

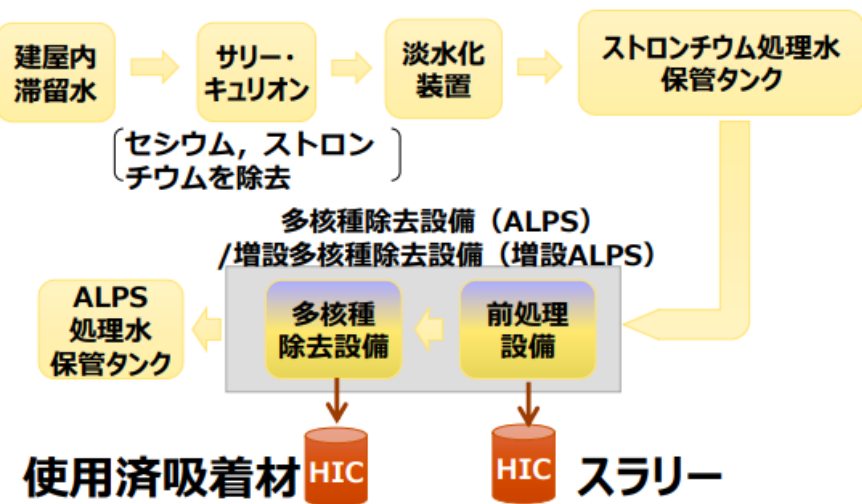
# 二次廃棄物処理とジオポリマー技術 ～放射性物質を固定化する～

## カンタレル・ビンセント

廃炉環境国際共同研究センター (CLADS)

デブリ・廃棄物マネジメントグループ

除染作業によって、使用済みの吸着材などの二次廃棄物が発生する。  
 これらの廃棄物を、安全に運搬・処分できるように、処理・固形化する必要がある。



技術 : モレキュラー  
シーブ



共沈



鉄共沈スラリー  
 炭酸塩スラリー

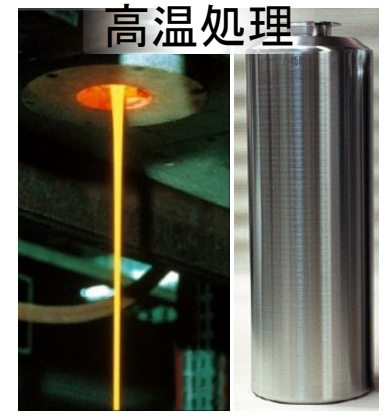
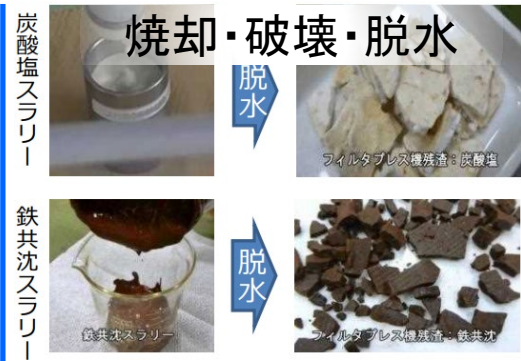
放射性物質 (核種)	半減期 $T_{1/2}$
Sr-89	51日
<b>Sr-90</b>	<b>29年</b>
Cs-134	2年
Cs-135	230万年
Cs-136	13日
<b>Cs-137</b>	<b>30年</b>

どれくらいの期間、廃棄物を閉じ込める必要があるのだろうか？

- 廃棄物の線量率がmSv/hからμSv/hにするには半減期が10倍かかる。
- 半減期は数年以内場合、中間貯蔵で待つだけで十分。
- 半減期が非常に長い物質は安定で、放射線をほとんど発生しない。

Cs-137とSr-90の半減期は30年で、輸送と処分のために固化して閉じ込める必要がある。固化体に長期間の閉じ込め性能があると安心。

廃棄物を保管するために、さまざまな技術が開発され、現在も開発中である。  
我々の目標は、作った廃棄物の「パッケージ」が輸送や処分の基準に適合するかを評価することである。



**例:** リサイクル、ドライ  
キャスク、圧縮。。

**例:** 焼却、プラズマ分解、  
酸化、脱水。。

**例:** ガラス固化、ジオメル  
ト、シンロック。。

**例:** セメント、高炉セメン  
ト、ジオポリマー。。

安価 増量なし  
拡散 漏洩

容積減少(減容)  
二次廃棄物を発生  
最終処理ではない

化学的に安定  
減容  
二次廃棄物を発生  
高価、技術的に複雑

安価、高強度の固化体  
二次廃棄物を生じない  
体積増加  
現代素材

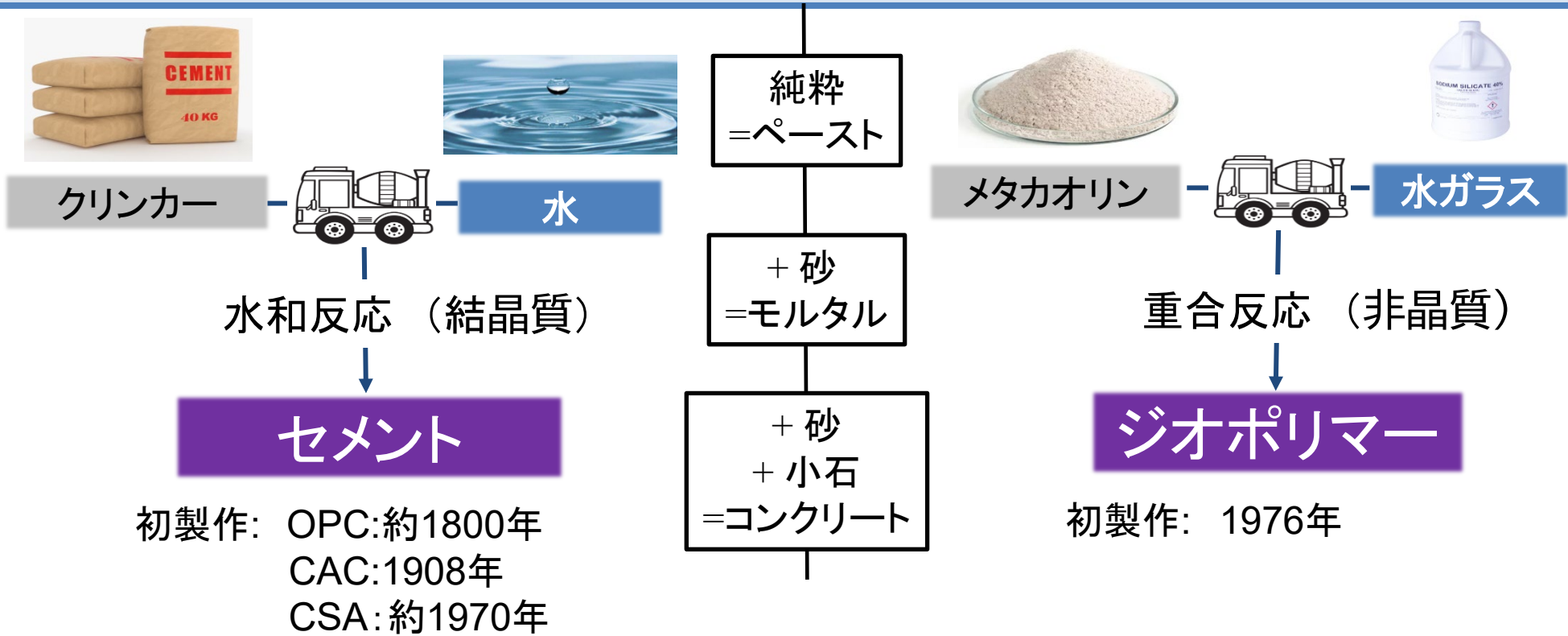
吸着材の**拡散**やス  
ラッジの**漏洩**の危険  
性があるため、1F汚  
染水処理の二次廃  
棄物には不適切。

処分場のスペースは  
限りがあり、生活環境  
に影響を与えないよう  
に、できるだけ活用し  
て廃棄物量を減らす。

複雑な技術、設定に  
時間がかかるが、高  
い線量率、長い半減  
期の廃棄物に適切

シンプルで素早く実  
施できるが、半減  
期の短い廃棄物に  
適切

ジオポリマーとセメントの製造工程は同じである。脱水した粉末を液体と混ぜ合わせ、固体を得る。しかし、起こる反応と、できた固体の構造は異なる。

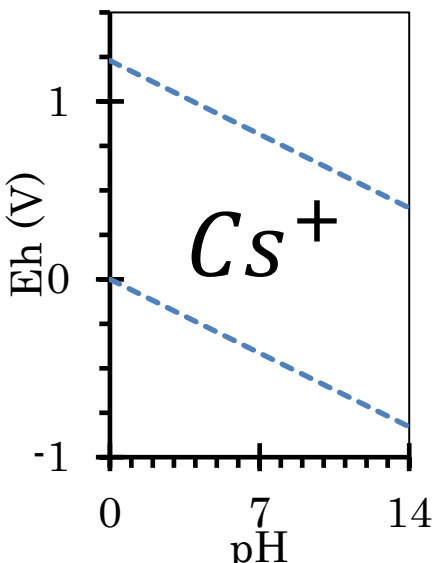


- セメントとジオポリマーは現代的な素材である。しかし、ガラスと違って、非常に長い間耐えられるかどうかを確かめるのが難しい。
- 浅地層(浅地中)に埋設する浅地中処分では、これらの材料の使用は、数百年以内に無害化される廃棄物に限定される。



福島第一原発の汚染水処理で発生する二次廃棄物の固化において、ジオポリマーにはメリットがある。その固化体中に放射性物質（核種）を閉じ込めるには、さまざまな現象が関係している。

### 酸化物として



Eh-pH 図 Cs - OH

Csは水中では酸化物として固定化できない

### 塩として

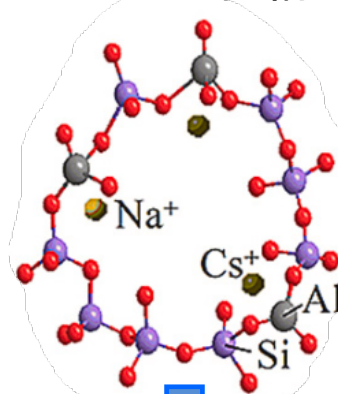
#### 水への溶解度

炭酸Sr	0.011 g/L	○
炭酸Cs	2605 g/L	×
硝酸Cs	91.6 g/L	×
硫酸Cs	1790 g/L	×

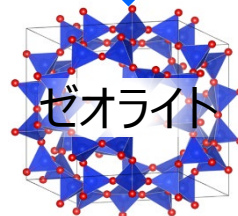
...

Csは水中では炭酸塩として固定化できない。

### 固化体構造の一部として



結晶化

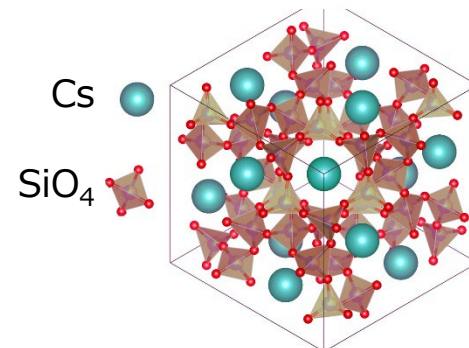


熱水条件

及び放射線



ポリューサイト-最古のサンプルは古生代のものである。

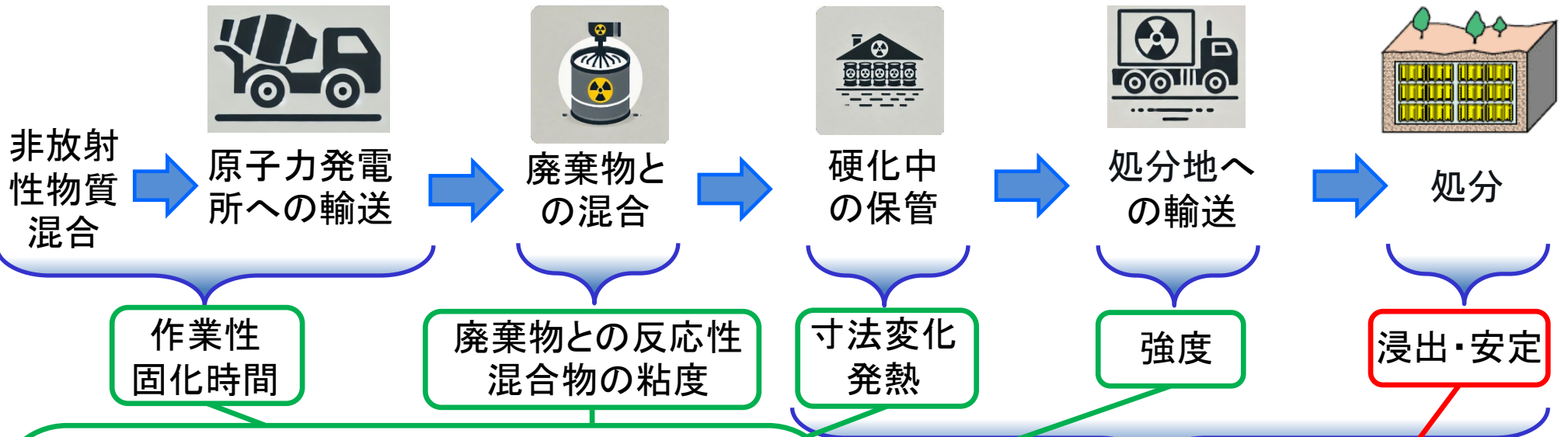


ジオポリマーの特殊な構造は、Csの固定化を可能にする。

また、ジオポリマー中にCsに適した空間ができて、Csを強く固定化できることも確認された。

ジオポリマーは内部の酸性度(pH)が高く、Srを炭酸塩として固定化することもできる。

室温での処理は比較的簡単であっても、処理の各工程には特有の技術的な困難やリスクがある。このため、それらをすべて予測し、それに応じたプロセスと固化体の組成を選択しなければならない。



非放射性の模擬物質で評価できる。

固化材	OPCセメント	高炉スラグ	ジオポリマー
鉄共沈スラリー			
炭酸塩スラリー			

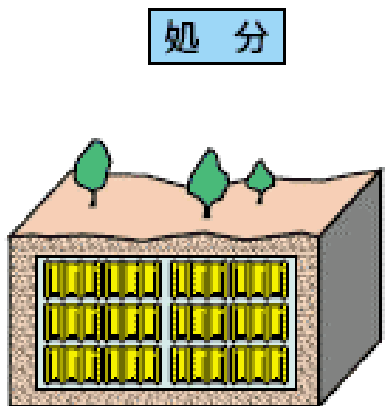
すでにセメントとジオポリマーの両方でいくつかの試験を実施し、成功を収めている。

ガス発生(特に水素)

浸出・安定・ガス発生の問題は時間をかけても評価されなければならない。我々のチームでは、ジオポリマーを中心に、この3つの側面に焦点を当てて研究を行っています。

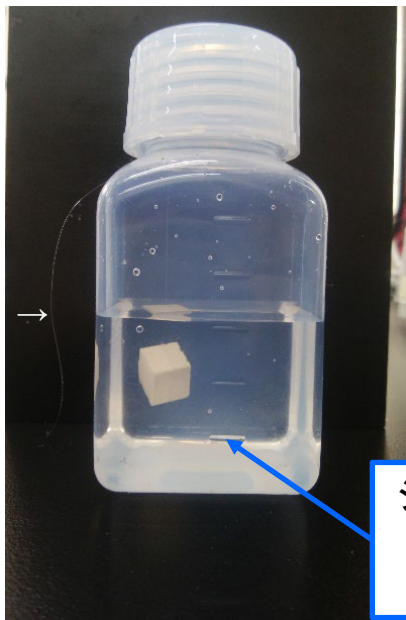
汚染水処理で発生した二次廃棄物は、固化処理（安定化）して保管または処分されると考えられる。本研究では、Csを吸着した廃ゼオライトをNa系のジオポリマーで固化処理する場合を想定し、ゼオライトから固化剤へのCs移行や固化剤中のCs移動に注目して、ジオポリマー固化体のCs保持特性を評価する。

処分の状態では、固化体はいくつかのバリア（障壁）によって環境から隔てられており、水の流れは非常に緩やかである。



高速拡散条件での実験

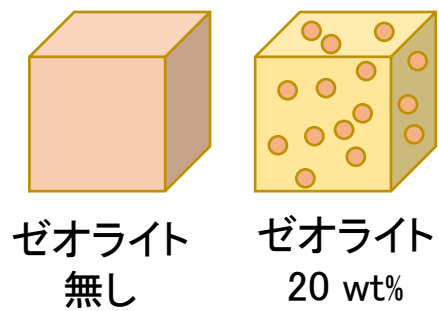
液面



ジオポリマー  
キューブ  
1 cm<sup>3</sup>

浸出試験の様子

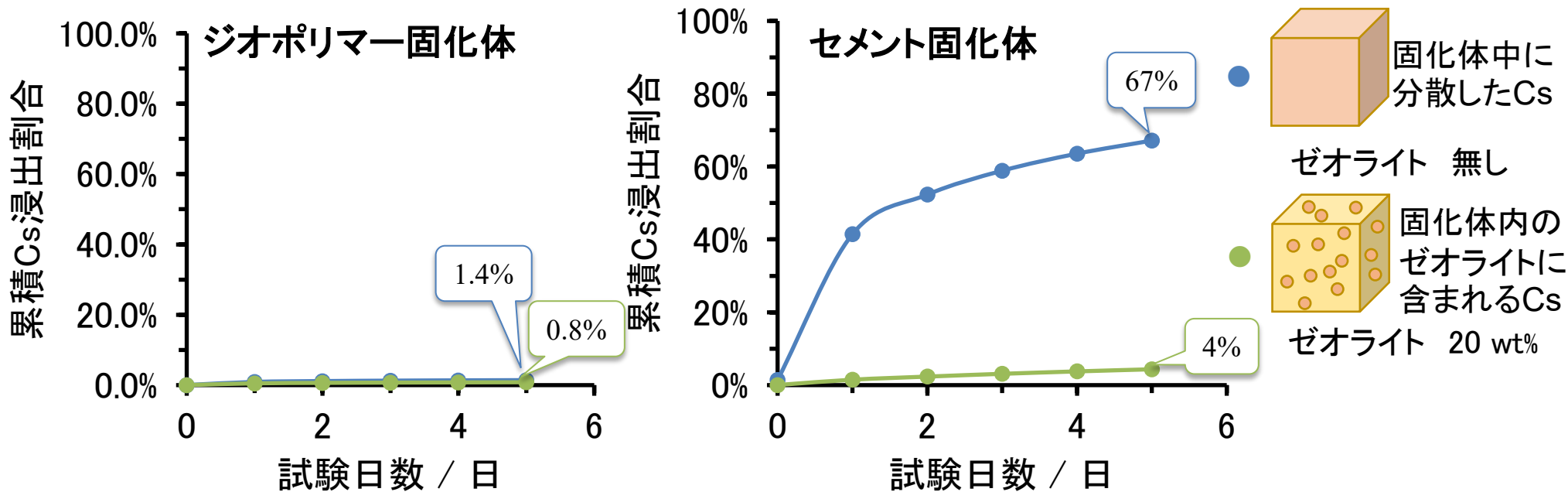
- 固化体が液体に接触した場合に、どの程度の期間にどれほどの量の放射性核種が浸出してくるのか？
- これまで、固化剤としてセメントなどが検討されてきた。



模擬固化体のイメージ

加速した条件下で試験を行うことで、固化体と二次廃棄物のそれぞれが放射性物質（核種）を保持（固定化）する能力を観察することができる。

セメント固化体と比較して、ジオポリマー固化体からのCsの浸出の様子（Cs保持特性）を観測した。

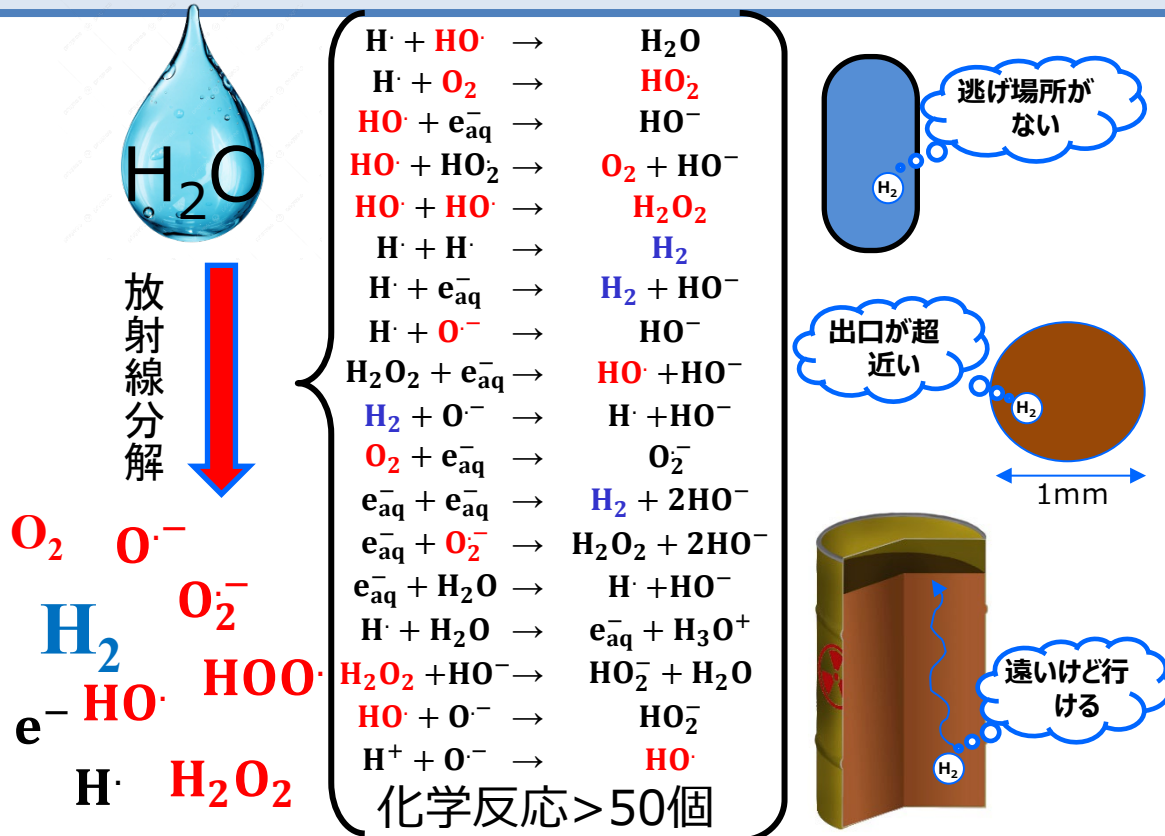


累積浸出割合：試験片に含まれるCsの初期量に対する浸出したCsの累積量の割合

「固化体のCs保持能力」＝「ジオポリマー/セメントの保持能力」＋「二次廃棄物の保持能力」  
 ジオポリマー固化体では、ジオポリマーだけでCsを保持できて、二次廃棄物（ゼオライト）はセメント固化体よりも高いCs保持能力を与える。  
 一方、セメント固化体では、セメントだけでCsを保持できず、Cs浸出は非常に速い。二次廃棄物はCs浸出を抑制するが、この性質は固化体中の廃棄物の安定性や状態によって制限される。



廃棄物からの放射線と固化体中の水分によって水素が発生して、水素が燃焼・爆発するリスクが考えられる。本研究では、**製造条件を変えたジオポリマー固化体のガンマ線照射試験**を行い、実験的に固化体から放出される水素量を測定して、これをもとにモデルを構築して、**実スケールでの水素放出量を推定**する。



例えば、平常時の原子炉の压力容器内では、水中で発生した水素が水中に留まるという仮定で、反応を計算できる。

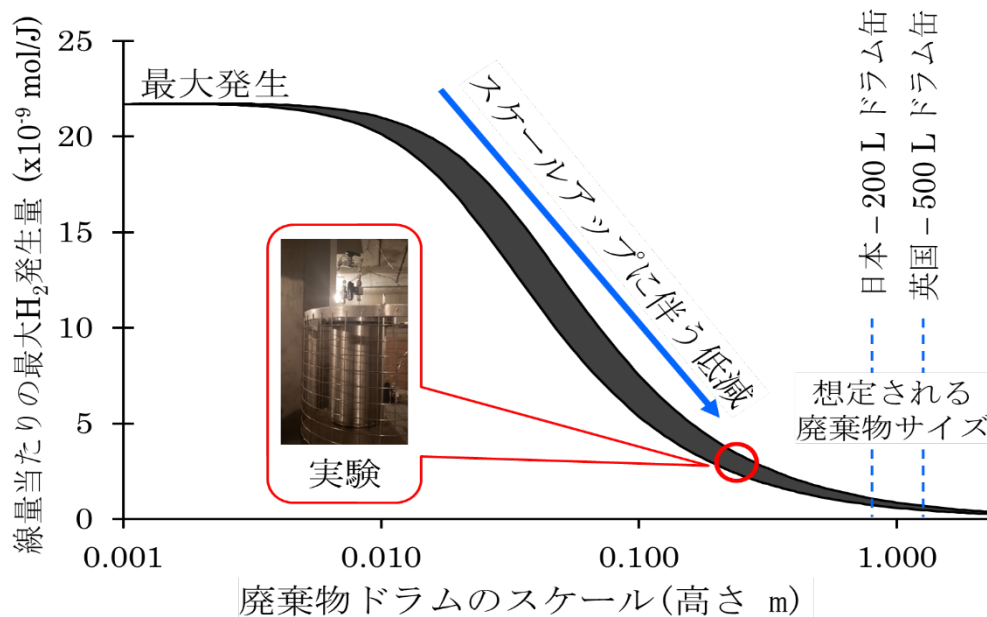
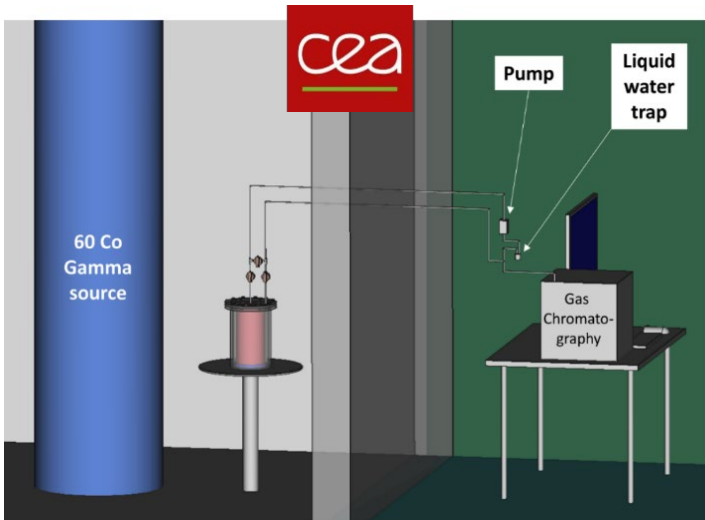
例えば、ゼオライトの容器内では、発生した水素は素早く気相に放出されるという仮定で、反応を計算できる。

一方、セメントやジオポリマー固化体では、水素は気相に放出される速度が遅く、水-固体間の分布が時間とともに変化するので、計算が非常に難しい。

現在では、すべての水素が固化体から速やかに放出されることを考慮して計算している。これによって最悪のシナリオを計算できるが、これでは固化体中の二次廃棄物の割合が制限され、最終的な廃棄物の体積が大幅に増えてしまう。このため、合理的な水素発生の評価が必要となる。

放射線による水の分解（水の放射線分解）による水素発生を測定するために、Co-60ガンマ線によるジオポリマー固化体の（外部）照射試験を行った。

試料が大きいと実験的に難しく、試料が小さいと水素が逃げやすくなるため、中規模の試料で試験した。



フランスでCEAとの共同研究  
で中規模の試料を照射。  
水素発生量は照射中に測定。

実験データを分析して、  
実験をモデル化。

モデルをもとに、実スケールの固  
化体の水素放出の推定値を計算。

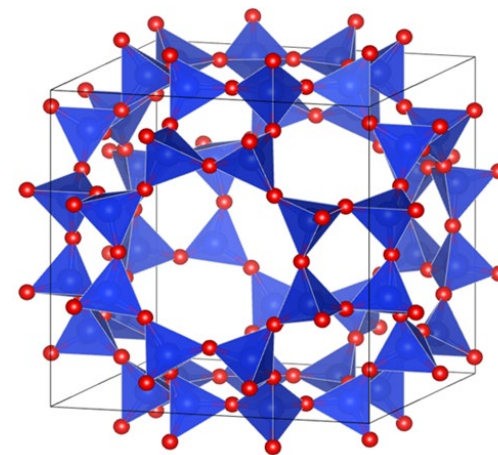
低拡散性のジオポリマーを適用すると、実規模での水素ガス放出量が最悪のシナリオの100分の1になると予測できた。

現在、より低い線量率の照射でこれらの結果を検証しており、セメント固化体でも同じ結果が得られるかどうかを調査している。

## ジオポリマーの長期安定性に関する研究

ジオポリマーはガラスのように非晶質であるが、長時間経過すると、その中にゼオライトなどの結晶が生じる。

第一原理法則などをもとにした計算によって、この変化を引き起こすメカニズムの解明に取り組んでいる。

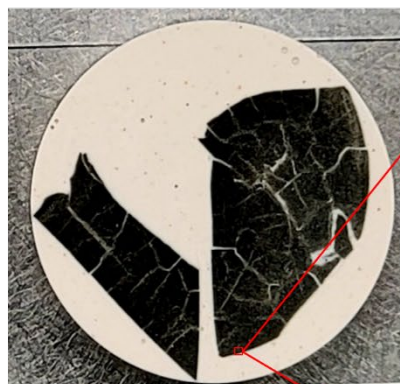


ジオポリマー中に生じるゼオライト(例)

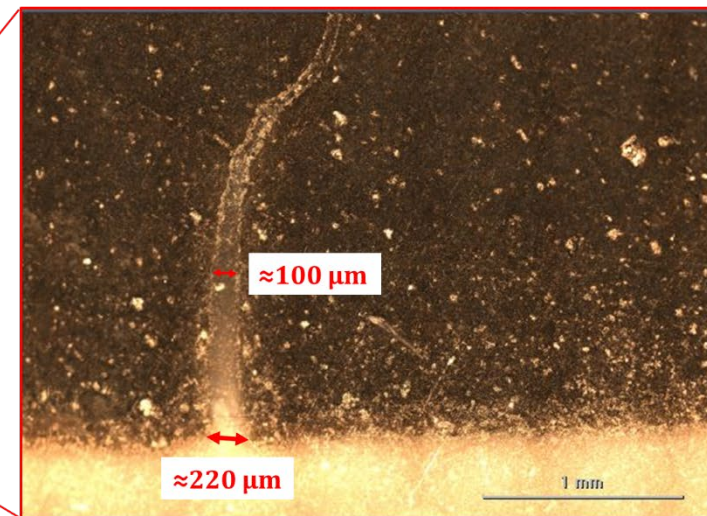
## セメントとジオポリマーの相互作用

損傷したコンクリートの構造を修復するのに、ジオポリマーが非常に効果的であることがわかりました。

実験では、ジオポリマーがコンクリートの微細なひび割れ(0.1 mm未満)に浸透し、修復する様子が確認されました。



セメントのひび割れ部分のジオポリマー複合体の断面写真



ご清聴ありがとうございました