ポルトランドセメント（OPC）やガラス、スラグ等で固化処理した廃棄体は、処分区分に応じて埋設される。各種固化体の浸出特性は各々に適した温度や浸出液の動きなど、異なる浸出試験方法により得られるため、材料や試験間の浸出率等の比較は難しい^[1]。多様な汚染水処理二次廃棄物を既存の処分概念に囚われず合理的に固化処理するために、様々な種類の固化体に対して統一的な性能評価の手法として、OPC 固化体、ガラス固化体及びスラグ固化体を対象に、温度を指標とした試験体系で浸出試験を行い、固化体からの元素の浸出特性を比較した。

2. 方法

汚染水処理二次廃棄物に含まれている浸出特性を評価すべき主要な元素としてセリウム、セシウム、スズ、ストロンチウムを選択し、模擬元素を添加した OPC 固化体、ガラス固化体を作製した（表 1）。スラグ固化体は、事業内で提供を受けた Sr を含む金属熔融除染後の模擬スラグを原料として作製した。模擬対象元素の濃度は、過去の報告を参考に^[2]、材料配合時に OPC 固化体では 300 mg/kg、ガラス固化体では 3000 mg/kg となるように調整した。スラグ固化体の Sr 濃度は、模擬スラグの波長分散型蛍光 X 線分析の結果に基づいて 8800 mg/kg とした。各固化体は 1cm×1cm×0.5cm に成型し、大気雰囲気下、20, 70, 90, 150℃と異なる温度条件において 28 日間の浸出試験を行った。また、1, 2, 3, 7, 14, 28 日に浸出液を全量回収し、再び純水に浸漬させている。浸出液中の各元素量を測定し、浸出期間と累積浸出量の関係から、ANS/ANSI16.1-2019 に規定された算出方法に従い、LI 値を算出した。

3. 結果

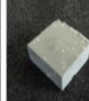
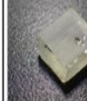
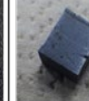
各温度条件における Sr の LI 値を図 1 に示す。LI 値は値が大きいほど浸出量が少ないことを示す。各固化体の LI 値は 20℃で最も大きく、浸出しにくいことが分かる。OPC 固化体及びスラグ固化体では 70℃以上の条件では LI 値に大きな変化が観察されなかったが、ガラス固化体は温度上昇に伴い、LI 値が低減した。各種固化体の浸出特性を同じ試験条件で比較することができた。LI 値の各温度、浸出期間の傾向から異なる浸出試験のデータ間の相関性を評価することで統一的な評価手法の実現に向けた検討が行えた。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）」』によって実施したものである。

参考文献 [1]高橋ら, 日本原子力学会 2023 年秋の大会, 2E04(2023 年 9 月)

[2]金田ら, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, 3A03(2021 年 9 月)

表 1 浸出試験に用いる固化体

	セメント	ガラス	スラグ
作製方法	模擬元素を添加し、混練後切断し成型 20℃で28d養生	模擬元素を添加して溶融後、切断し成型 1200℃で3h保持	提供を受けたスラグを溶融後、切断し成型 1500℃で3h保持
外観			
模擬元素	Ce, Cs, Sn, Sr (300 mg/kg)	Ce, Cs, Sn, Sr (3000 mg/kg)	Sr (8800 mg/kg) ※XRF分析から計算値

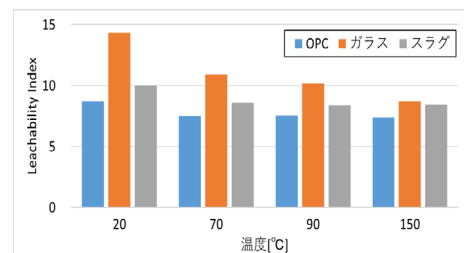


図 1 各温度条件における Sr の LI 値
(左から OPC, ガラス, スラグ)

* Yuta Takahashi¹, Saori Matsumoto¹, Takumi Taniguchi¹, Ryoichiro Kuroki¹, Takashi Okada¹, Yukihiko Yoshida¹, and Takeshi Osugi¹

¹JAEA

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発 (49)白華試験法による低温処理材料の長期変遷と加速度合いに関する検討

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste
at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(49) Evaluation of long-term alteration and acceleration of crystalline phase transformation of room
temperature treated materials by efflorescence test

*松本 早織, 倉持 亮, 清水 恒輝, 佐藤 淳也, 谷口 拓海,
黒木 亮一郎, 岡田 尚, 吉田 幸彦, 大杉 武史
日本原子力研究開発機構

汚染水処理で発生する二次廃棄物の固化体の埋設処分後の長期変質に伴う性能変化を評価するため、固化体の長期変質を評価する手法の開発に取り組んでいる。本報では、固化体中の水の移動による鉱物相変化への影響を評価するために白華試験を実施した。固化体中の通過水分量と結晶相の強度比の関係から積算通過水分量に対する鉱物相の生成度合いを比較し、鉱物相の変質を評価した。

キーワード：汚染水処理二次廃棄物、セメント、アルカリ活性材料、白華、長期変質

1. 緒言

福島第一原子力発電所の汚染水処理で発生する汚染水処理二次廃棄物に適用可能な処理技術を抽出するため、固化処理技術の適用性評価に必要なデータの取得を進めている。

これまでに鉱物相の変質に係る因子を調査し、固化体中の水の移動が主要因子の一つとして抽出された。そのため、固化体中の水の移動による鉱物相の変質に及ぼす影響を定量的に評価するために白華試験に取り組んでいるが、前報[1]では、通過水分量が少なく鉱物相に変化が見られないものもあった。本報では、固化体の下部 15mm を純水に浸漬し、浸漬期間をより長期化して積算通過水分量を増加させ、各固化体における積算通過水分量に対する鉱物相の生成度合いを比較した。

2. 材料と試験方法

普通ポルトランドセメント固化体(OPC)、メタカオリン 100%の AAM(M)及びメタカオリンの 40%を高炉スラグに置換した AAM(MB40)の 3 種類を試験に用いた。20℃ で 28 日間封緘養生した固化体を 40 mm 角に切断成形し、側面部を樹脂で塗装した。純水を入れた白華試験装置に固化体の下部 15mm を浸漬し、20℃ の大気中で保管した。固相を通過した水分は表面から大気中に抜けて水の重量が減少するため、2～3 日間隔で装置全体の重量を計測し、減少分を通過水分量とした。期間は 8, 12, 16, 20, 24 週とし、試験期間毎に通水後の固化体を取り出し、表層①(上面端から 0～5mm)、表層②(上面端から 5～10 mm)及び底層(下面端から 0～5mm)について切り出し粉碎し、X 線回折装置を用いて結晶相を分析した。

3. 試験結果、考察及び結論

OPC では試験前と 24 週経過後の固化体の外観にほとんど違いが見られなかったのに対し、AAM(M)、AAM(MB40)では固化体表面に白色の析出物が観察された。また、表層①、②及び底層の結晶相を調査した結果、OPC では鉱物相の変化が観察されなかったのに対し、AAM(M)、AAM(MB40)では表層①、②において Faujasite の生成が確認された。AAM(M)と AAM(MB40)において、変質の可能性が低いメタカオリン由来の Anatase を内部標準として Faujasite と Anatase の回折強度比を算出した。通過水分量に対する Faujasite/Anatase 回折強度比の関係を図 1 に示す。通過水分量の増加に伴う Faujasite の生成量の関係性が示されるとともに、線形近似曲線の傾きの比較から、AAM(M)と AAM(MB40)では通過水分量に対する Faujasite の生成度合いが異なることが明らかになった。

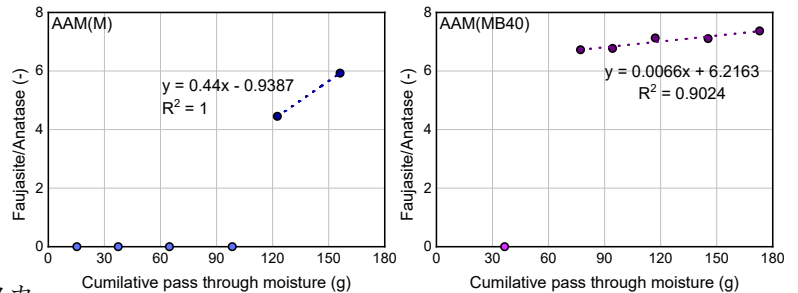


図 1 通過水分量と Faujasite の生成量の関係
(左：AAM(M)、右：AAM(MB40))

通過水分量の増加に伴う Faujasite の生成量の関係性が示されるとともに、線形近似曲線の傾きの比較から、AAM(M)と AAM(MB40)では通過水分量に対する Faujasite の生成度合いが異なることが明らかになった。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」』によって実施したものである。

参考文献 [1]佐藤ら, 日本原子力学会 2023 年秋の大会, 2E05(2023 年 9 月)

* Saori Matsumoto, Ryo Kuramochi, Koki Shimizu, Junya Sato, Takumi Taniguchi, Ryoichiro Kuroki, Takashi Okada, Yukihiro Yoshida and Takeshi Osugi
JAEA

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発 (50) 加温養生と促進中性化による低温処理材料の長期変質と加速度合の検討

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station.

(50) Evaluation of long-term alteration and acceleration of cement or Alkali Activated Material solidified body promoted by heat curing and accelerated carbonation

*坂本 亮^{1,2}, 金田 由久¹, 小林 佑太朗¹, 芳賀 和子¹, 谷口 拓海², 黒木 亮一郎², 岡田 尚²,
吉田 幸彦², 大杉 武史²

¹太平洋コンサルタント, ²日本原子力研究開発機構

福島第一原子力発電所の汚染水処理から発生する汚染水処理二次廃棄物を低温固化処理した固化体の長期保管時の変質挙動を検討するため、セメントおよび AAM 固化体を作製し、加温養生試験および促進中性化試験により変質を加速させた固化体の生成相を確認した。加速の定量化方法を検討した結果について紹介する。

キーワード: セメント固化, AAM 固化, 加温養生, 促進中性化, 加速

1. 緒言 福島第一原子力発電所から発生する廃棄物の処理方法について、セメント固化と AAM(Alkali Activated Materials)固化の基礎データの取得を進めている^[1,2]。本報告では、長期の保管や処分後の固化体の変質挙動を検討する目的で、加温養生および促進中性化させた固化体の生成相を確認し、生成した鉱物の加速度合を定量評価し、加温養生および促進中性化試験の変質の加速試験としての有効性を検討した。

2. 実験 本試験には、セメント固化体(以下、OPC)および AAM 固化体を用いた。AAM 固化体の配合は、メタカオリンと高炉スラグ微粉末の混合割合を 100:0 および 60:40 の 2 条件とした(以下、M、MB40)。作製した固化体を 20 °C で 28 日間封緘養生後、加温養生および促進中性化試験に供した。加温養生の条件を標準条件(20 °C)と加速条件(50 °C、80 °C)とし、促進中性化の条件を標準条件(20 °C 試験室内)と加速条件(20 °C、RH60 %、CO₂ 濃度 5 %)とした。所定期間経過後に X 線回折試験により生成相を確認し、加速により生成した鉱物相のピーク面積比(生成した鉱物のピーク面積/内部標準物質のピーク面積)と試験期間の関係より、鉱物相の生成開始から生成が収束するまでの立ち上がり期間のピーク面積比を線形近似し、近似式の傾き(速度定数)から加速度合(標準条件に対する加速条件の速度定数)を評価した。

3. 結果 加温養生の M および MB40 では Faujasite、促進中性化の MB40 では Aragonite などが生成し、各鉱物に着目して加速度合を定量的に評価した。一例として MB40 の結果を図 1 に示す。加温養生では、M および MB40 とともに温度の増大に伴い速度定数が増大しており、加速度合は M の 50 °C で 46.7 倍、80 °C で 304.3 倍、MB40 の 50 °C で 2.7 倍、80 °C で 84.7 倍となった。促進中性化では、MB40 の加速条件の速度定数が標準条件より増大しており、加速度合は 6.5 倍となった。ただし、促進中性化の M では、加速度合を評価する鉱物を選定できず、加速度合の評価ができなかった。一方、OPC の加温養生では Katoite、促進中性化では Vaterite に着目し、加速度合を評価できることが示唆された。

謝辞 本研究は、経済産業省「令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」」によって実施したものである。

参考文献 [1]日本原子力学会 2022 年秋の大会 3A08(2022), [2]日本原子力学会 2023 年秋の大会 2E06(2023)

*Ryo Sakamoto^{1,2}, Yoshihisa Kaneda¹, Yutaro Kobayashi¹, Kazuko Haga¹, Takumi Taniguchi², Ryoichiro Kuroki², Takashi Okada², Yukihiko Yoshida² and Takeshi Osugi²

¹Taiheiyo Consultant, ²JAEA

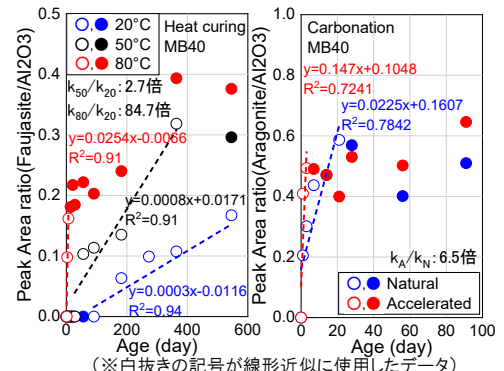


図 1 ピーク面積比の経時変化の一例

福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発 (51) AAM 固化体中の非晶質相の結晶化に関する検討 (その 2)

Research and development on preceding processing methods for contaminated water management waste
at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

(51) Crystallization of amorphous phases formed in Alkali Activated Material solidified body (2)

*小林 佑太朗¹, 大澤 紀久^{1,3}, 芳賀 和子¹, 金田 由久¹, Chaerun Raudhatul Islam^{2,3}, 佐藤 努²,
谷口 拓海³, 黒木 亮一郎³, 岡田 尚³, 吉田 幸彦³, 大杉 武史³,
¹太平洋コンサルタント, ²北海道大学, ³日本原子力研究開発機構

福島第一原子力発電所の汚染水処理から発生する廃棄物を低温処理材料で固化処理した固化体の長期保管時や処分後の変質挙動を検討する目的で、AAM（アルカリ活性材料）固化体中の主要生成物である非晶質相を合成し、加温養生を行い、結晶化による生成相の変化と結晶化速度について検討した結果を一部紹介する。

キーワード：AAM 固化, 非晶質相, 結晶化, 結晶化速度, 加温養生

1. 緒言 福島第一原子力発電所から発生する廃棄物の処理方法について、セメント・AAM 固化の基礎データの取得を進めている^[1]。本報告では、長期保管や処分後の固化体の変質挙動を検討する目的で、AAM 固化体を構成する非晶質ナトリウムアルミノシリケート水和物 (N-A-S-H) を合成し、加温による結晶化試験を実施することで、結晶化による生成相の変化と結晶化速度に及ぼす温度および環境条件の影響を評価した。

2. 実験 N-A-S-H の結晶化試験には、既往文献^[2]を参考に純薬合成した N-A-S-H①、および本事業の AAM 固化体と同様にメタカオリンを粉体材料とした N-A-S-H②を使用し、それぞれ硬化後に粗砕した試料（粒状試料）および硬化後に所定の寸法に成形した試料（バルク状試料）を作製した。なお、水/固体比および Na/Si モル比はそれぞれ 0.825、0.84 で統一し、Si/Al モル比は 1.2、1.5、1.8 とした。温度条件の影響に着目した粒状試料では試料を袋に密閉し（封緘）、環境条件の影響に着目したバルク状試料では封緘もしくは大気開放（気中）条件とした上で、20 °C、50 °C、80 °C 環境下へ移し、所定期間経過後の生成相の変化を評価した。

3. 結果 結晶化試験後の粒状試料では、出発物質や Si/Al モル比の違いに関わらず、全ての温度条件で N-A-S-H の結晶化により FAU 型ゼオライトが生成した。また、50 °C 以上では試験期間の経過に従い、FAU 型から GIS 型にゼオライトの構造が変化する傾向が見られ、Si/Al=1.8 の 80 °C 条件では、出発物質によらず 6 ヶ月以内に FAU 型ゼオライトは消失した（図 1）。結晶化試験後のバルク状試料のうち、粒状試料と同様の封緘条件では、N-A-S-H の結晶化によるゼオライトの生成および相転換が確認された。一方、気中条件では、出発物質や Si/Al 比、試験温度に関わらず全試料で結晶化が生じなかった（図 2）。気中条件では、試験開始時の系内の水分量が封緘条件の 1/2～1/3 程度と試料が乾燥していたことから、N-A-S-H の結晶化において系内の水分量が重要因子であることが示唆された。

謝辞 本研究は、経済産業省『令和 4 年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）」』によって実施したものである。

参考文献 [1] 小林他 (2023), 日本原子力学会 2023 年秋の大会 2E07.

[2] Walkley et al. (2016), Dalton Transactions, 45, 5521-5535.

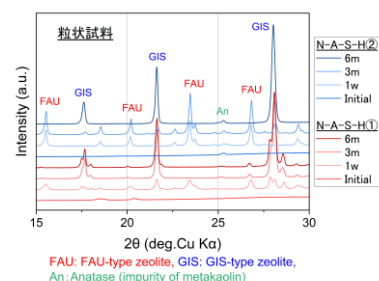


図 1 粒状試料の XRD 同定結果

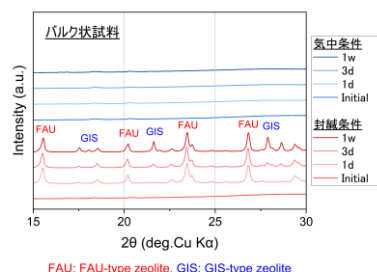


図 2 バルク状試料の XRD 同定結果

*Yutaro Kobayashi¹, Norihisa Osawa^{1,3}, Kazuko Haga¹, Yoshihisa Kaneda¹, Chaerun Raudhatul Islam^{2,3}, Tsutomu Sato², Takumi Taniguchi³, Ryoichiro Kuroki³, Takashi Okada³, Yukihiko Yoshida³ and Takeshi Osugi³. ¹Taiheiyo Consultant, ²Hokkaido University, ³JAEA