

第8回 知のネットワーク会合 @福島県文化センター
技術実証事業成果発表会(第5回)

除去土壌等の減容等技術実証事業の成果

令和4年度実証テーマ名

除去土壌と溶融飛灰と脱水ケーキ等をジオポリマーの
固型化材料として利用する技術

2023年8月31日

大成建設株式会社 原子力本部 谷口雅弘



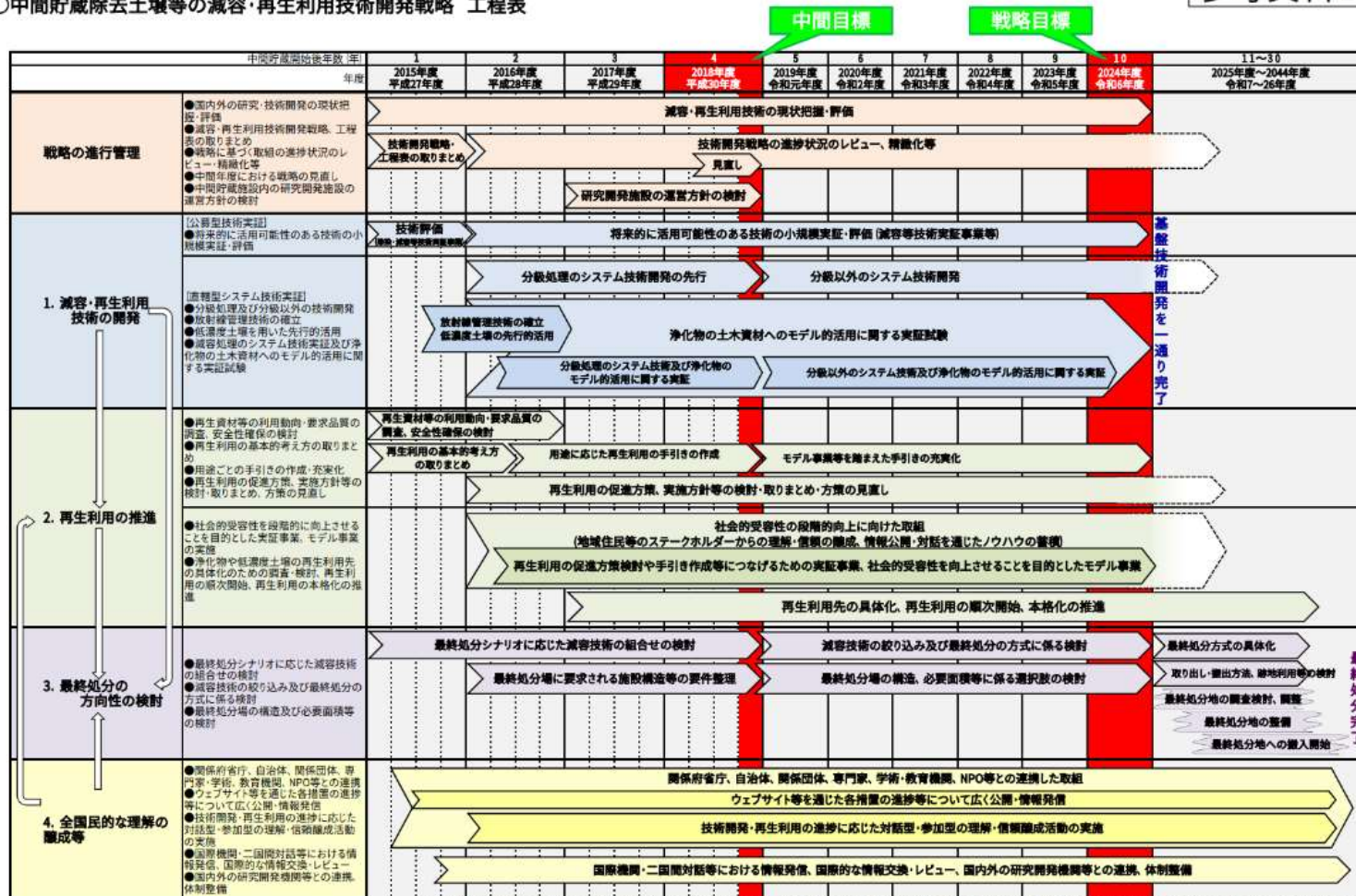
目次

1. 背景
2. ジオポリマー固型化手法の目的・概要
3. 実施体制
4. 主要試験場所
5. ジオポリマー固型化試験の要点
6. 試験内容
7. まとめ
8. 今後の課題と展望

1. 背景：技術開発の工程表(環境省)2024年度が重要起点

参考資料1

○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



※中間貯蔵開始後11年目から30年目にかけては、最終処分方向性を明確化した上で、最終処分地に係る調査検討・調整、最終処分地の整備、最終処分地への搬入等を順次実施していく。

出典：「参考資料1 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」(中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略検討会(第14回)より)

1. 背景:最終処分技術の候補として固型化技法の比較

安定化処理技術の現状把握・評価

技術区分	方法等	対象物	充填率※ ¹ (w%)	コスト※ ² 【万円/t】	メリット	デメリット
セメント固化	混練 ¹⁾	焼却灰	30~54	—	実用技術、実績あり、 低廉安価	・所定の強度を得るためのセメント配合により処分重量が増加
		廃吸着材 (ゼオライト)	40	—		
	超流体(粉体加振)工法による固化ブロック化	焼却灰	—	1.3~2.2		
	脱水固化砕石化	飛灰+粘性土	70	1.4		
ジオポリマー固化	アルカリ活性剤との縮重合反応による固化(貯蔵容器製作)	焼却灰	—	—	セメントより強度発現が早い、耐火性、耐浸出性に優れる	・アルカリ液配合により処分重量が増加
プラスチック固化	有機樹脂による硬化(セインテラスレジ)	飛灰、吸着材(ゼオライト)	54~69	12.7~15.5	耐浸出性がある	・有機系樹脂は埋立処分に適さない
ガラス固化	加熱溶融 ²⁾	飛灰	70	—	・自らのガラス成分によりガラス化するため減容効果が大きい ・耐浸出性、長期安定性に優れる	・処理コストが高いことが予想される
		廃吸着材(ゼオライト、フェロシアン化鉄、ケイチタン酸塩)	70~80	—		

出典:「資料3-1 減容・再生利用技術実証の現状と今後の予定-現状技術の把握・評価-(中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略検討会(第11回)より)」

1. 背景：大成建設他による過去の取り組み

全体の取り組み

テーマ	試料	実施状況	主な結果	主な参加機関
平成29年度 ジオポリマー法による汚染材のコンクリート系遮蔽材等への有効活用法の実証	仮設焼却炉（主灰、飛灰）		圧縮強度：18N/mm ² 超 溶出率 ^{*1} ：約1～2%	大成建設 名古屋工業大学 JAEA 等
令和2年度 微粉碎土壌をジオポリマーの固化材料として利用する技術	除去土壌（放射性）		圧縮強度：1,470kPa超 浸出率 ^{*2} ：約10% 粒径：1,10μm	大成建設 北海道大学 AIST 電力中央研究所 中部電力 等
令和3年度 除去土壌と溶融飛灰をジオポリマーの固型化材料として利用する技術	双葉町仮設灰処理第二施設の溶融飛灰		圧縮強度：1,470kPa超 浸出率 ^{*2} ：約20%	大成建設 北海道大学 AIST 国立環境研究所 電力中央研究所 中部電力 富士電機 等
令和4年度 除去土壌と脱水ケーキ等をジオポリマーの固型化材料として利用する技術	双葉町仮設灰処理第一施設の溶融飛灰 双葉町仮設灰処理第二施設の溶融飛灰		圧縮強度：1,470kPa超 浸出率 ^{*2} ：約10～20%	大成建設 北海道大学 国立環境研究所 電力中央研究所 富士電機 等

*1 JIS K 0058-1に準じて実施

*2 ANSI/ANS-16.1に準じて実施

→ 以降、令和4年度の実績を中心に報告する

1. 背景: ジオポリマーについて

→ バインダーとアルカリ刺激剤の縮重合反応

ジオポリマー固型化

縮重合反応

バインダー

アルカリ刺激剤

溶融飛灰



水ガラス、水



メタカオリン



水酸化カリウム

処分対象物

溶融飛灰



除去土壌



セメント固化

水和反応

セメント

水

骨材

1. 背景: ジオポリマー法の導入・利用について

- 減容(粉体 → スラリー → 固型化体)
- 処分対象物の元素を結合材として再利用
- 長期安定性(古代ローマより使用)
- Cs捕獲性(ポリマー結晶構造内)
- 比較的容易な製作作業



熔融飛灰

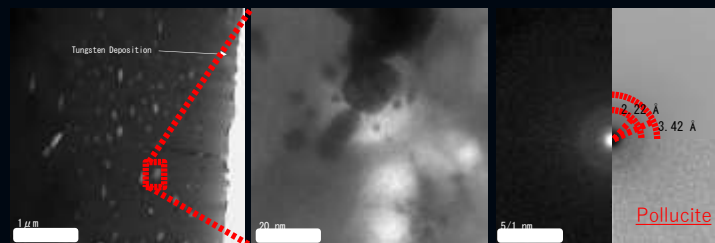


ローマン・コンクリート

(出典: 日本経済新聞電子版. 2023. <https://onl.tw/iEgBy11>. 参照: 2023-8-8)

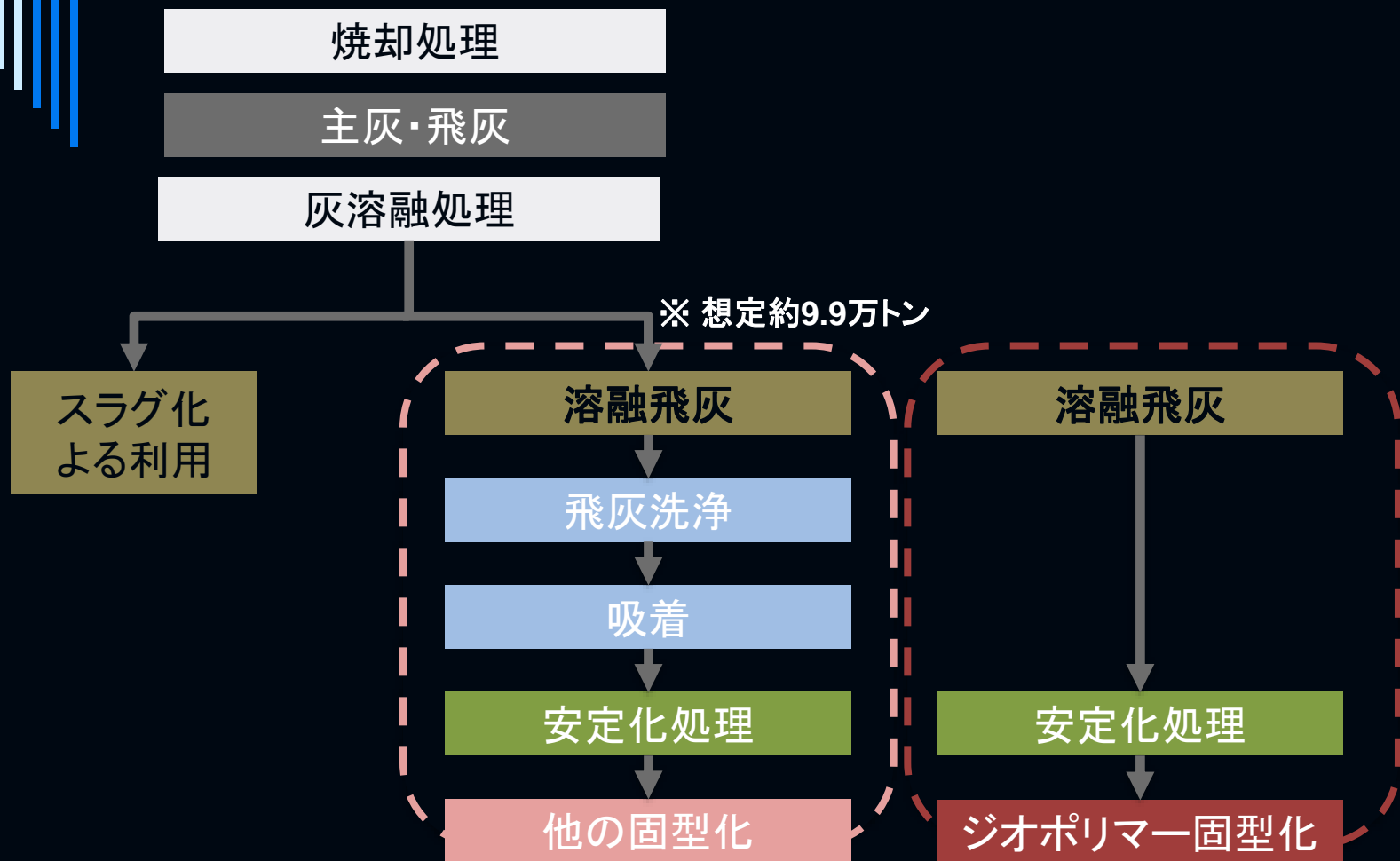


混練状況



Csの結晶構造への捕獲

1. 背景: ジオポリマー固型化処理の導入案のフロー



2. ジオポリマー固型化手法開発の目的・概要

目的

- ・最終処分の計画・構想に資する実証
- ・対象は特定廃棄物(溶融飛灰で高濃度)
- ・最終処分に必要な要件

安定化体 → 洗浄
 ↳ 固型化

↳ セメント、ガラス、ジオポリマー



放射性Csの長期保持性のある再生利用固型化技術の確立

概要

本実証では、溶融飛灰の多様性に対応するため、生成プロセスの異なる3種の試料を用い、所定の配合計画にしたがって固型化処理した試験体による圧縮強度調査、浸出率調査を行い、有効な配合域を選定した。

3. 実施体制

ジオポリマー固型化実証事業の共同実施の8機関・企業

①ジオポリマーの実施経験：北大、富士電機、大成建設、電中研

→それぞれの実施経験を反映

②最終処分の施策、動向：北大 佐藤教授
国環研 遠藤室長

→試験進捗に対するの評価、コメント

③その他技術支援：中部電力、ダイセキ環境ソリューション、矢内総建



令和4年度関連機関

4. 主要試験場所(大熊町・技術実証F、北海道大学、他)



上空から見た技術実証フィールド

出典: 知のネットワークニュースレター Vol.2 Fall 2022 (jesconet.co.jpより)



技術実証フィールドでの試験状況



北海道大学での試験状況



5. ジオポリマー固型化試験の要点

○ジオポリマー固型化処理の適合条件考察

対象物物性(元素、水分、粒度、等)

配合(バインダー(対象物+メタカオリン)、アルカリ活性材)

温度管理

混合攪拌手順

その他の因子の調査: バッチ処理量、他

○実施中の確認事項

攪拌時のスラリー粘性度の状況

可使用時間の確認 (急結反応は強度は出ても充填不可)



6. 試験内容

- 6-1. 配合計画(過去の実績ベース、及びニーズ(高含有化)に対応)
- 6-2. 溶融飛灰サンプルの取得
 - 双葉町仮設灰処理第一施設
 - 双葉町仮設灰処理第二施設
 - 県内灰溶融処理施設
- 6-3. 配合検討試験 →小規模試験体
- 6-4. 圧縮強度試験 →試験体(Φ5cm・L10cm)作成
- 6-5. 浸出試験(米国原子力学会試験法に準拠) →安全評価
- 6-6. 固型化体作製試験(20L)

6-1. 配合計画(バインダー × アルカリ活性剤の条件設定)

配合計画表(1種類の溶融飛灰とメタカオリンとの配合)

溶融飛灰100% メタカオリン0%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	40.0	50.0	60.0
	1 : 1 : 20	40.0	50.0	60.0
	1 : 1 : 25	40.0	50.0	60.0
	1 : 1 : 30	40.0	50.0	60.0
	1 : 1 : 35	40.0	50.0	60.0
溶融飛灰90% メタカオリン10%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	36.0	45.0	54.0
	1 : 1 : 20	36.0	45.0	54.0
	1 : 1 : 25	36.0	45.0	54.0
	1 : 1 : 30	36.0	45.0	54.0
	1 : 1 : 35	36.0	45.0	54.0
溶融飛灰80% メタカオリン20%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	32.0	40.0	48.0
	1 : 1 : 20	32.0	40.0	48.0
	1 : 1 : 25	32.0	40.0	48.0
	1 : 1 : 30	32.0	40.0	48.0
	1 : 1 : 35	32.0	40.0	48.0

※ セルの数値
= 溶融飛灰のみの分量

6-2. 溶融飛灰サンプルの取得



双葉町仮設灰処理第一施設と双葉町仮設灰処理第二施設

試料3種一覧

試料名称	放射性区分	写真	取得先
溶融飛灰1	非放射性		福島県内
溶融飛灰2	放射性		福島県双葉町 仮設灰処理第一施設
溶融飛灰3	放射性		福島県双葉町 仮設灰処理第二施設



溶融飛灰の試験体確認
※ 内袋は未開封



溶融飛灰の鋼製容器搬送状況(処理施設内)



特定廃棄物場外搬送作業

6-3. 配合検討試験

- ジオポリマー固型化体を作製(直径1.3cm、高さ1.5cm)
- 作製後は目視や手の感触により強度の確認を実施

ジオポリマー固型化体



【攪拌】

【充填】

【養生】

【脱型】

【強度確認】

ジオポリマー
固型化用溶液
+
メタカオリン
or
脱水ケーキ(※)
+
溶融飛灰

※分級処理後の細粒分に
処理を加えたもの

			
堅固	自立はしたが 圧すると崩壊	水が多く 固型化せず	攪拌不可

不適

6-3. 配合検討試験：結果

溶融飛灰²とメタカオリンとの
配合検討試験結果

溶融飛灰100% メタカオリン0%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	1.0	0.6	0.4
	1 : 1 : 20	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 25	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 30	1.2	0.8	0.5
	1 : 1 : 35	1.2	0.8	0.5
溶融飛灰90% メタカオリン10%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	1.0	0.6	0.4
	1 : 1 : 20	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 25	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 30	1.2	0.8	0.5
	1 : 1 : 35	1.2	0.8	0.5
溶融飛灰80% メタカオリン20%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	1.0	0.6	0.4
	1 : 1 : 20	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 25	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 30	1.2	0.8	0.5
	1 : 1 : 35	1.2	0.8	0.5

溶融飛灰³とメタカオリンとの
配合検討試験結果

溶融飛灰100% メタカオリン0%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	1.0	0.6	0.4
	1 : 1 : 20	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 25	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 30	1.2	0.8	0.5
	1 : 1 : 35	1.2	0.8	0.5
溶融飛灰90% メタカオリン10%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	1.0	0.6	0.4
	1 : 1 : 20	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 25	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 30	1.2	0.8	0.5
	1 : 1 : 35	1.2	0.8	0.5
溶融飛灰80% メタカオリン20%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	1.0	0.6	0.4
	1 : 1 : 20	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 25	1.1	0.7	0.5
	1 : 1 : 30	1.2	0.8	0.5
	1 : 1 : 35	1.2	0.8	0.5

■ : 堅固
■ : 不適

※ セルの数値=水量÷バインダー量

6-4. 圧縮強度試験

- ジオポリマー固型化体を作製(直径5cm、高さ10cm)
- 作製後は一軸圧縮試験を実施

ジオポリマー固型化体



【攪拌】

ジオポリマー
固型化用溶液

+

メタカオリン

or

脱水ケーキ(※1)

+

溶融飛灰

※1 分級処理後の細粒分に
処理を加えたもの



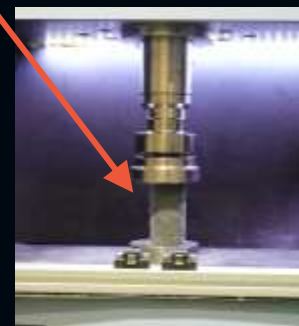
【充填】



【養生】



【脱型】



【強度確認】

1,470kPa以上

1,470kPa未満

急結
or
攪拌不可

目標一軸圧縮強度: 1,470kPa以上(※2)

※2 廃棄物確認に関する運用要領(原子力規制庁, H26年3月)に基づく

6-4. 圧縮強度試験：結果

一軸圧縮強度試験結果(溶融飛灰3とメタカオリンとの配合)

溶融飛灰100% メタカオリン0%		バインダー量 [wt%]			溶融飛灰80% メタカオリン20%		バインダー量 [wt%]		
		40.0	50.0	60.0			40.0	50.0	60.0
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	40.0	50.0	60.0	ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	32.0	40.0	48.0
		—	—	—			急結	急結	—
	1 : 1 : 20	40.0	50.0	60.0		1 : 1 : 20	32.0	40.0	48.0
		—	—	—			—	急結	急結
	1 : 1 : 25	40.0	50.0	60.0		1 : 1 : 25	32.0	40.0	48.0
		—	723kPa	急結			—	—	—
1 : 1 : 30	40.0	50.0	60.0	1 : 1 : 30	32.0	40.0	48.0		
	—	—	541kPa		—	—	—	5,169kPa	
1 : 1 : 35	40.0	50.0	60.0	1 : 1 : 35	32.0	40.0	48.0		
	—	—	—		—	—	4,144kPa		
溶融飛灰90% メタカオリン10%		バインダー量 [wt%]							
		40.0	50.0	60.0					
ジオポリマー固型化用溶液配合 SiO₂ : K₂O : H₂O [mol比]	1 : 1 : 15	36.0	45.0	54.0					
		急結	—	—					
	1 : 1 : 20	36.0	45.0	54.0					
		—	急結	—					
	1 : 1 : 25	36.0	45.0	54.0					
		—	1,499kPa	急結					
1 : 1 : 30	36.0	45.0	54.0						
	—	1,486kPa	4,299kPa						
1 : 1 : 35	36.0	45.0	54.0						
	—	—	4,072kPa						

: 1,470kPa以上
 : 1,470kPa未満
 : 急結 or 攪拌不可

※ セルの数値＝一軸圧縮強度値

6-5. 浸出試験

- ジオポリマー固型化体を作製(直径1.3cm、高さ1.5cm)
- 作製後は浸出試験を実施

ジオポリマー固型化体



【攪拌】

ジオポリマー
固型化用溶液

+

メタカオリン

or

脱水ケーキ(※2)

+

土壌(※3:一部)

+

溶融飛灰



【充填】



【養生】



【脱型】



【浸出試験(※1)】

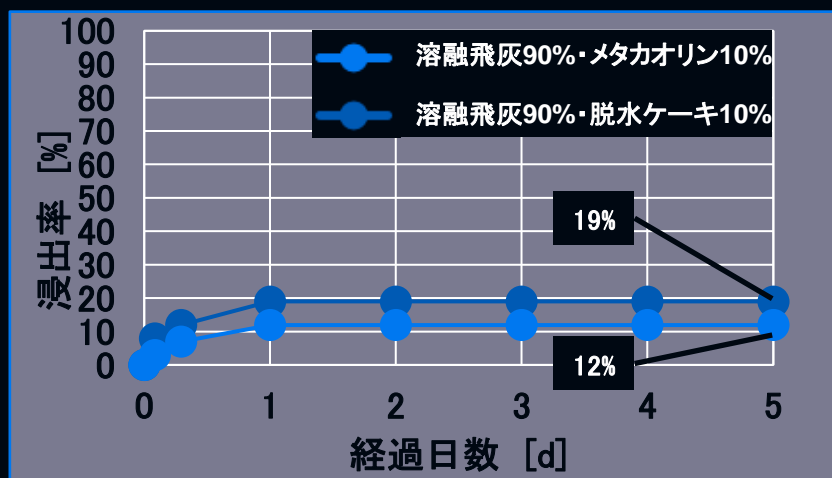
水

※1 米国原子力学会ANSI/ANS-16.1に準拠して実施
(5日間・7段階まで実施)

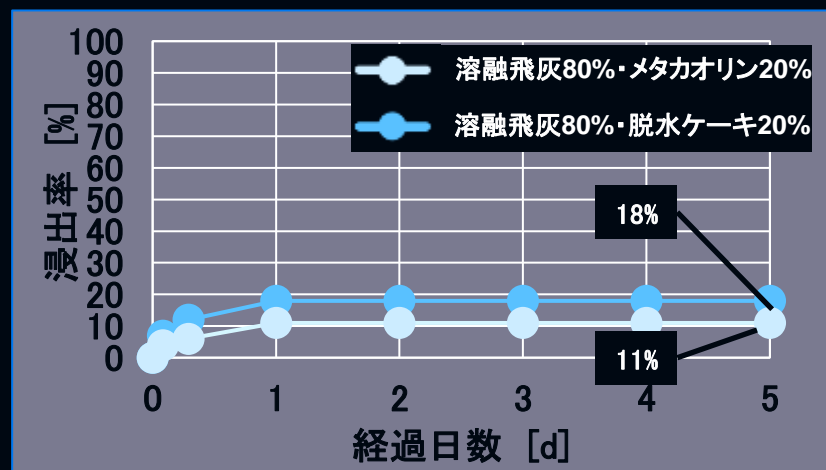
※2 分級処理後の細粒分に処理を加えたもの

※3 分級処理後の細粒分

6-5. 浸出試験:結果・安全評価



溶融飛灰90%での浸出率



溶融飛灰80%での浸出率

溶融飛灰90%, メタカオリン10%: 12%

溶融飛灰90%, 脱水ケーキ10%: 19%

溶融飛灰80%, メタカオリン20%: 11%

溶融飛灰80%, 脱水ケーキ20%: 18%

→セメント固型化よりも高い浸出抑制効果が期待できる

→被ばくシナリオに基づき試算した結果、安全評価の目標値 $10 \mu\text{Sv/y}$ (※)未満となった

(※)閉鎖後長期の安全性の評価(原子力発電環境整備機構,R3年6月)に基づく

6-6. 固型化体作成試験(20L)



攪拌機

成功例



確実に攪拌が
実施されている

失敗例



流動性の低下
→攪拌難航状態



脱型後の20L試験体

7. まとめ

- 溶融飛灰の物性に応じて、メタカオリン添加や水との混合量を調整することにより、1,470kPa以上の堅固な固化体を作成できた
- 20Lサイズの作製や安全評価を通して、溶融飛灰を用いたジオポリマー固型化体が最終処分に適用できる可能性を示せた



脱型後のジオポリマー固化体の一例



8. 今後の課題と展望

課題

- 配合設計 …… 支配パラメータの重要度の再確認
- 混合攪拌操作 …… 粉体が液体をはじいて生成のダマ防止のため、分散剤の導入 → コスト増、ジオポリマー反応への影響
…… 分散剤効果の確認(現在コンクリートも薬剤制御)
- 浸出挙動 …… 放射性Csが浸出挙動するメカニズムの調査
(抑制に関するメカニズムは北大で実施)
- 適正配合調整 …… XRF等による処分対象物の元素含有量の分析
…… メタカオリン(Al,Si含有体)による調整混合
- 長期安定性検討 …… 阻害物質の有無調査
…… 経年劣化因子調査

展望

本実証事業の成果や上記課題の解決により、ジオポリマーによる放射性Csの長期保持を可能とした再生利用固型化技術が、最終処分の安定化処理技術の1つとして確立されることが期待される。



謝辞

中間貯蔵・環境安全事業(株)の皆様には、本実証事業を実施するにあたり、技術実証フィールドの提供をはじめとする多大なるご支援に感謝いたします。

