

高い流動性および陰イオン核種保持性を有する  
アルカリ刺激材料の探索と  
様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化  
(委託研究)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Safe, Efficient Cementation of Challenging Radioactive Wastes  
Using Alkali Activated Materials  
with High-flowability and High-anion Retention Capacity  
(Contract Research)

-FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource  
Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点  
廃炉環境国際共同研究センター  
北海道大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science  
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Hokkaido University

January 2021

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Institutional Repository Section,  
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,  
Japan Atomic Energy Agency.  
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2021

高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と  
様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化  
(委託研究)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点  
廃炉環境国際共同研究センター

北海道大学

(2020年11月10日受理)

日本原子力研究開発機構 (JAEA) 廃炉環境国際共同研究センター (CLADS) では、令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 (以下、「本事業」という) を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、「高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化」の令和元年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究の目的は、溜まり水処理過程で発生した放射性廃棄物の中でも鉄沈殿物を検討対象とし、安全な保管と処分を可能とする高い陰イオン核種保持性や流動性のアルカリ刺激材料とそのレシピの探索し、実プラントとして成立する固化体製作装置の概念を提案することである。本年度の検討の結果、K系アルカリ刺激材料は流動性が高く硬化も早く、銀イオンを混入させることでヨウ化物イオン保持性の高い固化体を作製できる可能性を有していることが明らかとなった。

---

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、北海道大学が実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Safe, Efficient Cementation of Challenging Radioactive Wastes Using Alkali Activated  
Materials with High-flowability and High-anion Retention Capacity  
(Contract Research)

— FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science  
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Japan Atomic Energy Agency  
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

Hokkaido University

(Received November 10, 2020)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to “the Project”) in FY2019.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields. The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2019, this report summarizes the research results of the “Safe, efficient cementation of challenging radioactive wastes using alkali activated materials with high-flowability and high-anion retention capacity”.

The purpose of this study is to find safe, efficient cementation of challenging radioactive wastes using alkali activated materials with high-flowability and high-anion retention capacity, and to propose the concept of a manufacturing apparatus that is established as an actual plant. As a result of study in this year, it was revealed that the K-based alkali activated material has high-flowability and quick curing, and that high-iodine retention capacity is achieved by incorporating silver ions during manufacturing of solidified waste.

Keywords: Alkali Activated Material, Anion Nuclide, Flowability, Geopolymer, Solidified Waste

---

This work was performed by Hokkaido University under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 .....	1
2. 平成 30 年度 採択課題（継続分） .....	2
3. 令和元年度 採択課題 .....	5
付録 成果報告書 .....	9

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project.....	1
2. Accepted Proposal in FY2018 ~Continued~ .....	2
3. Accepted Proposal in FY2019 .....	5
Appendix Result Report .....	9

This is a blank page.

## 1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

## 2. 平成 30 年度 採択課題（継続分）

平成 30 年度採択課題（継続分）については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題  
(若手研究 6 課題、一般研究 5 課題)
- 課題解決型廃炉研究プログラム 6 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題  
(日英共同研究)

### 平成 30 年度 採択課題一覧

#### 共通基盤型原子力研究プログラム

##### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業 高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邊 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

### 3. 令和元年度 採択課題

令和元年度は、4つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。  
公募の概要は以下のとおりである。

- ・ 公募期間：平成 31 年 4 月 24 日～令和元年 6 月 7 日  
令和元年 5 月 30 日～令和元年 7 月 18 日 ※日露共同研究のみ
- ・ 課題数：19 課題
  - 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題  
(若手研究 2 課題、一般研究 5 課題)
  - 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
  - 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題  
(日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題)
  - 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

#### 令和元年度 採択課題一覧

##### 共通基盤型原子力研究プログラム

###### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一郎	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁	産業技術総合 研究所

## 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペDESTAL燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立 GE ニュークリア・ エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾大学

## 研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

本報告書は、採択課題のうち、国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）「高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化」の令和元年度の研究成果について記したものである。

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録  
成果報告書

This is a blank page.

令和元年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

高い流動性および陰イオン核種保持性を  
有するアルカリ刺激材料の探索と  
様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化  
(契約番号 31I135)

成果報告書

令和2年3月

国立大学法人北海道大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人北海道大学が実施した「高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化」の令和元年度の研究成果を取りまとめたものです。

## 目次

概略	v
1. はじめに	1
2. 業務計画	3
2.1. 全体計画	3
2.2. 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法	6
3. 令和元年度の実施内容及び成果	7
3.1. 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計	7
3.1.1. アルカリ刺激材料のレシピの作成と吸着実験	7
3.1.2. 陰イオン保持性を高めるように設計したアルカリ刺激材料の浸出実験	12
3.2. 試験体の物性試験と評価（連携先：JAEA）	22
3.2.1. 物性試験の目的と方法	22
3.2.2. K系の試験結果	25
3.2.3. 他の固化材料との比較	35
3.2.4. まとめ	40
3.3. パイロットサイズ試験体の作製と評価（再委託先：アドバンエンジ）	41
3.3.1. 原料メタカオリンの影響	42
3.3.2. 攪拌羽の検討	43
3.3.3. パイロットサイズ試験体の試作	46
3.3.4. 乾燥の影響評価	49
3.4. 研究推進	51
4. 結言	53

表一覧

表 3. 2-1 アルカリ活性剤の調製に用いる試薬の重量比 [g]	22
表 3. 2-2 AAM 作製時のメタカオリンとアルカリ活性剤の重量比 [g]	22
表 3. 2-3 XRF により測定されたメタカオリンの組成	23
表 3. 2-4 K 系 AAM ペーストの粘度変化の傾き	26
表 3. 2-5 ソブエクレーおよび Metastar501 の粒径	27
表 3. 2-6 K 系 AAM ペーストの粘度立ち上がり後の傾き	29
表 3. 2-7 K 系 AAM ペーストの凝結時間	30
表 3. 2-8 線量計により測定した積算線量	32
表 3. 2-9 照射前（上）と照射後（下）の AAM 固化体の外観	33
表 3. 2-10 $\gamma$ 線照射による水素ガス発生量	34
表 3. 2-11 AAM の材料配合比（重量比）	35
表 3. 2-12 アルカリ活性剤のモル比	35
表 3. 2-13 固化体の水粉体比	35
表 3. 2-14 $\gamma$ 線照射による K 系 AAM と他の固化材料との水素ガス発生量の比較	38
表 3. 3-1 混錬試作装置主仕様	41
表 3. 3-2 攪拌羽の比較に用いたジオポリマーペーストの配合	44
表 3. 3-3 パイロットサイズ試験体の試作配合	46
表 3. 3-4 パイロットサイズ試験体作製条件と圧縮強度	47
表 3. 3-5 乾燥試験用試料作製条件	50

図一覧

図 2. 1-1 本業務の全体計画	3
図 3. 1-1 フロー試験	7
図 3. 1-2 (A) Metastar501 および (B) ソブエクレーから作製したジオポリマー試料の フロー試験の結果	8
図 3. 1-3 (A) Metastar501 および (B) ソブエクレーから作製したジオポリマー試料の ゼータ電位と pH (イオン強度 I = 10 mM および 100 mM)	9
図 3. 1-4 ソブエクレーから作製したジオポリマーのゼータ電位と (A) KI, (B) KIO <sub>3</sub> , (C) K <sub>2</sub> SeO <sub>4</sub> , (D) K <sub>2</sub> SeO <sub>3</sub> の濃度 (イオン強度 I = 10 mM および 100 mM)	10
図 3. 1-5 Metastar501 から作製したジオポリマーのゼータ電位と (A) KI, (B) KIO <sub>3</sub> , (C) K <sub>2</sub> SeO <sub>4</sub> , (D) K <sub>2</sub> SeO <sub>3</sub> の濃度 (イオン強度 I = 10 mM および 100 mM)	11
図 3. 1-6 合成した LDH の XRD パターン	13
図 3. 1-7 作製した模擬固化体のサイズとその浸漬状況	14
図 3. 1-8 ジオポリマー固化体 (GP-only)、MgO 添加系固化体 (MgO-GP)、LDH 添加系固化体 (LDH-GP)、硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) からの a) I <sup>-</sup> および b) IO <sub>3</sub> <sup>-</sup> の積算浸出割合 の経時変化	15
図 3. 1-9 I <sup>-</sup> を混合したジオポリマー固化体に対し、イオン交換水を用いて浸出試験をした 前後の供試体の XRD 分析結果	16

図 3.1-10	浸出試験前の硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) 研磨片	17
図 3.1-11	AgI の TEM 観察	18
図 3.1-12	ヨウ化銀 (Iodyrite) の溶解度曲線	19
図 3.1-13	合成試験により得られた LDH の TEM 像 (a) およびジオポリマーに混和した後の LDH の透過電子像 (b)	20
図 3.1-14	Mg-Al-SiO <sub>4</sub> 型 LDH および M-S-H の溶解度曲線	21
図 3.2-1	K 系 AAM ペーストの粘度変化	25
図 3.2-2	混錬後の初期における K 系 AAM ペーストの粘度変化の比較	26
図 3.2-3	ソブエクレールおよび Metastar501 の粒径頻度分布	28
図 3.2-4	ソブエクレールおよび Metastar501 の粒径累積分布	28
図 3.2-5	K 系 AAM ペーストの粘度立ち上がり後の比較	29
図 3.2-6	K 系 AAM ペーストの始発時間および終結時間の比較	30
図 3.2-7	K 系 AAM の圧縮強度	31
図 3.2-8	K 系および Na 系 AAM ペーストの粘度変化	36
図 3.2-9	K 系および Na 系 AAM とアルカリ活性剤の粘度の比較	36
図 3.2-10	K 系 AAM と他の固化材料との凝結時間の比較	37
図 3.2-11	K 系 AAM と他の固化材料との圧縮強度の比較	37
図 3.2-12	K 系 AAM と他の固化材料との G 値の比較	39
図 3.3-1	混錬試作装置外観	41
図 3.3-2	Metastar501 の混錬の様子 (左) 3/4 投入後、(右) 全量投入後	42
図 3.3-3	ソブエクレールの混錬の様子 (左) 3/4 投入後、(右) 全量投入後	42
図 3.3-4	比較した混錬羽根 (上段左: アンカー羽根 1、上段右: アンカー羽根 2、下段左: アンカー羽根 3、下段右: リボン羽根)	43
図 3.3-5	混錬性の比較① (左列: アンカー羽根 1、右列: アンカー羽根 2)	44
図 3.3-6	混錬性の比較② (左列: アンカー羽根 3、右列: リボン羽根)	44
図 3.3-7	中心付近の滞留	45
図 3.3-8	原料粉付着の顕著な位置	45
図 3.3-9	養生中のパイロットサイズ試験体中心温度	47
図 3.3-10	養生後の試験体 No. 1 (左: 外観、右: コア抜き後の試料)	47
図 3.3-11	養生後の試験体 No. 2 (左: 外観、右: コア抜き後の試料)	48
図 3.3-12	養生後の試験体 No. 3 (左: 外観、右: コア抜き後の試料)	48
図 3.3-13	養生後の試験体 No. 4 (左: 外観、右: コア抜き後の試料)	48
図 3.3-14	モールドサイズ試験体 No. 4	48
図 3.3-15	乾燥用実験装置外観	49
図 3.3-16	乾燥予備試験結果	50
図 3.4-1	令和 2 年 1 月 21 日に開催した北大-JAEA-アドバンエンジ合同会議の様子	51
図 3.4-2	令和 2 年 2 月 4-5 日に開催した若手担当者講習会の様子	52

略語一覧

- AAM: Alkali Activated Materials (アルカリ刺激材料)
- CLADS: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science  
(廃炉国際共同研究センター)
- EDS: Energy Dispersive X ray Spectrometry (エネルギー分散型 X 線分析)
- 1F: Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (福島第一原子力発電所)
- GP: Geopolymer (ジオポリマー)
- ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry  
(誘導結合プラズマ質量分析法)
- JAEA: Japan Atomic Energy Agency (日本原子力研究開発機構)
- LDH: Layered Double Hydroxides (層状複水酸化物)
- M-S-H: Magnesium Silicate Hydrates (マグネシウムシリケート水和物)
- OPC: Ordinary Portland Cement (普通ポルトランドセメント)
- SEM: Scanning Electron Microscope (走査電子顕微鏡)
- TEM: Transmission Electron Microscope (透過電子顕微鏡)
- XRD: X-ray Diffraction (X 線回折)
- XRF: X-ray Fluorometry (蛍光 X 線分析)

## 概略

本業務では、放射性廃棄物の中でも鉄殿物を検討対象とし、安全な保管と処分を可能とする高い陰イオン核種保持性や流動性のアルカリ刺激材料とそのレシピを探索する。また、実廃棄物の1/10スケール程度のパイロットサイズ試験体の試作と評価を行い、実プラントとして成立する固化体製作装置の概念を提案する。さらには、最新の鉄殿物インベントリー情報に基づき、本課題で提案する固化体を浅地ピット処分した際の安全評価を行い、多様な性状や核種組成を有する廃棄物固化に対するアルカリ刺激材料のポテンシャルを示すことを目的とする。

以下に、3カ年計画の1年目である本年度の業務実績の概略を述べる。

### (1) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計

陰イオン種の保持が期待される材料として、層状複水酸化物を対象とした。酸化マグネシウムやマグネシウムイオン等を供試体作製時に加えることで、層状複水酸化物が固化時に新しく生成するか否かを実験と反応モデルにより検討した。その生成が期待できないと判断された場合は、供試体作製時に層状複水酸化物を加えて、その安定性や陰イオン吸着能を確認した。さらには模擬固化体を作製してその微細構造の観察を行うとともに、イオン交換水を用いた浸出実験を開始した。

その結果、酸化マグネシウムを作製時に加えた場合には、マグネシウムシリケート水和物 (M-S-H) が形成され、浸出実験の結果その M-S-H や層状複水酸化物にはヨウ化物イオンの遅延能は認められないことが明らかとなった。ただし、模擬固化体作製時に銀イオンを加えたものでは、高いヨウ化物イオン浸出遅延能が認められた。

### (2) 試験体の物性試験と評価

模擬廃棄物を含まない試験体を作製し、振動型粘度計を用いた粘度変化測定および凝結試験機を用いた硬化特性時間の測定を行った。また、圧縮強度測定を行うとともに、最新の鉄殿物インベントリー情報などを考慮した条件を設定し、照射施設を用いたγ線照射試験を行い、水素発生量を測定した。得られた物性データについて、他の固化材料（セメント、Na系ジオポリマー）との比較を行った。

その結果、K系アルカリ刺激材料に関する基礎物性および異なるメタカオリンを用いた場合の物性変動に関するデータを取得した。他の固化材料と比較した結果、K系アルカリ刺激材料は硬化が早い等の特徴が明らかになるとともに、ペースト状態での粘性が低く、高い流動性を有することが認められた。

### (3) パイロットサイズ試験体の作製と評価

保有する混練試作装置を用い、従来の固化体の製作のレシピで実廃棄物（200 L ドラム缶）の1/10スケールの20 Lのパイロットサイズ試験体を試作した。試作したパイロットサイズ試験体より、圧縮試験用の試験体を作製し、強度および乾燥の影響を評価した。試作時にはスケールアップ時の課題を抽出した。特に、混練性の改善を念頭に、課題の抽出を行った。

その結果、原料として使用するメタカオリンが混練性に大きな影響を与えることが明らかとなった。スケールアップ時の混練にはアンカー羽根が適していることが明らかとなった。スケール

アップ時の課題として混練時の羽根への原料の付着と養生条件の最適化が必要であることが抽出された。また、パイロットサイズ試験体の乾燥試験に必要な装置の整備を行った。

#### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉国際共同研究センター（CLADS）等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

## 1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所（以下、「1F」と略す）の廃止措置に向けた取り組みの中で、汚染水の処理などによって種々の放射性廃棄物が発生し、敷地内で貯蔵されている。「東京電力株式会社福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」では、令和3年度頃までを目途に、その放射性廃棄物の処理・処分方策とその安全性に関する技術的な見通しを示すことになっている。いまだに廃棄物の性状把握が難しい状況にあるにも関わらず、基本的な方策について取りまとめなければならないので、実績のあるガラスや普通セメント、現在開発が進む混合セメントを固化材に用いた既存の固化技術を基に模擬廃棄物を作製して様々な試験を行い、核種の浸出を遅延可能な材料の選定と固化体の核種封じ込め性能の理解、長期挙動の理解に必須となる熱力学モデルの構築、さらにはそれらを考慮した処分システムの安全評価を繰り返し、まずは今までに示された処分システムの仕様の中で安全な処分が可能かどうかを検討していく必要があった。特に焼却処理が期待できない Cs 吸着塔内の合成ゼオライトや多核種除去設備で使用されているチタン酸塩は、Cs や Sr が静電的に吸着材に濃集しているだけなので、安全な貯蔵・処分の観点から、それらの浸出が遅延可能なマトリックスを有する固化体にする必要があると考えられた。そのような状況で、平成28年度から30年度まで、北海道大学（北大）とシェフィールド大学は英知事業の日英原子力共同研究で、使用済みの合成ゼオライトとチタン酸塩をアルカリ刺激材料（本研究ではジオポリマーと同義）に固化して様々な試験を行い安全評価も試行した。その結果、両廃吸着材はアルカリ刺激材料によって十分浸出抑制能をもった固化体として容易に作製できること、主要な核種である  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  に関しては既存のピット型で安全に処分可能であることを明らかにした。しかし、ヨウ化物イオンやセレン酸イオン等の陰イオン核種の閉じ込め性能や 1F で大量に発生している鉄沈殿および炭酸塩沈殿物等の廃棄物の固化のためには（日本原子力研究開発機構（JAEA）によってアルカリ刺激材の適用可能性は示されているものの）、出発原料やその配合などを検討して、流動性を高めてワーカビリティを向上させること、陰イオン保持能を高めること、実プラントとして成立する固化体製作装置に向けてスケールアップすることが課題となった。

そこで本業務では、放射性廃棄物の中でも鉄殿物を検討対象とし、安全な保管と処分を可能とする高い陰イオン核種保持性や流動性のアルカリ刺激材料とそのレシピを探索する。また、実廃棄物の 1/10 スケール程度のパイロットサイズ試験体の試作と評価を行い、実プラントとして成立する固化体製作装置の概念を提案する。さらには、最新の鉄殿物インベントリ情報に基づき、本課題で提案する固化体を浅地ピット処分した際の安全評価を行い、多様な性状や核種組成を有する廃棄物固化に対するアルカリ刺激材料のポテンシャルを示すことを目標に、日英協働で以下に示す5つの検討を実施する。

- (1) アルカリ刺激材料の流動性の向上（主にシェフィールド大学が担当）
- (2) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計（主に北大が担当）
- (3) 鉄とアルカリ刺激材料の相互作用の理解（主にシェフィールド大学が担当）
- (4) パイロットサイズ試験体の作製と評価（主にアドバンエンジが担当）
- (5) 安全評価による処分システムの提案（主に北大が担当）

上記の検討には、水素発生抑制に代表される現場のニーズを反映させる必要があるため、それらを熟知した JAEA が、上記 (1) - (3) の検討のために作製された試験体の物性試験と評価を担当する。

本報告では、3 カ年計画の 1 年目である本年度の日本側の業務実績の概略を以下の 4 つの項目に関して述べる。

- (1) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計
- (2) 試験体の物性試験と評価
- (3) パイロットサイズ試験体の作製と評価
- (4) 研究推進

2. 業務計画

2.1. 全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。

実施項目	年次計画		
	令和元年度	令和2年度	令和3年度
(1) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計(北大)		吸着・共沈実験	
		浸出実験・供試体観察	
			モデル化
(2) 試験体の物性試験と評価(JAEA)	試験体の物性試験		
		模擬廃棄物を含む試験体の物性試験	
			保管に主眼をおいた製作レシピの評価
(3) パイロットサイズ試験体の作製と評価(アドバンエンジ)		パイロットサイズ試験体の試作	
		装置の改良	
			実規模固化体作製装置の検討
(4) 安全評価による処分システムの提案(北大)			安全評価
(5) 研究推進	研究推進		

図 2.1-1 本業務の全体計画

各実施項目の目標と方法は以下の通りである。

(1) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計(北大)

【目標】：層状複水酸化物や他の材料を加えたアルカリ刺激材料を製作し、吸着実験や浸出実験を通して、陰イオン核種保持性を高めたアルカリ刺激材料を探索・設計する。

【方法】：層状複水酸化物や銀など、現在までに添加が検討されてこなかった材料を加えた固化体を作製し、ヨウ素などの処分上問題となる可能性の高い陰イオン核種の吸着・収着実験を行う。層状複水酸化物は、酸化マグネシウムやマグネシウムイオン等を供試体作製時に加えることで固化時に新しく生成するか否かを実験と反応モデルにより検討する。その生成が期待できないと判断された場合は、供試体作製時に層状複水酸化物を加えて、その安定性や陰イオン交換能を確認する。それでも陰イオン核種の保持が期待できない場合は、銀など他の資材の添加を検討する。陰イオンの保持が期待できる材料に対しては、保持機構を明らかにするとともにイオン交換平衡定数あるいは表面錯体平衡定数などを取得して、その保持モデルの開発につなげる。さらには模

擬固化体を作製してその微細構造の観察を行うとともに、イオン交換水や海水等の溶液を用いた核種の浸出実験を行い、核種の浸出挙動の解明とそのモデル構築に資する。

## (2) 試験体の物性試験と評価 (JAEA)

【目標】：北大およびシェフィールド大で提案された高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料レシピにより試験体を作製し、その物性試験を行うとともに、保管に関する物性の評価を行う。

【方法】：北大およびシェフィールド大で提案されたレシピを共有し、φ50 mm×L100 mmの試験体を作製し物性の評価を行う。製作に関連する物性として粘度および凝結性を、保管に関連する物性として圧縮強度とγ線照射による水素発生量を測定する。他機関が実施する研究開発結果との連携により、より好ましい特性を発揮できるレシピを探索する。JAEAが実施する他の廃炉関連業務とも情報共有等を通じて連携し、廃炉の現場ニーズの反映を担う。

## (3) パイロットサイズ試験体の作製と評価 (アドバンエンジニア)

【目標】：実廃棄物の1/10スケールの20 Lサイズのパイロットサイズ試験体の試作と評価を行い、実プラントとして成立する固化体製作装置の概念を提案する。

【方法】：北大、シェフィールド大および JAEA で提案された高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料のレシピについて、これまでに開発した混練試作装置を用いて20 Lサイズの試験体の試作を行い、スケールアップに伴う課題を抽出する。得られた課題を元に混練試作装置の攪拌機構の改良や混練と養生時の温度や重量等を測定可能な測定系の追加を行う。得られた20 Lサイズ試験体の強度を測定し、実験室で作製したテストピースと比較し、スケールアップに伴い混練や養生条件等、固化体に影響を及ぼす因子を明らかにする。ラボスケールのレシピをスケールアップする技術を確立するとともに、最終的に実プラントとして成立する固化体製作装置の概念設計を行う。

## (4) 安全評価による処分システムの提案(北大)

【目標】：最新の鉄殿物のインベントリー情報に基づき、本課題で提案する固化体を浅地ピット処分した際の安全評価を行い、当該廃棄物の処分システムの提案を行う。

【方法】：本課題で提案する固化体からの核種の長期浸出挙動を考慮し、現在までに検討されてきたベントナイトを併用するピット処分システムを出発として安全評価を行う。安全評価は日本原子力学会の標準（浅地中トレンチ処分の安全評価手法：2013）および（浅地中ピット処分の安全評価手法：2012）に則り、汎用シミュレーションソフトウェアである GoldSim を用いて被ばく線量の解析を行う。被ばく経路は、処分施設から漏出した核種が地下水を介して生活環境へ移行し、その地下水を利用することを想定した「地下水移行シナリオ」と、隆起・浸食、海水準変動により地表付近に近接した埋設施設やその周辺の岩石あるいは地下水の移行経路や生活圏への流出先となる岩石・土壌に残存する放射性核種により直接的・間接的に被ばくすることを想定した「土地利用シナリオ」に大別し、それぞれのシナリオにおいて被ばく線量が最大であった被ばく経路において評価を行う。また、その検討過程を通して得られたデータから、本固化体を対象とした安全な処分システムの最適化を行い、上記処分や安全評価の実績を有する日本原燃や電

中研の担当者、および分担者でもある JAEA/CLADS の関係者と協議しながら、その実現性を念頭に置いた検討を行う。

**(5) 研究推進（北大）**

【目標】：本研究の目標達成のため、日本の関係機関相互の連携や日英の連携がスムーズに行われ、本業務における研究が推進するように組織を管理する。

【方法】：日英双方の研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため1年に2回程度の委員会を開催する。英国シェフィールド大学側とは、テレビ会議や訪問、あるいは日本に招聘しての議論を深め、日英の連携に留意して検討していく。なお、日本に招聘した際は、本邦の産官学の関係者も参加可能なシンポジウム等を開催して、本研究の成果や英国シェフィールド大学が有する最新情報を共有することに努める。また、本事業における人材育成のため、若手の事業分担者や学生による定期的なセミナーと社会への情報発信のためのトレーニングを兼ねたホームページ作成を行う。

## 2.2. 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法

### (1) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計

陰イオン種の保持が期待される材料として、層状複水酸化物を対象とした。酸化マグネシウムやマグネシウムイオン等を供試体作製時に加えることで、層状複水酸化物が固化時に新しく生成するか否かを実験と反応モデルにより検討する。その生成が期待できないと判断された場合は、供試体作製時に層状複水酸化物を加えて、その安定性や陰イオン吸着能を確認する。さらには模擬固化体を作製してその微細構造の観察を行うとともに、イオン交換水を用いた浸出実験を開始する。

### (2) 試験体の物性試験と評価

模擬廃棄物を含まない試験体を作製し、振動型粘度計を用いた粘度変化測定および凝結試験機を用いた硬化特性時間の測定を行う。また、圧縮強度測定を行うとともに、最新の鉄殿物インベントリー情報などを考慮した条件を設定し、照射施設を用いた $\gamma$ 線照射試験を行い、水素発生量を測定する。得られた物性データについて、他の固化材料（セメント、Na系ジオポリマー）との比較を行う。

### (3) パイロットサイズ試験体の作製と評価

保有する混練試作装置を用い、従来の固化体の製作のレシピで実廃棄物（200 L ドラム缶）の1/10 スケールの20 Lのパイロットサイズ試験体を試作する。試作したパイロットサイズ試験体より、圧縮試験用の試験体を作製し、強度および乾燥の影響を評価する。試作時にはスケールアップ時の課題を抽出する。特に、混練性の改善を念頭に、課題の抽出を行う。

### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

### 3. 令和元年度の実施内容及び成果

#### 3.1. 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計

##### 3.1.1. アルカリ刺激材料のレシピの作成と吸着実験

###### (1) 目的

本項目では以下の二つを目的として研究を行った。

- ・ ジオポリマー作製のための適切なレシピを選択すること
- ・ 異なる二種のメタカオリンから作製されたジオポリマーのフローと吸着に関する特性を評価すること

###### (2) 方法

IMERYS 社製のメタカオリンである Metastar®501（以下、「Metastar501」と略す）およびソブエクレ株式会社製のメタカオリン（以下、「ソブエクレ」と略す）を用いてジオポリマーを作製した。配合比（ $K_2O:SiO_2:H_2O$ ）に関しては、1:1:11、1:1:13、1:3:11、1:3:13（モル比）の4つをそれぞれのメタカオリンで検討した。フロー試験はジオポリマーのキャストングを経て実施された（図 3.1-1）。ジオポリマーは、28 日間 40 °C にて養生させた。その後、ジオポリマーを粒径 150  $\mu m$  以下になるように粉砕した。

また、陰イオン吸着特性の評価のために、作製したジオポリマー粒子のゼータ電位測定を実施した。ゼータ電位測定により、溶液の pH が変化した時や吸着実験前後のジオポリマー粒子表面の電位の変化を測定することができる。表面電位の変化より、溶液に分散したジオポリマー粒子が陰イオンの表面吸着能力を持っているかどうか、あるいは吸着メカニズムを推定することができる。ゼータ電位と粒径測定の際に使用する懸濁液は、ヨウ化カリウム（KI）、ヨウ素酸カリウム（ $KIO_3$ ）、セレン酸カリウム（ $KSeO_4$ ）、亜セレン酸カリウム（ $K_2SeO_3$ ）水溶液 100 mL に、それぞれ 0.1 g のジオポリマー粉体を混合させて作製した（固液比 = 1 g/L）。懸濁液作製前、各水溶液のイオン強度は硝酸カリウム（ $KNO_3$ ）によって調整している（イオン強度 I = 10, 100 mmol/L）。ジオポリマー粉体を加える前の各水溶液の pH と、ジオポリマーを加えた後の懸濁液の pH をそれぞれ測定した。

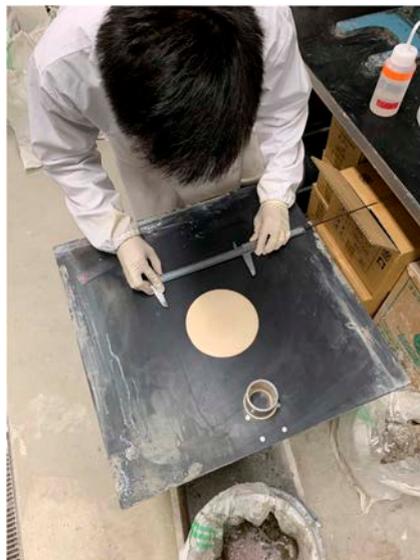


図 3.1-1 フロー試験

(3) 結果と考察

資材を練り混ぜた直後のジオポリマーモルタルの流動性を比較評価するため、簡易テーブルフロー試験を行った。なお、本簡易テーブル試験は、建築工事標準仕様書規格（JASS）の標準試験法である JASS15M-103 に準拠したものである。この試験で求めるのがフロー値であるが、フロー値は離型後に広がったジオポリマーモルタルの直径で、直径が大きいものほど流動性が高いということになる。簡易テーブルフローの結果（図 3.1-2）より、Metastar501 よりもソブエクレを用いて作製したジオポリマーは、どの配合においてもフロー値が高かった。さらに、配合比 1:1:13 (=  $K_2O:SiO_2:H_2O$ ) のジオポリマーは、他の配合比と比較して最も高いフロー値を示した。これは、ジオポリマー中の含水量が大きかったためであると考えられる。従って、ゼータ電位実験と吸着実験では、配合比 1:1:13 (=  $K_2O:SiO_2:H_2O$ ) のジオポリマーを対象に行った。

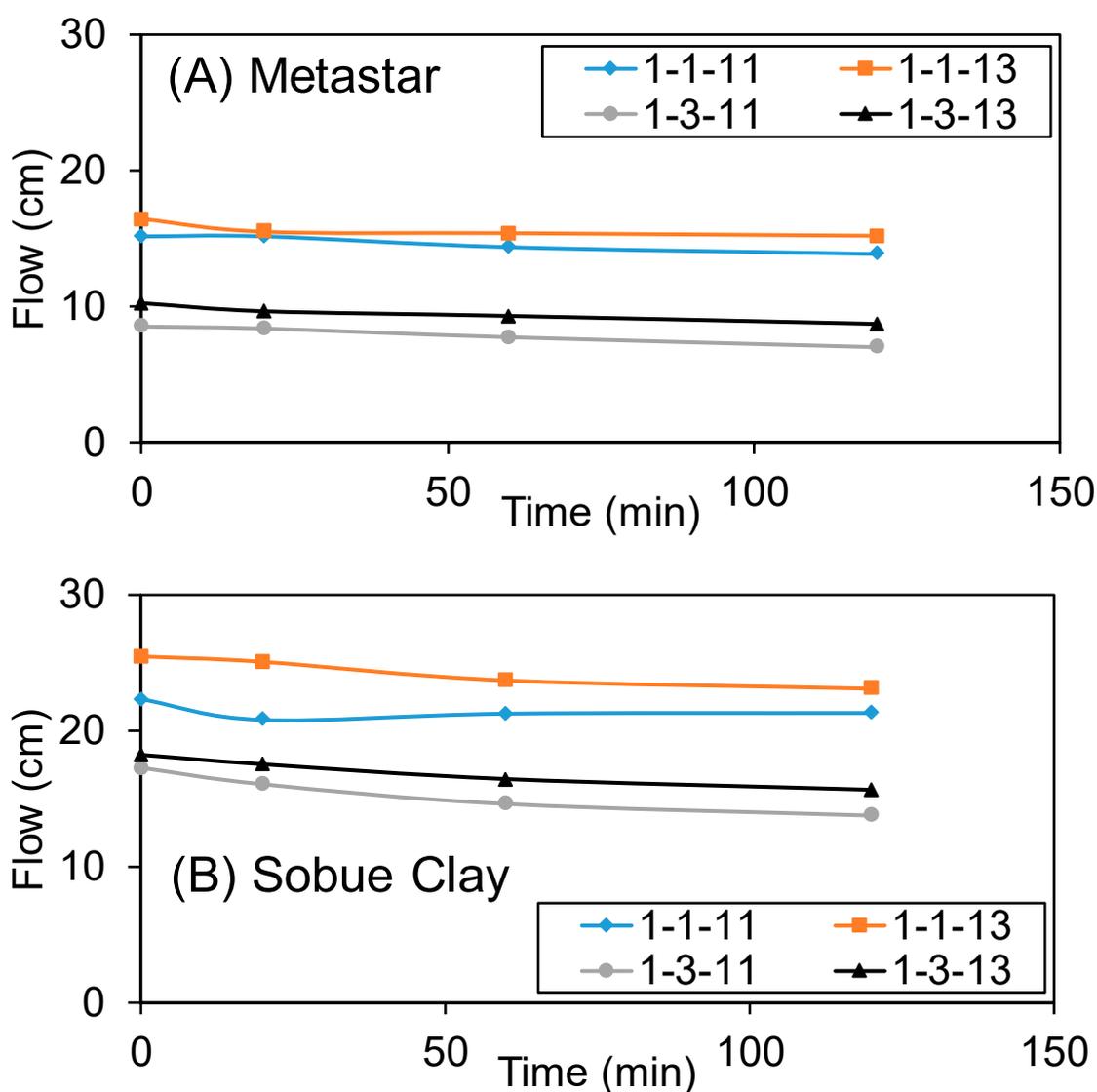


図 3.1-2 (A) Metastar501 および (B) ソブエクレから作製したジオポリマー試料のフロー試験の結果  
 図中 a-b-c は配合比 a:b:c( $K_2O:SiO_2:H_2O$ ) を表す。

吸着実験の前に、ゼータ電位測定からジオポリマーの表面特性を評価した。

図 3. 1-3 にその測定結果を示す。pH に依存せずゼータ電位は負の値であった。これは、ジオポリマーが永久電荷を有することを意味する。また、ソブエクレーから作製したジオポリマーは、Metastar501 と比較してより小さい値を示した。

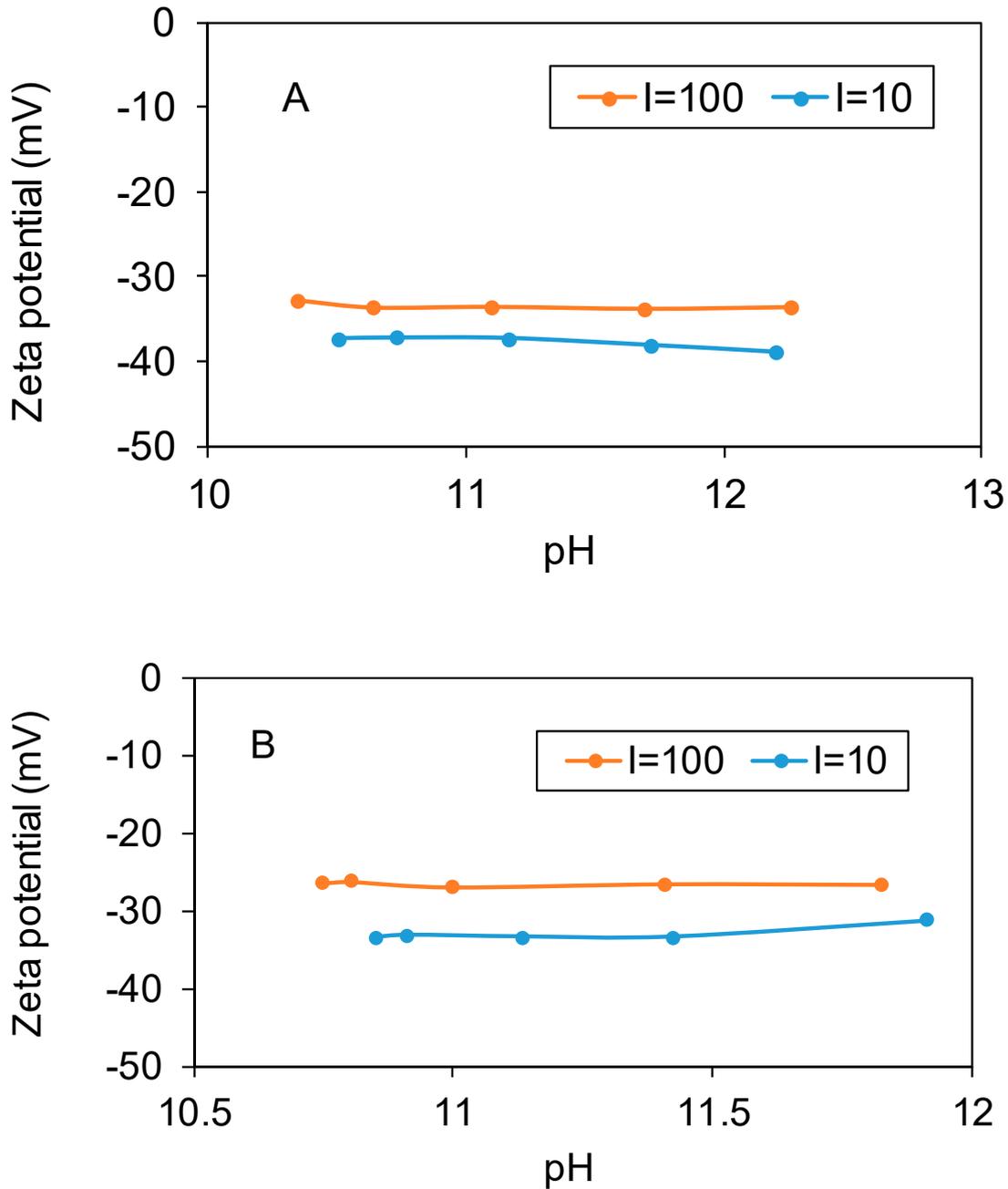


図 3. 1-3 (A) Metastar501 および (B) ソブエクレーから作製したジオポリマー試料のゼータ電位と pH (イオン強度 I = 10 mM および 100 mM)

ジオポリマー表面の  $I^-$ 、 $IO_3^-$ 、 $SeO_3^{2-}$ 、 $SeO_4^{2-}$  に対する吸着特性は、ゼータ電位実験 によって評価した。ソブエクレールから作製したジオポリマーについては図 3.1-4 に、Metastar501 から作製したジオポリマーについては図 3.1-5 に、実験結果を示す。各陰イオンの濃度が比較的低いときは、ゼータ電位は濃度に関係なくほぼ一定値を示した。またそれは図 3.1-3 に示すゼータ電位の値 ( $I^-$ 、 $IO_3^-$ 、 $SeO_3^{2-}$ 、 $SeO_4^{2-}$  が系に存在しないとき) におおよそ一致している。このことは、ジオポリマー表面に表面吸着がそれほど起こっていないことを示唆する。一方、 $SeO_4^{2-}$  や  $SeO_3^{2-}$  の濃度が高いときは、より小さい値を示しており、これが吸着による影響であると考えられる。しかしながら、これら陰イオンが存在していないときもゼータ電位は負の数であったため、本ゼータ電位の測定結果からは、吸着メカニズムを十分に議論することは困難である。従って、来年度の方策として、吸着した陰イオン量を評価することなどを検討している。

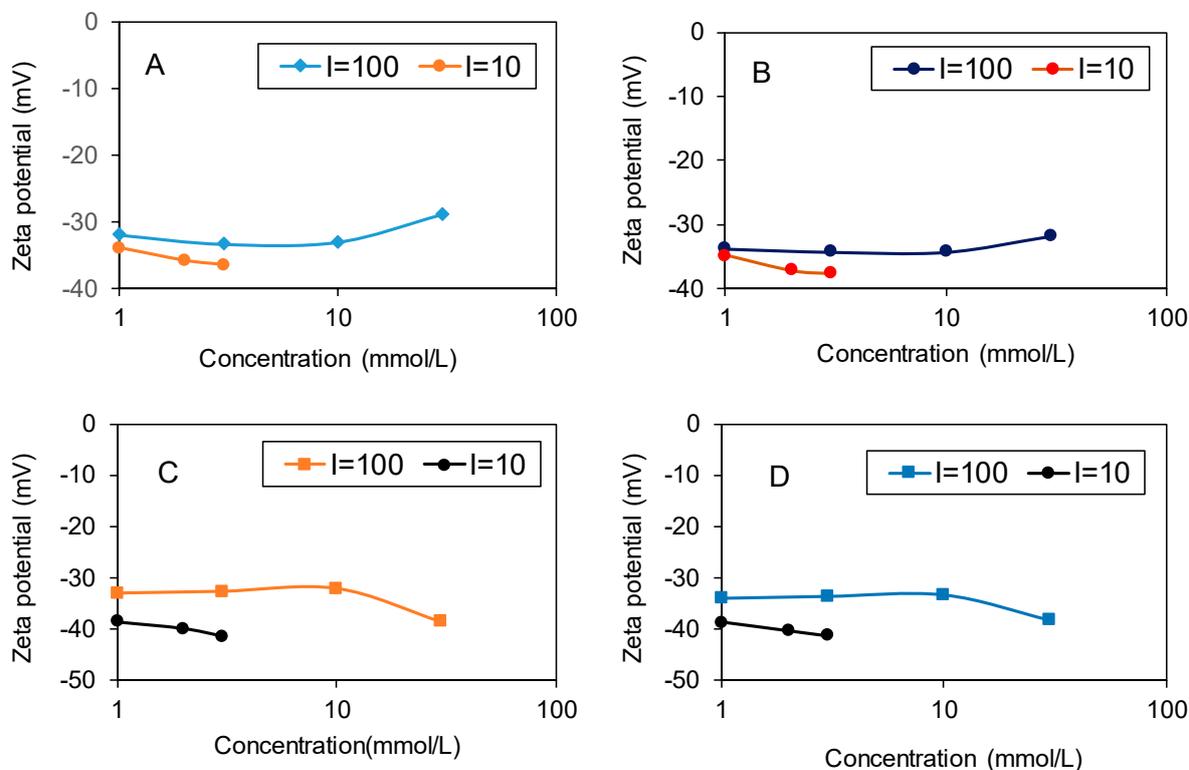


図 3.1-4 ソブエクレールから作製したジオポリマーのゼータ電位と (A) KI, (B) KIO<sub>3</sub>, (C) K<sub>2</sub>SeO<sub>4</sub>, (D) K<sub>2</sub>SeO<sub>3</sub> の濃度 (イオン強度 I = 10 mM および 100 mM)

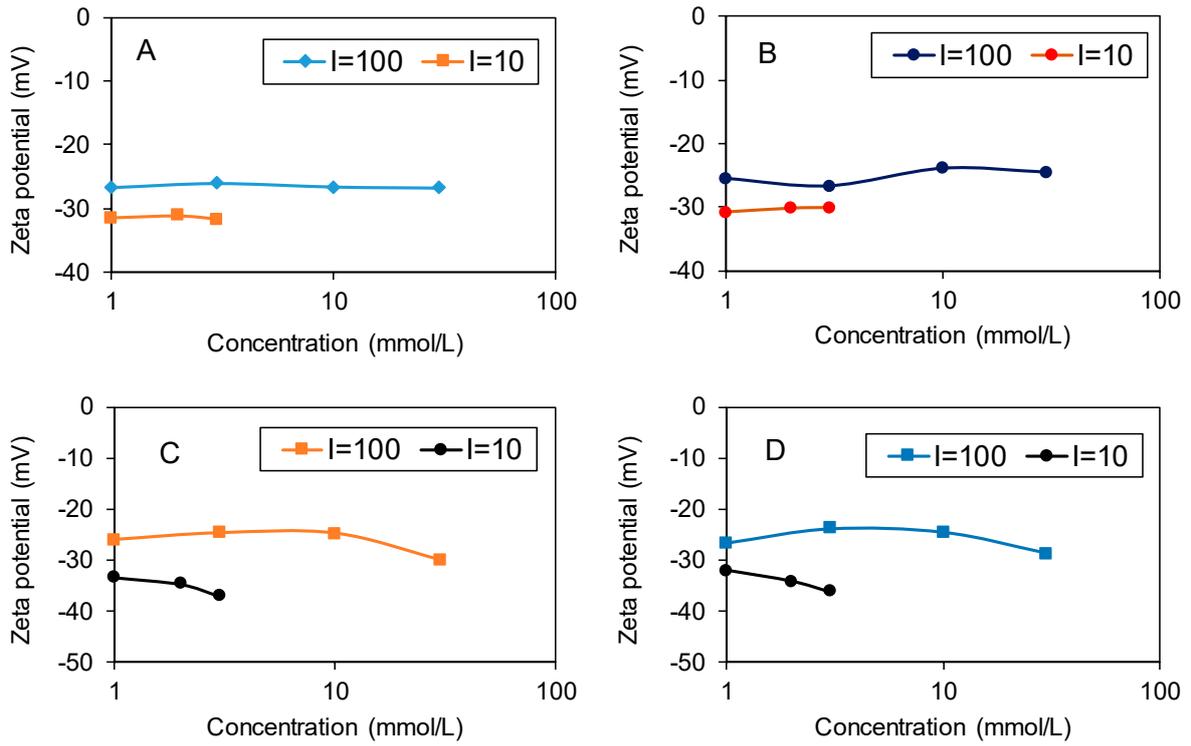


図 3.1-5 Metastar501 から作製したジオポリマーのゼータ電位と (A) KI, (B) KIO<sub>3</sub>, (C) K<sub>2</sub>SeO<sub>4</sub>, (D) K<sub>2</sub>SeO<sub>3</sub> の濃度 (イオン強度 I = 10 mM および 100 mM)

### 3.1.2. 陰イオン保持性を高めるように設計したアルカリ刺激材料の浸出実験

#### (1) 目的

本研究は、放射性廃棄物の中でも鉄殿物を検討対象とし、安全な保管と処分を可能とする高い陰イオン核種保持性や流動性を持つアルカリ刺激材料とそのレシピを探索する。マトリックスの組成をデザインできるジオポリマーに、陰イオン保持性を持つ相を共存させ、陰イオンを保持することができるか検討した。本報告書では、 $I^-$ および  $IO_3^-$ を対象とした実験について報告する。陰イオン種の保持が期待される相として、陰イオン交換能を持つ層状複水酸化物 (Mg-Al- $CO_3$  型) およびヨウ化物を作成する銀イオン ( $AgI$ ) を対象とした。層状複水酸化物は酸化マグネシウムやマグネシウムイオン等を供試体作製時に加えること、または供試体作製時に層状複水酸化物を加えて、その安定性や陰イオン吸着能を確認した。銀イオンの添加は、供試体作製時に行った。陰イオンの保持性の検討には、模擬固化体を作製してその微細構造の観察を行うとともに、イオン交換水を用いた浸出実験を開始した。

#### (2) 方法

##### ・ 模擬固化体の作製方法

ジオポリマー固化体の作製には、K型水ガラスを用いた。K型はNa型と比較して、イオン水和半径の違いから、ワーカビリティが良いことが知られている (Provis and Bernal, 2014) <sup>1</sup>。ジオポリマーを作製する際に使用する水ガラスのモル組成比は、 $SiO_2/K_2O:Al_2O_3/K_2O:H_2O/K_2O = 1:1:11$  とした。K<sub>2</sub>Oのモル濃度調節のために、K型水ガラスの  $K_2O:SiO_2: nH_2O$  (22 wt%: 29.3 wt%: 48.6 wt%) (富士フイルム和光純薬株式会社) に対し、KOH (富士フイルム和光純薬株式会社) を添加した。ヨウ化物イオンをジオポリマー (GP) に添加するために、水ガラスの  $K_2O:SiO_2: nH_2O$  調整に用いるイオン交換水にKIあるいは $KIO_3$ を添加し溶解させた。 $IO_3^-$ の光分解 (Kenny et al., 1980) <sup>2</sup>を防ぐために、実験は簡易的な暗室で行われた。KIあるいは $KIO_3$ はそれぞれヨウ化物イオン (iodine,  $I^-$ ) を平均して 1.1 mol、ヨウ素酸イオン (Iodate,  $IO_3^-$ ) を 0.8 mol 付加させるように混和した。水ガラスとヨウ化物イオンが溶存した溶液を混和させた後に、KOHを添加し、K<sub>2</sub>Oモル比を調整した。このとき、氷の張ったウォーターバス中で混合することにより、発熱反応の熱を冷やしながらKOHの溶解を行った。上述の方法で作製した水ガラスと、メタカオリン (ソブエクレ) を用いてジオポリマー固化体を作製した。プラスチック製のカップと混合棒を用い、9.5 gのアルカリ刺激剤を6 gのメタカオリンと15分混和した。他にも、陰イオン保持性の付加をするためにMgO、層状複水酸化物 (LDH) および $AgNO_3$ をそれぞれ添加した。各々の添加方法は以下である。

酸化マグネシウム (MgO) の添加 :

ジオポリマー作製時にMgOを添加しMg供給源とし、Mg-Al- $CO_3$ 層状複水酸化物 (LDH) の生成を試みた。酸化マグネシウム粉末 (富士フイルム和光純薬株式会社) を1.5 gのメタカオリンに30%混合させ、水ガラスと混和することでMgOを含むジオポリマー固化体を作製した。

Mg-Al- $CO_3$ 層状複水酸化物 (LDH) の添加 :

Mg-Al- $CO_3$ 層状複水酸化物 (LDH) を添加するために、LDHを合成した。0.3 mol/Lの $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ と0.1 mol/Lの $Al(NO_3)_3$ を100 mLの超純水に添加し、室温にて攪拌した。試薬の溶解を確認し

た後に、0.1 mol/L  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  を溶液に添加し、2 mol/L の  $\text{NaOH}$  を用いて 溶液の pH を 10 に保った。後に 90 °C で 48 時間保持し、さらに 25 °C で 24 時間保持して合成に供した。合成終了後の固体は、300 rpm で約 40 分間遠心分離を行った後に回収し、3 度超純水により洗浄し硝酸残渣を除去した後に凍結させ、凍結乾燥により乾燥させた。合成した LDH (図 3.1-6) は 1.5 g のメタカオリンに 30 %混合させ、水ガラスと混和することで LDH を含むジオポリマー固化体を作製した。

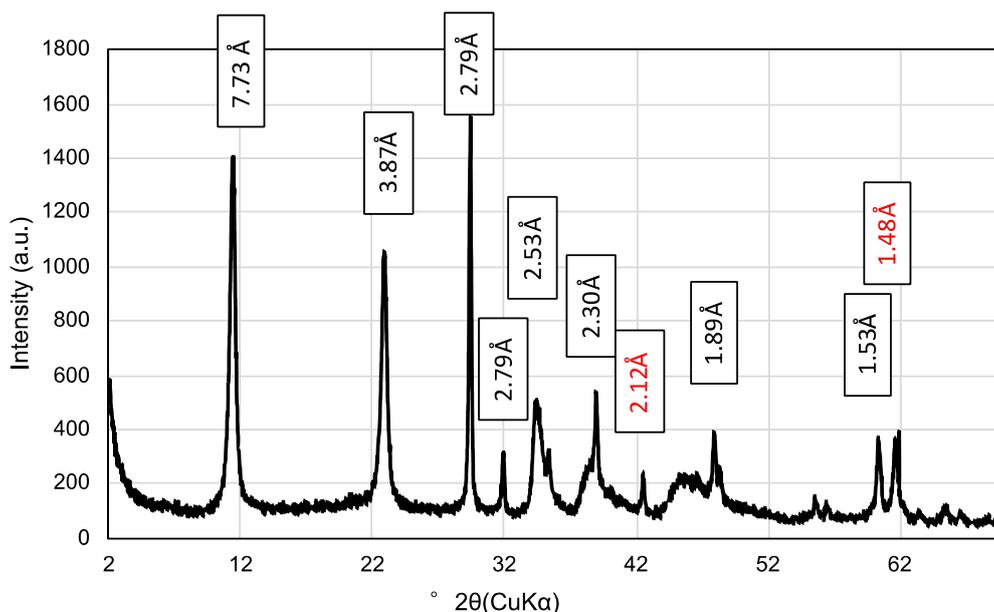


図 3.1-6 合成した LDH の XRD パターン

硝酸銀 ( $\text{AgNO}_3$ ) の添加 :

銀イオンをジオポリマー固化体に添加するために、溶存種の状態ジオポリマー固化体に添加した。0.00082 mol の  $\text{AgNO}_3$  (富士フイルム和光純薬株式会社) を  $\text{I}^-$ あるいは  $\text{IO}_3^-$ の溶存したイオン交換水に混合した溶液を、水ガラスの  $\text{H}_2\text{O}$  モル比調整に使用することで銀イオンを添加した。銀イオンが共存する水ガラスを、メタカオリンと混合することで、銀の陰イオン保持性を解明するサンプルとした。

以上の添加物を混和したジオポリマースラリーを直径 13 mm、高さ 15 mmの円柱状に成型しパラフィルムを用いて密閉した上 40 °C で 24 時間、その後 25 °C で 24 時間、養生したものを試験体とした。1つの実験系に対して4つの円柱状の模擬固化体を作製した。

#### ・ 浸出試験の方法

浸出試験法はアメリカ原子力学会から発行されている ANSI/ANS-16.1-2003 を用いた。蒸留水を用いた。作製した試験体の表面積が 8.8  $\text{cm}^2$  になるので、88.0 mL の蒸留水に浸漬させ、25 °C の条件下で (図 3.1-7) のように安置した。なお、浸漬溶液は 2、7 時間、1、2、3、4、5、19 日

毎にサンプリングし、サンプリング後には新しい浸漬溶液と交換した。浸漬溶液の  $I^-$  や  $IO_3^-$  濃度は誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を用いて測定した。一方、浸漬終了後の固体試料は半割にし、X 線回折 (XRD) 分析に供して鉱物組成を得て、走査電子顕微鏡 (SEM) 観察により元素組成分布を得た。サンプルによっては透過電子顕微鏡 (TEM) を用いて、局所的な構造の分析を行った。

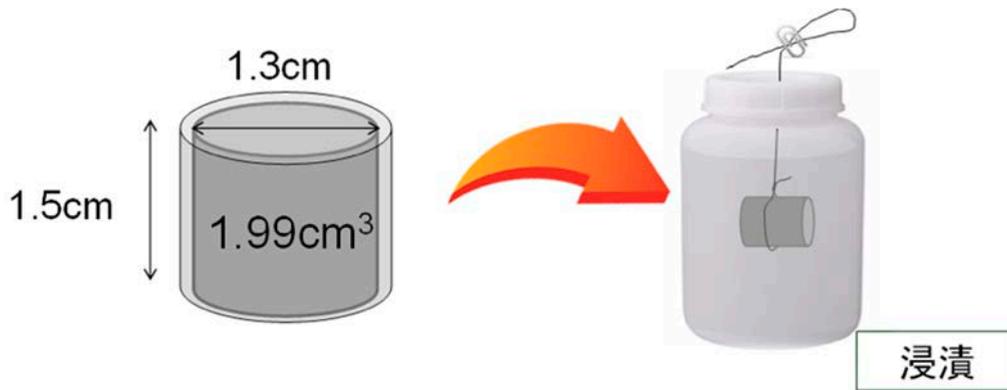


図 3.1-7 作製した模擬固化体のサイズとその浸漬状況

### (3) 結果と考察

本研究における浸出試験 2、7 時間、1、2、3、4、5、19 日毎に溶液試料のサンプリングを実施した。ジオポリマー固化体 (GP-only)、MgO 添加系固化体 (MgO-GP)、LDH 添加系固化体 (LDH-GP)、硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) に対して実施したヨウ化物イオン (図 3.1-8a) とヨウ素酸イオン (図 3.1-8b) の浸出実験のデータを以下に示す。リーチング試験 19 日目のヨウ化物イオン浸出率 (図 3.1-8a) を比較すると、ジオポリマー固化体 (GP-only) は 89.8 %、MgO 添加系固化体 (MgO-GP) は 98.7 %、LDH 添加系固化体 (LDH-GP) は 100 %、硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) は 58.7 %であった。一方で、固化体間のヨウ素酸イオン (図 3.1-8b) の 19 日目における浸出率を比較すると、ジオポリマー固化体 (GP-only) は 95.6 %、LDH 添加系固化体 (LDH-GP) は 100 %、硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) は 2.44 %であった。以上より、ヨウ化物イオンおよびヨウ素酸イオンはどちらもジオポリマー固化体に対して銀イオンを添加することで、最もその遅延機能が期待されることが明らかとなった。本年度は、 $I^-$  の浸出実験において、MgO を添加した場合  $I^-$  の浸出遅延が認められなかったため、 $IO_3^-$  での実験を実施していないが、今後  $IO_3^-$  に関して追加実験を行う予定である。

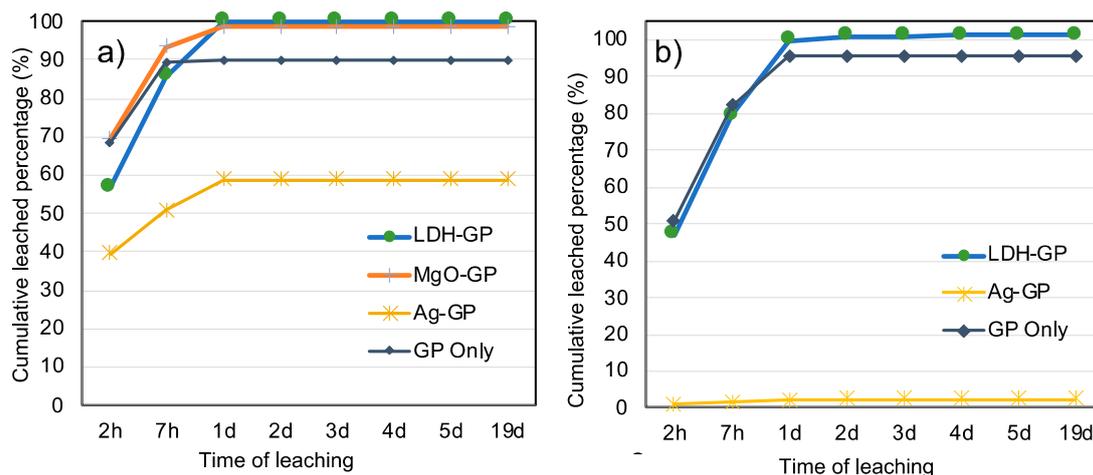


図 3.1-8 ジオポリマー固化体(GP-only)、MgO 添加系固化体(MgO-GP)、LDH 添加系固化体(LDH-GP)、硝酸銀添加系固化体(Ag-GP)からの a) I<sup>-</sup>および b) IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の積算浸出割合の経時変化

ジオポリマー固化体 (GP-only) 、MgO 添加系固化体 (MgO-GP) 、LDH 添加系固化体 (LDH-GP) 、硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) を浸出試験に供した前後の鉱物相の変化を理解するために、浸出試験後の供試体を XRD 回折に供した。本年度実施した固体分析は、I<sup>-</sup>に対して実施したリーチング試験から得たものである。XRD 分析は、Cu 管球を X 線源としたリガク RINT-2100 を用い、30 kV および 20 mA の条件で測定した。XRD 分析結果を図 3.1-9 に示す。a)、b)、c) と d) 図の 0day と示される XRD は、リーチング前の固化体の鉱物組成を示し、19days と示される XRD は、リーチング後の固化体の鉱物組成を示す。ジオポリマー固化体 (GP-only) (図 3.1-9a) から、1 mol 程のヨウ化イオン共存下において、ジオポリマー固化体を作製しても、XRD 下でヨウ素を含む結晶質鉱物は生成しないことがわかる。リーチング前後、どちらでも 28 度程度をピークトップとするブロードなピークおよび石英に帰属するピークが認められ、鉱物組成に大きな変化が認められないことがわかった。ジオポリマーのマトリックス自体に、ほとんど I<sup>-</sup>と IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の保持性がないことがわかる。固化体に添加した MgO 添加系固化体 (MgO-GP) (図 3.1-9b) は、リーチング前においては MgO がジオポリマー固化体中の結晶質な構成鉱物として存在するが、19 日のリーチングの後に、MgO のピークは消失し、新たにマグネシウムシリケート水和物 (M-S-H; Nied et al., 2016) <sup>3</sup> に帰属するピークが現れたことが明らかとなった。添加物を入れていないジオポリマー固化体と同様、I<sup>-</sup>の保持性を示さないことから、M-S-H が生成するジオポリマー固化体を作製しても、I<sup>-</sup>の浸出は遅延されないことがわかる。M-S-H の表面電荷は負 (Bernard et al., 2019) <sup>4</sup> であることから、陰イオンとの静電的相互作用はお互いに反発する方向に働く。

LDH 添加系固化体 (LDH-GP) (図 3.1-9c) において、リーチング前後どちらも鉱物組み合わせは LDH であると認められたことから、ジオポリマー合成時に添加した LDH は、19 日のリーチング試験の期間で相変化をしないことが示された。しかし、LDH が残存しているジオポリマー固化体を用いても、I<sup>-</sup>や IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の浸出の遅延は期待できないことが明らかとなった。硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) (図 3.1-9d) は、リーチング前後で AgI と Ag<sub>2</sub>O がジオポリマー固化体を構成する鉱物組み合わせであり、リーチングによる変化は認められない。これは、硝酸銀を用いてジオポリマー固化体を作製した際に、Ag は I と沈殿し、AgI となることを示し、さらに 19 日のリーチング後に AgI が存在することから、I は AgI の固相に取り込まれたまま残存している。AgI の生成

および本実験条件下において AgI がジオポリマー固化体内で安定であることから、ヨウ化物イオン浸出率が他固化体と比較して低かったことが示唆される。IO<sub>3</sub><sup>-</sup>に対して実施したリーチング試験から得た固体試料は、引き続き分析を継続して行く。

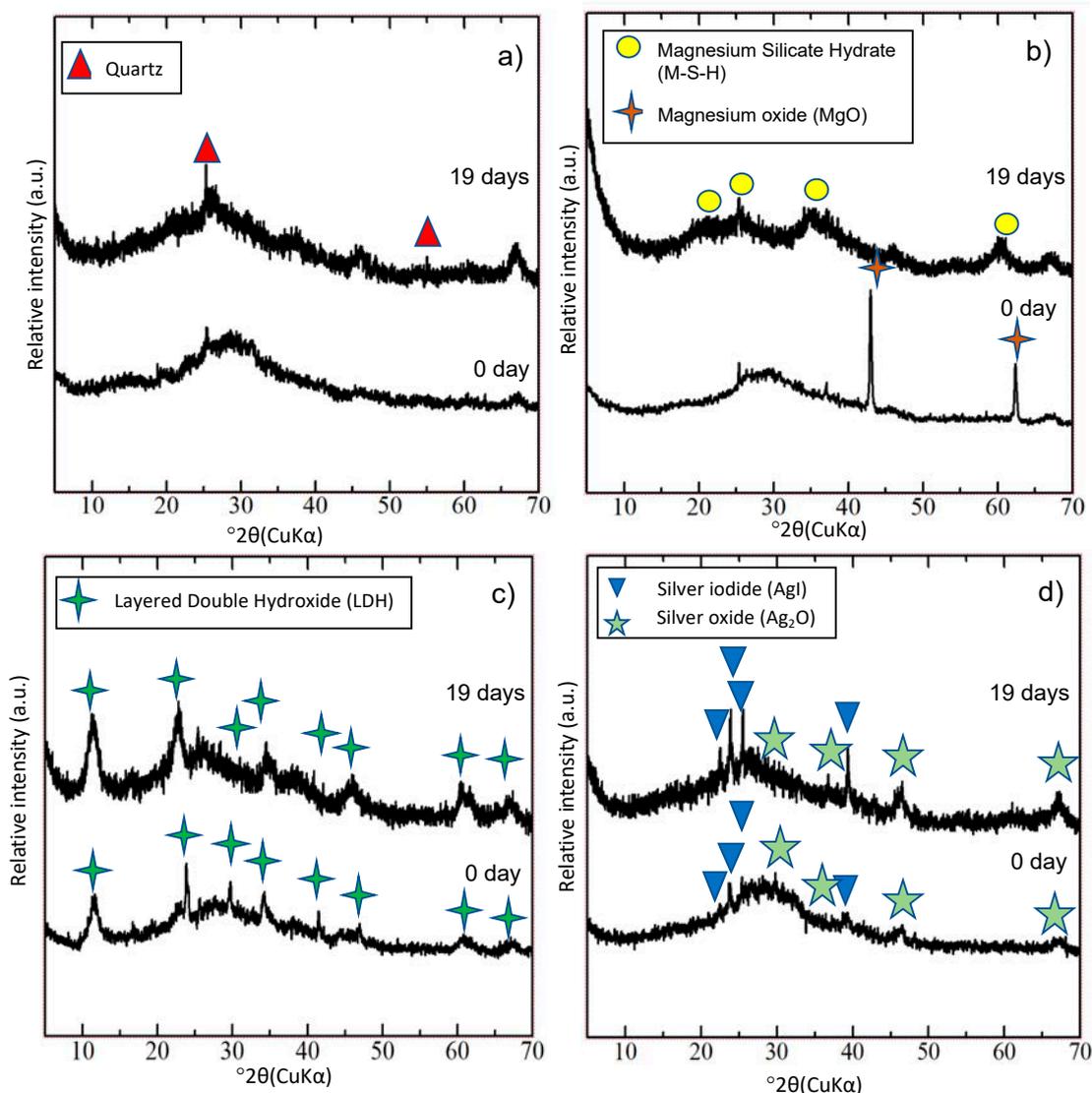


図 3.1-9 I<sup>-</sup>を混合したジオポリマー固化体に対し、  
イオン交換水を用いて浸出試験をした前後の供試体の XRD 分析結果  
a) ジオポリマー固化体 (GP-only)、b) MgO 添加系固化体 (MgO-GP)、  
c) LDH 添加系固化体 (LDH-GP)、d) 硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP)

まずは、最もヨウ化物イオンおよびヨウ素酸イオンの浸出遅延能の高かった硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) の鉱物相組成について考察する。リーチング前のジオポリマー固化体 (GP-only)、MgO 添加系固化体 (MgO-GP)、LDH 添加系固化体 (LDH-GP)、硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) から

得られた SEM の元素組成像のうち、ヨウ素の分布が検出されたのは硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) のみであった。Ag-GP のみ、ヨウ素が局所的に濃集しており、他固化体中には、一様に分布していることが示唆される。硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) の SEM の元素組成像のみ、本報告書では記載する。

その元素組成像 (図 3.1-10) から、Ag と I が同エリアに存在することが認められた。XRD パターンでも AgI に帰属するピークが認められたように、ヨウ化物イオンは AgI として沈殿し、その浸出を遅延していることが示された。SEM による組成分布図においては、数  $\mu\text{m}$  の粒子状の産状をしていることが認められる。ジオポリマー中で生成した AgI 粒子を、TEM 観察に供した。透過電子像 (図 3.1-11) から、20 nm 程度の AgI 粒子が認められ、SEM 観察下の数  $\mu\text{m}$  の Ag および I の濃集部は、数十 nm ほどの AgI 粒子が凝集した結果を表していることが考えられる。

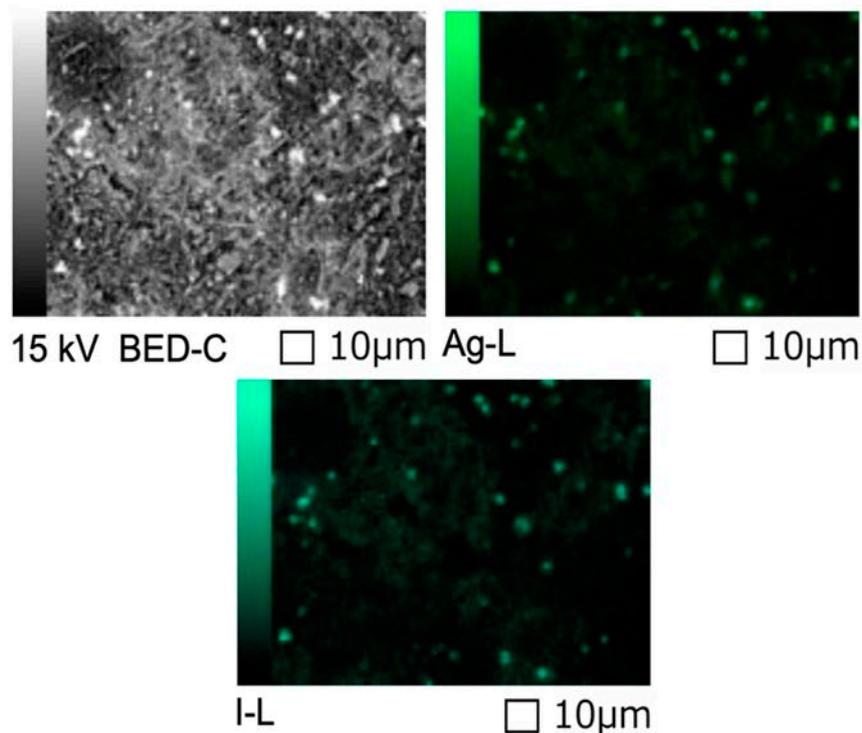


図 3.1-10 浸出試験前の硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) 研磨片  
 左上：電子顕微鏡観察、右上：Ag マッピング、下：I マッピング

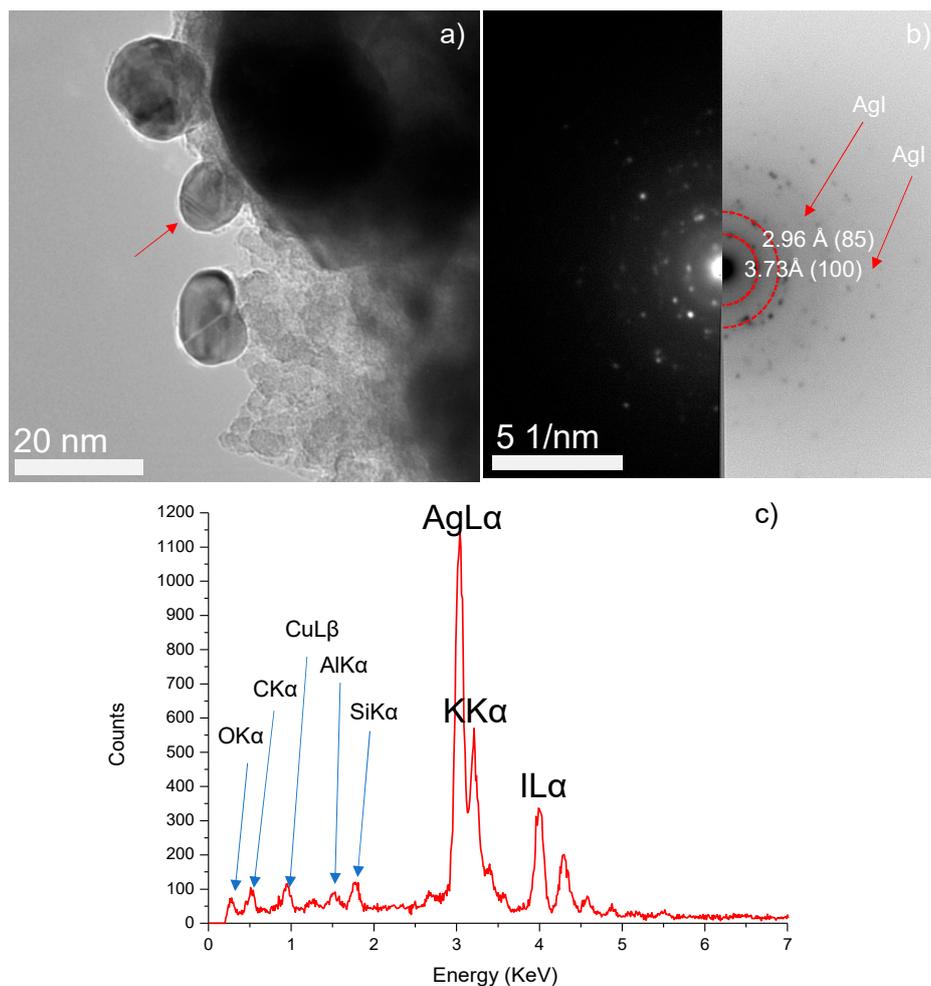


図 3.1-11 AgI の TEM 観察

(a) TEM 像、(b) 赤い矢印で示されたエリアの電子線回折像、(c) EDS 結果

熱力学的に、ヨウ化銀や酸化銀がジオポリマー中で沈殿可能か検討するためにヨウ化銀および酸化銀の溶解度曲線を作成し、同プロット状に重ね合わせた (図 3.1-12)。平衡計算は地球化学反応モデリング用のソフトウェアである The Geochemist's Workbench を使用し、熱力学データベースは、Iodyrite 相を含む Thermo\_wateq4.tdat を用いた。ヨウ化物イオン活量は、水ガラス中のヨウ化物イオン濃度から  $10^{-3.405}$ 、同様に  $H_4SiO_4$  活量を  $17.26^{-6}$ 、 $K^+$  活量を 4.64 として計算した。ヨウ化銀および酸化銀は高アルカリ環境下でも固相として安定であり、ヨウ化銀がグラフ上の広範囲で固相として熱力学的に安定であることが示される。本研究で作製した硝酸銀添加系固化体 (Ag-GP) には、 $Ag_2O$  の生成が認められた。これは、ヨウ化物イオンの供給に対し、Ag イオンが過多に添加されていることを示唆している。よって、放射性廃棄物に含まれるヨウ化物イオン濃度ないしはヨウ素酸イオン濃度がわかれば、それに対して適切な銀イオンの添加量を試算できると提案する。

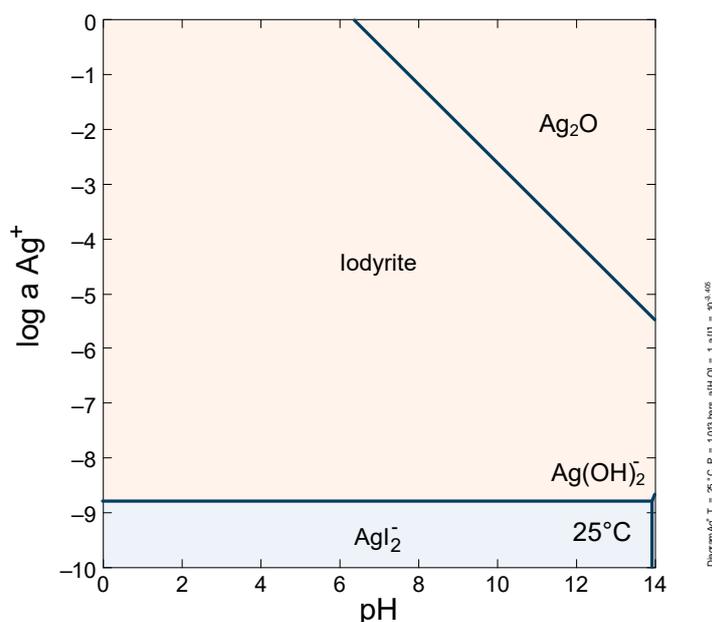


図 3.1-12 ヨウ化銀(Iodyrite)の溶解度曲線

陰イオン核種保持性が期待されていたLDHの相変化について考察する。LDHは準安定相だがLDHを担持させたジオポリマー固化体のXRD分析においてはリーチング前後でLDHに変化は認められなかった。LDHに対するジオポリマーの影響を詳しく分析するため、合成試験後に得られたLDH粉末およびリーチング試験前のLDH添加系固化体(LDH-GP)のTEM像を取得した(図3.1-13)。LDH粉末のTEM像(図3.1-13a)は繰り返し構造が認められず、非晶質な産状を示すが、ジオポリマーと混合後(図3.1-13b)の赤い矢印で示されるエリアの電子回折像(図3.1-13c)とエネルギー分散型X線分析(EDS)の結果(図3.1-13d)よりLDHと同定された粒子は、層状であることがわかる。XRD結果より、LDHの構造は保たれているが、固化体の中で溶解再沈殿が生じていることを示唆している。同時に、固化体を作製する際にLDHと混和することから、LDHは比較的高いSi活量を示す溶液と触れることとなる。よって、LDHの層間に存在していた炭酸塩イオンは、ケイ酸塩イオンに置換している可能性が考えられ、ジオポリマー中のLDHの陰イオン核種保持性を検討する際には、ケイ酸イオンと陰イオン核種の競合を検討する必要性が示された。

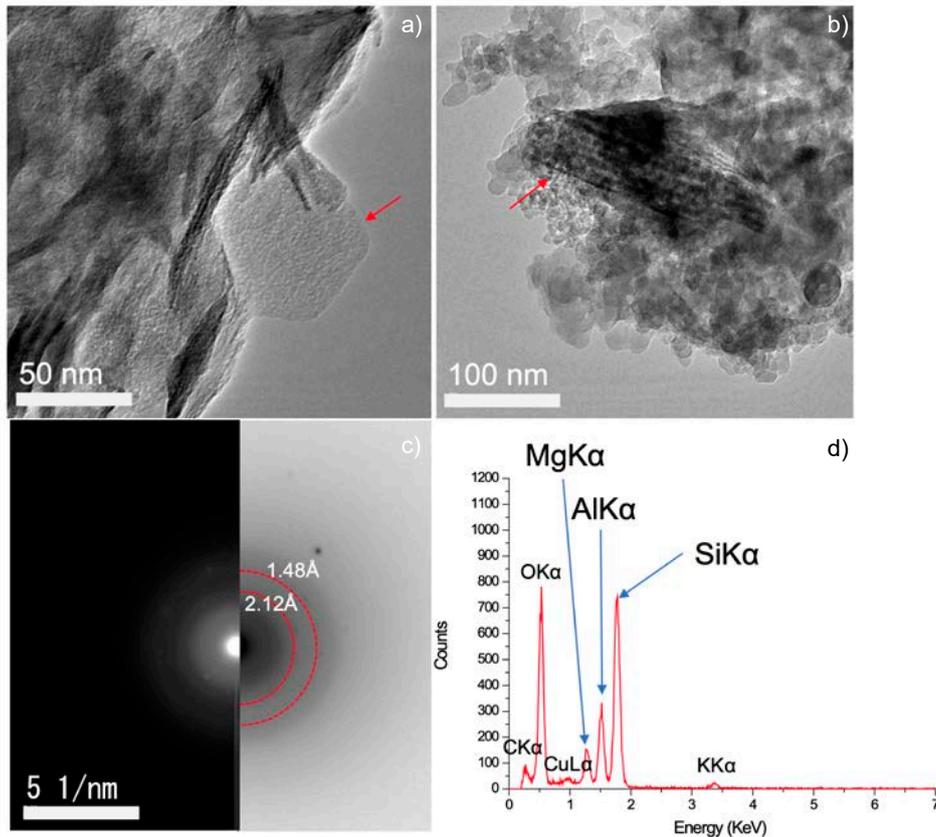


図 3.1-13 合成試験により得られた LDH の TEM 像 (a)  
 およびジオポリマーに混和した後の LDH の透過電子像 (b)  
 (c) は (b) 上に赤い矢印で示されたエリアの電子線回折像、  
 (d) は同エリアの EDS 結果を示す。

最後に、MgO 添加系固化体 (MgO-GP) のリーチング後に、LDH は生成されず、M-S-H が生成した理由について考察する。安定相図は、図 3.1-12 同様、The Geochemist's Workbench を用いて作成されている。データベースは、フランス地質調査所から出版されている Thermoddem に対し、M-S-H (Nied et al., 2016)<sup>3</sup> および LDH (長谷, 2018)<sup>5</sup> の熱力学データを付加して使用した。図 3.1-14 に、M-S-H および Mg-Al-Si 型 LDH の安定相図を示す。M-S-H および LDH の安定領域を一つのプロットに重ね合わせて表示している。LDH は M-S-H と比較して安定領域が広い。また、M-S-H と LDH の生成を考慮した安定相図を作成すると、LDH のみ表示され、熱力学的平衡論的に考えると、LDH の方が M-S-H よりも優先的に生成することが考えられる。しかし、リーチング試験結果からは、M-S-H の生成のみ認められている (図 3.1-9b)。これは、ある鉱物の過飽和度が高いと、不安定な準安定相から生成する現象により説明できると考えている。

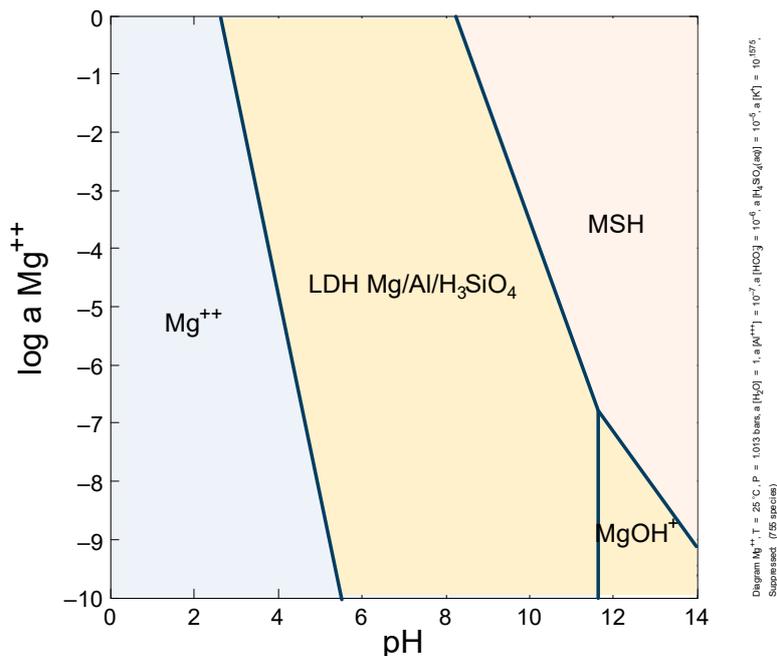


図 3.1-14 Mg-Al-SiO<sub>4</sub>型 LDH および M-S-H の溶解度曲線

本年度の実験結果および考察より、実施の鉄殿物を固化する場合には、鉄殿物中のヨウ化物イオン濃度に対し、熱力学的・化学量論的に適切な銀イオン量を固化体中に添加することで、コストと安全性を最適化した処分方法を実施できるのではないかと提案する。

来年度においては、MgO 添加系、LDH 添加系が I<sup>-</sup>保持性を示さなかった原因の解明および、MgO 添加系に対する IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の浸出試験、および IO<sub>3</sub><sup>-</sup>を用いた浸出実験から得られた固体の分析を通し、I<sup>-</sup>と化学種の異なる IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の模擬固化体中での挙動の解明に着手する。

参考文献

- 1) J. L. Provis, S. A. Bernal, “Geopolymers and Related Alkali-Activated Materials”, Annual Review of Materials Research, 44, pp.299-327 (2014).
- 2) J. E. Kenny, K. E. Johnson, W. Sharfin, D. H. Levy, “The photodissociation of van der Waals molecules: Complexes of iodine, neon, and helium”, The Journal of Chemical Physics, 72, pp.1109-1119 (1980).
- 3) D. Nied, K. Enemark-rasmussen, E. L. Hopital, J. Skibsted, B. Lothenbach, “Properties of magnesium silicate hydrates (M-S-H)”, Cement and Concrete Research, 79, pp.323-332 (2016).
- 4) E. Bernard, B. Lothenbach, C. Chlique, M. Wyrzykowski, A. Dauzères, I. Pochard, C. Cau-Dit-Coumes, “Characterization of magnesium silicate hydrate (M-S-H)”, Cement and Concrete Research, 116, pp.309-330 (2019).
- 5) 長谷東子, 「層状複水酸化物の環境浄化への利用と生成後の変質挙動」, 学位論文(博士), 甲第 13223 号, 北海道大学大学院工学院 (2018).

### 3.2. 試験体の物性試験と評価（連携先：JAEA）

#### 3.2.1. 物性試験の目的と方法

##### (1) 目的

本研究は、放射性廃棄物の中でも鉄殿物を検討対象とし、安全な保管と処分を可能とする高い陰イオン核種保持性や流動性を有するアルカリ刺激材料（以下、「AAM」と略す）とそのレシピを探索することで、多様な性状や核種組成を含む廃棄物固化に対する AAM のポテンシャルを示すことを目的として実施されている。流動性や陰イオン核種保持性能が良いレシピを探索する過程では、様々な試験を行い、組成や配合を検討することになるが、実際の廃棄物処理への適用可能性も重要な判断ポイントになる。実際の廃棄物処理においては、作業性の面から AAM ペーストの流動性や硬化時間を把握する必要があり、また廃棄体保管時には物理的強度と長期安定性を考慮する必要がある。AAM 固化材料とそれにより得られる固化体の基礎物性を調査し知見を蓄積することは、レシピの最適化において重要な要素となる。

そのため、本研究において提案された K 系 AAM の模擬廃棄物を含まない試験体を作製し、物性試験を実施した。K 系 AAM のペースト状態における廃棄物固化の実作業に対するポテンシャルを確認するため、粘度変化測定および凝結試験機を用いた硬化特性時間の測定を行った。K 系 AAM の固化体としての性能を確認するため、圧縮強度測定および照射施設を用いた  $\gamma$  線照射試験を行った。また、得られた物性データについて、他の固化材料（Na 系 AAM、普通ポルトランドセメント（以下、「OPC」と略す））との比較を行った。

##### (2) AAM 固化体の材料

AAM 固化体は、粉体材料のメタカオリンとアルカリ活性剤を混練させることで作製する。メタカオリンは、ソブエクレ株式会社製のメタカオリン（ソブエクレ）および IMERYS 社製のメタカオリンである Metastar®501（Metastar501）を用いた。アルカリ活性剤は、本研究において提案された配合条件を使用し、ケイ酸カリウム溶液、純水および水酸化カリウムを用いて、モル比が  $K_2O:SiO_2:H_2O = 1:1:13$  となるよう調製した（表 3.2-1）。AAM 混練におけるメタカオリンとアルカリ活性剤についても、提案された配合条件を使用した（表 3.2-2）。

表 3.2-1 アルカリ活性剤の調製に用いる試薬の重量比 [g]

配合比	ケイ酸カリウム溶液	水酸化カリウム	純水
$K_2O:SiO_2:H_2O = 1:1:13$	10.0	2.82	5.99

表 3.2-2 AAM 作製時のメタカオリンとアルカリ活性剤の重量比 [g]

メタカオリン	アルカリ活性剤
5	6.82

AAM 固化体の粉体材料であるメタカオリンの蛍光 X 線分析（XRF）により得られた化学組成を表 3.2-3 に示す。ソブエクレはソブエクレ株式会社、Metastar501 は北大が測定したデータである。

表 3.2-3 XRF により測定されたメタカオリンの組成

	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	K <sub>2</sub> O
ソブエクレール	51.25	45.82	1.19	0.58	0.23	0.15
Metastar501	52.54	44.80	0.97	0.50	0.03	0.20

### (3) AAM 固化体の作製方法

本研究において、AAM 固化体は JIS A 1138 「試験室におけるコンクリートの作り方」、JIS-R-5201 「セメントの物理試験方法」に基づいた手順に従って作製した。

#### ① 材料の準備

AAM 固化体の材料であるメタカオリンおよびアルカリ活性剤は、3.2.1(2)に示す配合条件で計量、調製を行った。材料は、混練を行う前に 20±3 °C に保つため、温度制御下において一昼夜静置した。

#### ② 固化体の作製

AAM 固化体の作製には、JIS R 5201 「セメントの物理試験方法」に基づいた機械練り用練混ぜ機、手練り用練混ぜ器具を用いた。AAM の混練は温度 20±1 °C、湿度 60 % 以上に制御された実験室内で実施した。AAM の混練は以下の手順で実施した。

- (ア) 粉体材料にアルカリ活性剤を注水(注水した時間を混練開始時刻とした)
- (イ) ダマが粗方なくなるまで手練り
- (ウ) 速度を低速にして 30 秒間機械練り
- (エ) 120 秒間ペーストのかき落としと練り返し
- (オ) 速度を低速にして 90 秒間機械練り
- (カ) ペーストの練り返しを 10 回

#### ③ 固化体の養生

練り上がったペーストは、JIS A 5308 に準拠した型枠 (φ50×100 mm 円柱) に注入、余剰分を平滑化させ、乾燥による割れを防ぐため、表面をパラフィルムで養生した。また AAM のペーストを型枠ごと、水を 1 cm 程度張ったタッパーに入れ、温度 20 °C の環境下で所定の期間まで封緘養生した。

### (4) 試験項目

#### ① 振動式粘度計を用いた粘度変化

ペーストの粘度変化は、廃棄物の固化を行う実作業における作業性に関係しており、ペーストの粘度が低く、流動性が高いことは作業効率の向上に繋がり、粘度が増加し流動性が低下するまでの時間は作業可能な時間に影響するとされている。そのため、本研究で提案された配合により作製された AAM ペーストの粘度変化を確認する目的で測定を行った。

粘度変化は、音叉型の振動式粘度計を用いて測定した。本粘度計の測定範囲は 0.3 から 10000 mPa・s までとなっており、ペーストの粘度変化を連続で測定可能である。

## ② 凝結試験機を用いた硬化特性時間

硬化特性時間は、廃棄物の固化を行う実作業において、ペーストが硬化するまでの実作業可能な時間に関係するとされている。ペーストの硬化特性時間の測定方法は、日本工業規格において凝結試験による凝結の始発時間および終結時間を測定する方法が定められている（JIS R 5201）。そのため、本研究で提案された配合により作製された K 系 AAM の硬化特性時間を確認する目的で凝結試験を行った。

凝結時間測定は、JIS R 5201「セメントの物理試験方法」に準拠した自動凝結試験装置を用いて測定した。

## ③ 圧縮強度

放射性廃棄物の安全な保管と処分を実施するためには、固化体の強度が必要不可欠であり、圧縮強度には、練り混ぜ手順、材料の配合および養生期間等が影響するとされている（原子力規制庁, 2014）<sup>1</sup>。本研究で提案された練り混ぜ手順および配合を用いた AAM 固化体において、適切な圧縮強度が得られるか確認するため、一軸圧縮強度試験を実施した。

圧縮強度は、JIS A 1108「コンクリートの圧縮強度試験方法」に準拠したモルタル全自動圧縮試験機を用いて測定した。また圧縮強度試験の試験体は、JIS A 1132「コンクリートの強度試験用供試体の作り方」に準拠した研磨機を用いて固化体表面の研磨を行った。

## ④ $\gamma$ 線照射による水素発生量

放射性廃棄物の固化処理を行う場合、放射性廃棄物から発せられる放射線により、固化体が含有する水分が放射線分解され、水素ガスが発生するとされている（大野新一, 1980）<sup>2</sup>。水素ガスが滞留すると、燃焼や爆発の危険性があり、水素ガス発生量の把握は放射性廃棄物の安全な保管や処分を行ううえで重要である。そのため、本研究で提案された配合により作製された AAM 固化体の水素ガス発生量を確認する目的で  $\gamma$ 線照射試験を行った。

$\gamma$ 線照射試験は、量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所で実施した。照射条件は、線量率が 3 kGy/h、積算線量は 3 kGy であり、水素ガス量の測定には、ガスクロマトグラフを用いた。

### 3.2.2. K系の試験結果

#### (1) 振動式粘度計を用いた粘度変化

##### ① 試験方法

ペーストの粘度変化は、音叉型振動式粘度計（エー・アンド・デイ製、SV-10）を用いて測定した。測定は、作製した AAM のペーストをサンプル容器（容量：10 mL）に入れて行った。測定原理は、センサ部となる振動子をペーストに浸け、ペースト中で振動子を共振させることで、振動子を一定振幅で動かすために必要となる加振力から粘度を測定する。

測定条件として、循環式温調機（トーマス科学器械製、TRL-108H）により 20 °C に調節されたジャケットにサンプル容器を設置し、粘度測定を行った。

##### ② 試験結果

ソブエクレー、Metastar501 を用いて作製した AAM ペーストの粘度変化を図 3.2-1 に示す。縦軸は振動式粘度計により測定した粘度、横軸は混錬開始時刻からの経過時間を表す。K 系 AAM の粘度変化として、混錬開始から約 200 分まで緩やかな粘度上昇があり、その後急激に粘度が上昇する傾向が確認された。メタカオリンの種類によって、粘度が急激に上昇するまでの経過時間に差が生じた。

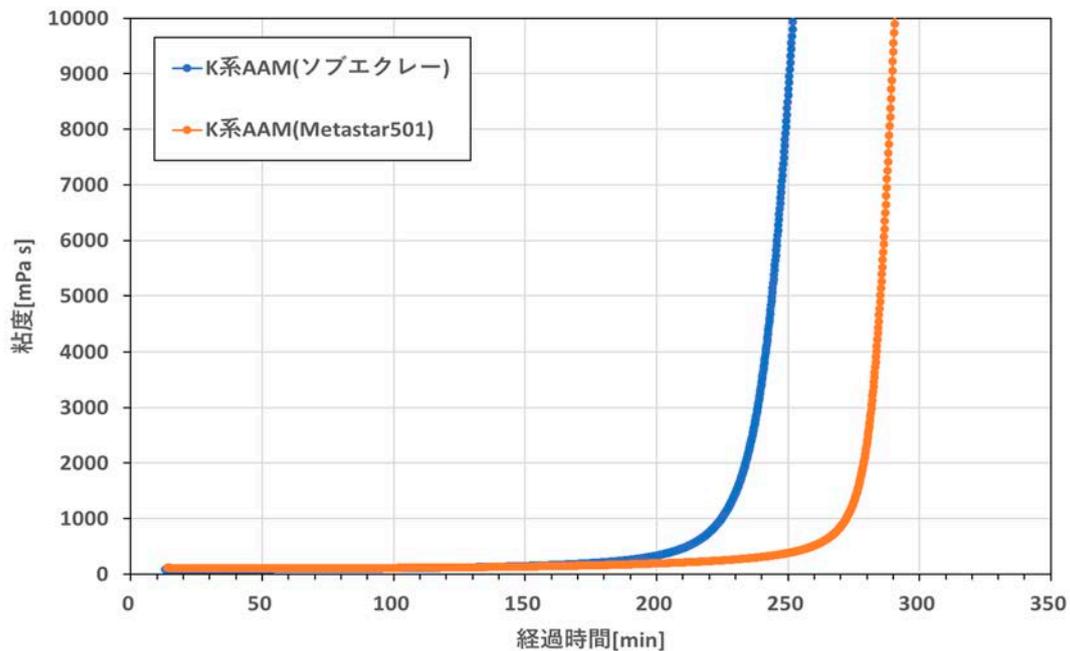


図 3.2-1 K 系 AAM ペーストの粘度変化

##### ③ 試験結果の分析と考察

K 系 AAM ペーストの混錬後初期における緩やかな粘度上昇について分析するため、混錬開始から 150 分までの粘度変化を図 3.2-2 に示す。初期の粘度は、ソブエクレーより Metastar501 が大きいことが確認された。その後、約 130 分経過時にソブエクレーの粘度が Metastar501 より大きくなっている。

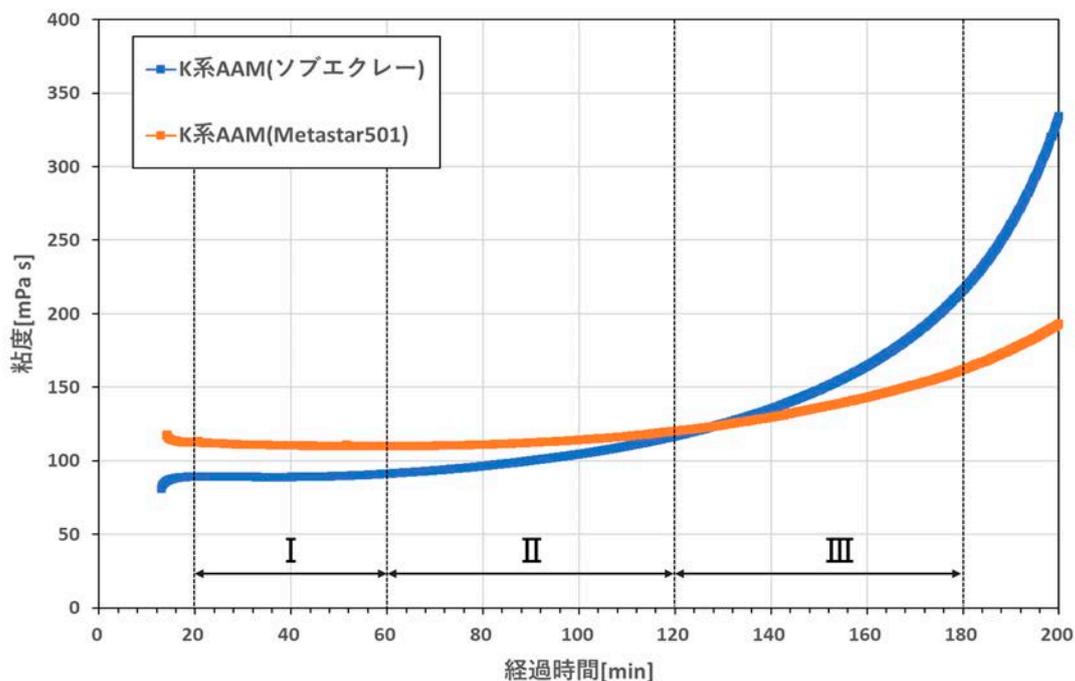


図 3.2-2 混練後の初期における K 系 AAM ペーストの粘度変化の比較

図 3.2-2 の粘度変化に対して、経過時間ごとに I から III の範囲を設定する。20 から 60 分までを I、60 から 120 分までを II、120 から 180 分までを III とし、それぞれの範囲における粘度変化の傾きを表 3.2-4 に示す。粘度変化の傾きを比較すると、ソブエクレイは I では傾きが 0.1 以下でほとんど変化していない。II では傾きが 0.43、III では 1.66 となり、粘度の変化量が徐々に増加していることが確認された。Metastar501 についても、I では粘度がほとんど変化せず、II では傾きが 0.17、III では 0.70 と、徐々に粘度の変化量が増加しているが、ソブエクレイと比較して変化量が小さい。そのため、初期の粘度は Metastar501 のほうがソブエクレイより大きかったが、120 分経過時においてソブエクレイのほうがより粘度が大きくなった。

表 3.2-4 K 系 AAM ペーストの粘度変化の傾き

範囲	経過時間 [min]	K 系 AAM (ソブエクレイ)	K 系 AAM (Metastar501)
I	20-60	0.05	-0.07
II	60-120	0.43	0.17
III	120-180	1.66	0.70

ソブエクレイ、Metastar501 を用いた K 系 AAM ペーストの初期粘度と変化量に差異が確認された。アルカリ活性剤や混練手順は同条件であるため、粉体材料の物性の違いによる影響が考えられる。そこで、物性を調べるために粉体材料であるソブエクレイおよび Metastar501 の粒径分布を測定した。測定条件として、測定基準は体積基準を設定し、分散媒は 2-プロパノールを用いた。

粒径分布測定で得られた結果を表 3.2-5 に示す。また粒径の頻度分布を図 3.2-3、累積分布を図 3.2-4 に示す。ソブエクレーおよび Metastar501 の粒径について、平均径は Metastar501 よりソブエクレーが大きく、一方で最頻径は Metastar501 がソブエクレーより大きいことが確認された。頻度分布から、ソブエクレーおよび Metastar501 とともに 0.1-1  $\mu\text{m}$ 、1-20  $\mu\text{m}$  の範囲において粒径分布のピークが確認され、また最小で約 0.1  $\mu\text{m}$ 、最大で約 200  $\mu\text{m}$  までの粒径が存在することが確認された。累積分布から、頻度分布より得られた粒径の範囲で分けると、ソブエクレーでは、1  $\mu\text{m}$  以下で約 40 %、1-20  $\mu\text{m}$  で約 30 %、20  $\mu\text{m}$  以上で約 30 %分布し、Metastar501 では、1  $\mu\text{m}$  以下で約 25 %、1-20  $\mu\text{m}$  で約 65 %、20  $\mu\text{m}$  以上で約 10 %の分布が確認された。

表 3.2-5 ソブエクレーおよび Metastar501 の粒径

	平均径 [ $\mu\text{m}$ ]	中央径 [ $\mu\text{m}$ ]	最頻径 [ $\mu\text{m}$ ]
ソブエクレー	19.33	4.58	0.21
Metastar501	14.73	5.51	5.50

セメントペーストでは、11  $\mu\text{m}$  以下の微粒子が少ないほど、または 31  $\mu\text{m}$  以上の粗粒子が多いほど見かけ粘度は低くなり、流動性が向上するとの報告がある（名和ほか, 1991）<sup>3</sup>。これを参考とすると、累積分布から、ソブエクレーでは、11  $\mu\text{m}$  以下が約 65 %分布し、Metastar501 では、11  $\mu\text{m}$  以下で約 85 %の分布が確認された。そのため、ソブエクレーの初期粘度が低くなる要因として、11  $\mu\text{m}$  以下の微粒子分布が影響していると考えられる。

ソブエクレーが Metastar501 より粘度の変化量が大きい要因としては、粒径分布による影響が考えられる。最頻径が Metastar501 は 5.50  $\mu\text{m}$ 、ソブエクレーは 0.21  $\mu\text{m}$  であるため、K 系 AAM ペーストの単位体積あたりのメタカオリンの表面積は、微小な粒子の多いソブエクレーのほうが多くなると考えられる。そのため、メタカオリンとアルカリ活性剤の反応が進み、粘度がより早く上昇したと考えられる。

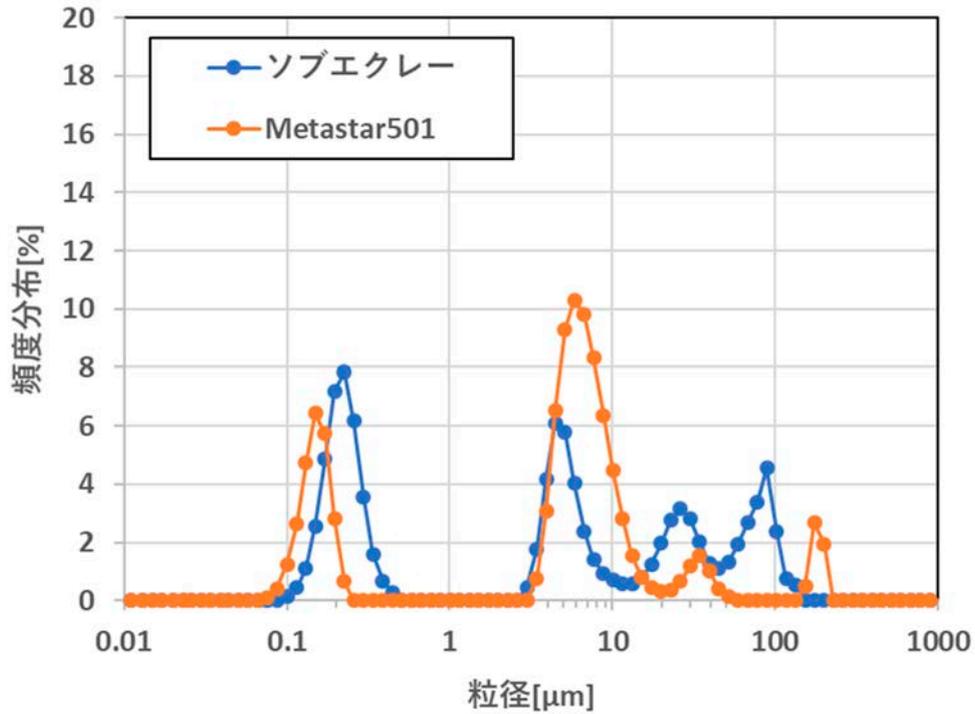


図 3.2-3 ソブエクレーおよびMetastar501 の粒径頻度分布

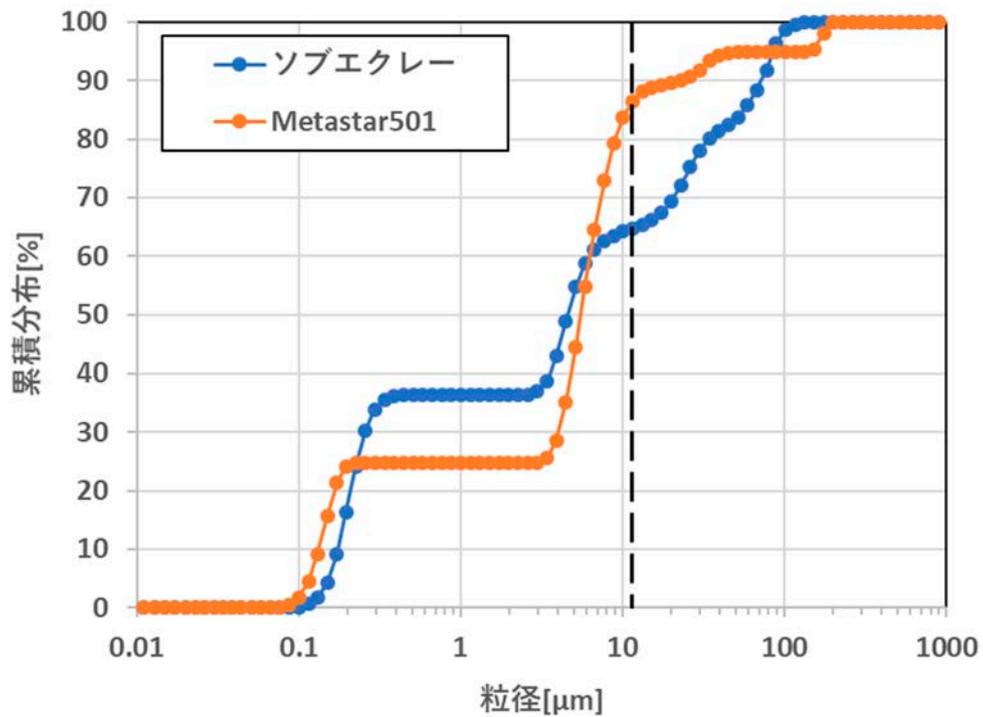


図 3.2-4 ソブエクレーおよびMetastar501 の粒径累積分布

K 系 AAM ペーストの混錬から約 200 分後における急激な粘度上昇について分析するため、混錬開始から 150 分以降の粘度変化を図 3.2-5 に示す。粘度の急激な上昇は、ソブエクレー、Metastar501 とともに確認された。粘度は 1000 mPa・s を超えてから、約 30 分で粘度計の測定上

限值である 10000 mPa・s に達した。粘度 2000 mPa・s を超えてから、Metastar501 がソブエクレールと同じ粘度に達するまで、約 40 分の差があることが確認された。

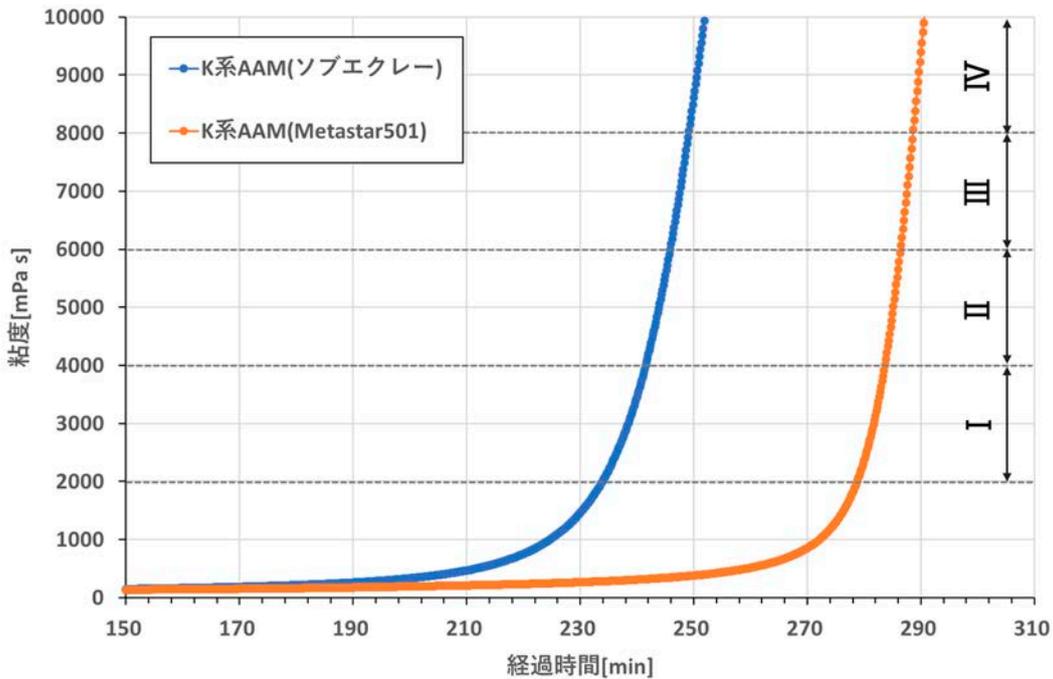


図 3.2-5 K 系 AAM ペーストの粘度立ち上がり後の比較

図 3.2-5 において、粘度 2000 mPa・s ごとの範囲を I から IV と表す。この範囲における粘度変化の傾きを表 3.2-6 に示す。傾きは、粘度立ち上がり後においてもソブエクレール、Metastar501 ともに増加傾向にあり、粘度の立ち上がり前では 1.0 前後であったのに対し、200 から 1000 倍に急激に増加している。

表 3.2-6 K 系 AAM ペーストの粘度立ち上がり後の傾き

	粘度範囲 [mPa・s]	K 系 AAM (ソブエクレール)	K 系 AAM (Metastar501)
I	4000-2000	260.9	413.8
II	6000-4000	461.5	705.9
III	8000-6000	631.6	923.1
IV	10000-8000	705.9	1000.0

粘度の急激な上昇について、ソブエクレールが早く生じた原因としては、初期の状態における粘度変化と同様に粒径分布による影響が考えられる。微小粒子が多いソブエクレールは、K 系 AAM ペーストの単位体積あたりのメタカオリンの表面積が大きい。そのため、メタカオリンとアルカリ活性剤の反応が進み、粘度がより早く上昇したと考えられる。

(2) 凝結試験機を用いた硬化特性時間

① 試験方法

JIS R 5201「セメントの物理試験方法」に準拠した自動凝結試験装置を用いて、AAMペーストの凝結時間を測定した。測定方法は、作製したAAMペーストをペースト容器に注入し、AAMペーストに対して自動凝結試験装置の凝結針を10分間隔で降下させる。AAMペーストが硬化することによって、凝結針が降下する位置が変化する。降下させた凝結針の先端が、ペースト容器の底板の上面から1 mmの位置で止まるときを凝結の始発、底板の上面から38 mm以上の位置に3回連続で止まるときの最初の降下を凝結の終結とし、その時間を測定する。混練開始からの経過時間をもって、それぞれ始発時間および終結時間とする。

② 試験結果

ソブエクレー、Metastar501を用いて作製したAAMペーストの始発時間および終結時間の測定結果を表3.2-7、図3.2-6に示す。縦軸は混練開始時刻からの経過時間を表す。始発時間および終結時間は、得られた測定値の平均を示しており、エラーバーは得られた最大値および最小値を示す。始発時間は、2種類とも約180分であり、終結時間は約200分であった。ソブエクレー、Metastar501を用いて作製したAAMペーストの始発時間および終結時間に差異は確認されなかった。

表 3.2-7 K系 AAM ペーストの凝結時間

	K系 AAM (ソブエクレー)	K系 AAM (Metastar501)
n 数	n=8	n=4
始発時間 [min]	178	184
終結時間 [min]	202	207
始発と終結の差 [min]	24	24

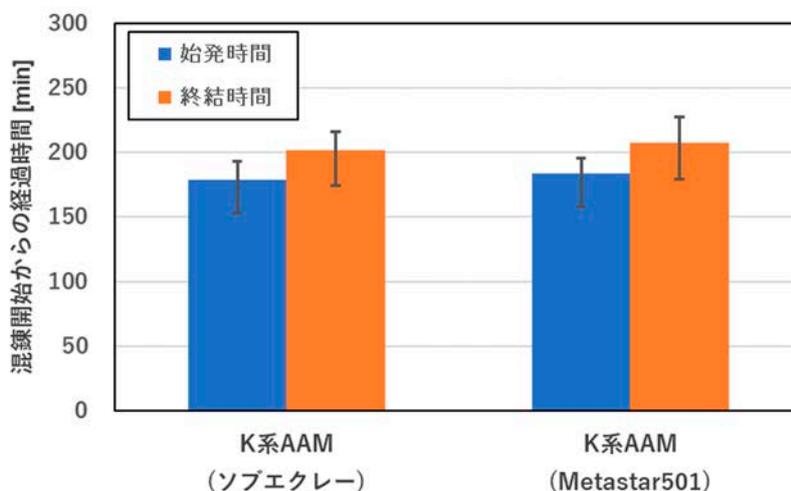


図 3.2-6 K系 AAM ペーストの始発時間および終結時間の比較

(3) 圧縮強度

① 試験方法

圧縮強度は、JIS A 1108「コンクリートの圧縮強度試験方法」に準拠したモルタル全自動圧縮試験機（マルイ製、ハイアクティス-200L）を用いて、AAM 固化体の圧縮強度を測定した。また圧縮強度試験の前準備として、AAM 固化体を試験当日に脱型し、JIS-A-1132「コンクリートの強度試験用供試体の作り方」に準拠した研磨機（マルイ製、MIC-196-1-30）を用いて固化体表面の研磨を行った。AAM 固化体は、3.2.1(3)の手順に基づいて混練した AAM ペーストをφ50×100 mm の型枠に注入し、所定の材齢となるまで 20 °C で養生を行ったものを使用した。試験は n = 5 で実施し、試験結果はばらつきの大きい値を除却した n = 3 を用いた。

② 試験結果

材齢 7、14、28 日における K 系 AAM 固化体の圧縮強度試験の結果を図 3.2-7 に示す。ソブエクレレーを用いた K 系 AAM 固化体の圧縮強度は、材齢 7 日体で約 45 MPa であり、材齢 28 日体で約 50 MPa となった。Metastar501 を用いた K 系 AAM 固化体の圧縮強度は、材齢 7 日体および 28 日体で約 20 MPa であり、一方で材齢 14 日体では約 40 MPa となった。

ソブエクレレーでは、3 つの材齢条件において安定した結果が得られたことから、ソブエクレレーの圧縮強度は約 50 MPa であることが確認された。また材齢 7 日体で 28 日体の約 94 % の強度が得られており、強度発現が早いことも確認された。一方で Metastar501 では、3 つの材齢条件において圧縮強度にばらつきが確認された。そのため、再度サンプル数を増やして圧縮強度試験を行い、適切な圧縮強度を確認する必要がある。

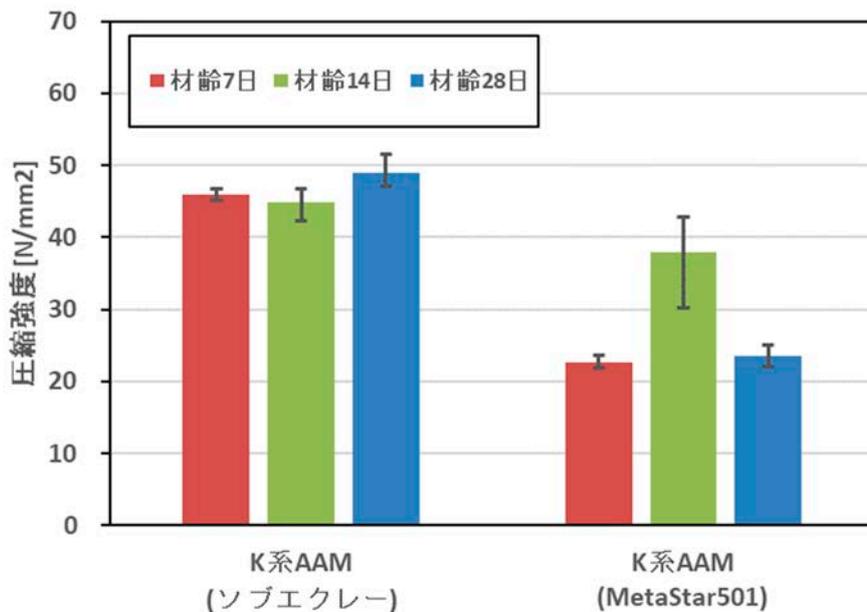


図 3.2-7 K 系 AAM の圧縮強度

(4)  $\gamma$ 線照射試験による水素発生量

① 試験方法

高崎量子応用研究所において、AAM 固化体を SUS 製密封容器に封入して $\gamma$ 線照射を行い、発生した水素ガス量をガスクロマトグラフ（島津製作所製、GC-2014）により測定した。照射試験は AAM 固化体を 6 サンプル（Metastar501：3 体、ソブエクレレー：3 体）と、ブランク測定用に密封容器を 2 体の計 8 サンプルに対して行った。照射条件として、線量率が 3 kGy/h、積算線量は 3 kGy となる位置に密封容器を設置した。また PMMA 線量計（radix-W）を用いて、積算線量を測定した。線量計は、線源に対して密封容器の前側と後側の 2 カ所に設置した。

AAM 固化体は、ソブエクレレーおよび Metastar501 の 2 配合を n = 3 で作製し、20 °C で封緘養生した材齢 28 日体を用いた。AAM 固化体の脱型および容器への封入は照射試験の前日に行った。

② 試験結果

線量計を用いて測定した $\gamma$ 線照射による積算線量を表 3.2-8 に示す。密封容器の前後に貼った線量計から得られた吸収線量を平均し、AAM 固化体の積算線量とした。その結果、AAM 固化体に対する積算線量が、想定した約 3 kGy であることが確認された。

表 3.2-8 線量計により測定した積算線量

セル No.	材料	設置位置	吸収線量 [kGy]	積算線量 [kGy] (平均)
1	Metastar501	前側	3.3	2.7
		後側	2.1	
2	Metastar501	前側	3.4	2.7
		後側	1.9	
3	Metastar501	前側	3.7	2.9
		後側	2.0	
4	ブランク	前側	3.5	2.8
		後側	2.0	
5	ソブエクレレー	前側	3.5	2.8
		後側	2.0	
6	ソブエクレレー	前側	4.1	3.3
		後側	2.5	
7	ソブエクレレー	前側	4.1	3.3
		後側	2.4	
8	ブランク	前側	4.0	3.4
		後側	2.7	

γ線照射前後の AAM 固化体の外観を表 3.2-9 に示す。上側が照射前、下側が照射後、左（セル No. 1）が Metastar501、右（セル No. 5）がソブエクレレーである。積算線量 3 kGy の照射によって AAM 固化体の外観に変化は確認されなかった。

表 3.2-9 照射前（上）と照射後（下）の AAM 固化体の外観

	Metastar501	ソブエクレレー
照射前		
照射後		

ガスクロマトグラフを用いて測定した水素ガス発生量を表 3.2-10 に示す。水素ガス発生量は、ソブエクレレーを用いた K 系 AAM 固化体で約 5100 ppm、Metastar501 を用いた K 系 AAM 固化体で約 2500 ppm であった。ソブエクレレーの水素ガス発生量は Metastar501 と比べ、約 2 倍となることが確認された。

またソブエクレレーおよび Metastar501 を用いた各配合の AAM 固化体における水素ガス発生量を評価するため、G 値 (H<sub>2</sub>) を算出した。G 値は、物質がエネルギーを吸収した場合における 100 eV あたりの生成分子数を表しており、廃棄物処理に適用する固化材料としては、G 値は低いほうが望ましい。結果として、ソブエクレレーを用いた K 系 AAM 固化体では 0.30、Metastar501 を用いた K 系 AAM 固化体では 0.16 となり、メタカオリンの種類によって水素ガス発生量に差異が生じることが確認された。メタカオリンの種類によって、固化体の構造が異なり、水素の発生源となる自由水量が変動することが予想される。

表 3.2-10  $\gamma$ 線照射による水素ガス発生量

	積算線量 [kGy]	水素ガス発生量 [ppm]	水素ガス発生量 [ $\mu\text{mol}$ ]	G 値
K 系 AAM (ソブエクレール)	2.75	4972	31.0	0.32
	3.30	5349	33.5	0.29
	3.25	5024	31.4	0.27
K 系 AAM (Metastar501)	2.70	2332	14.6	0.16
	2.65	2478	15.5	0.17
	2.85	2635	16.4	0.16

3.2.3. 他の固化材料との比較\*

K系 AAM の特性を確認するため、他の固化材料との比較を行った。比較に用いた固化材料は、メタカオリンと Na 系のアルカリ活性剤を用いて作製した Na 系 AAM、OPC を用いて作製したセメント固化体である。メタカオリンとアルカリ活性剤の配合比を表 3.2-11 に、混練に使用したアルカリ活性剤のモル比を表 3.2-12 に示す。また、作製した固化体の水粉体比の比較を表 3.2-13 に示す。Na 系 AAM のメタカオリンは、BASF 社製の METAMAX®を用いた。

表 3.2-11 AAM の材料配合比 (重量比)

	アルカリ活性剤	粉体材料 (メタカオリン)
K 系 AAM	1	0.73
Na 系 AAM	1	0.43

表 3.2-12 アルカリ活性剤のモル比

	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SiO <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O
K 系 AAM	1	-	1	13
Na 系 AAM	-	1	1	13

表 3.2-13 固化体の水粉体比

	H <sub>2</sub> O/粉体
K 系 AAM	1.19
Na 系 AAM	1.50
OPC	0.45

(1) 振動式粘度計を用いた粘度変化

K系およびNa系 AAM のペースト状態における粘度変化の比較を図 3.2-8 に示す。K系 AAM は Na 系 AAM と比べ、急激な粘度上昇が生じるまでの時間が早く、急激な粘度上昇が生じた後の時間あたりの粘度増加量も大きくなる傾向が確認された。

ペーストの粘度変化には、ペースト中の粒子の濃度、粉体材料の粒径分布や粒子形状による影響が考えられる。K系 AAM と Na 系 AAM では、粉体材料とアルカリ活性剤の配合比が異なり、K系 AAM のほうがアルカリ活性剤に対する粉体材料の割合が高い。そのため、ペースト中の粒子濃度が高くなり、粘度上昇がより早く、急激に生じたと考えられる。

混練後初期の状態における緩やかな粘度変化について分析するため、混練開始から 200 分までの粘度変化およびそれぞれの混練に用いたアルカリ活性剤の粘度を図 3.2-9 に示す。初期の状態における粘度は、K系 AAM は Na 系 AAM に比べ低いことが確認された。また、混練に用いたアルカ

\* 平成 30 年度補正予算「廃炉・汚染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）」によって取得した Na 系 AAM および OPC のデータと比較を行った。

リ活性剤の粘度は、K系が約 24 mPa・s、Na系が約 1600 mPa・s と K系は Na系に比べはるかに低いことが確認された。

初期の状態におけるペーストの粘度は、ペースト中の粒子濃度、粉体材料の粒径分布や粒子形状のほかに、液体材料の元々の粘度による影響が考えられる。K系 AAM ペーストは、Na系 AAM よりアルカリ活性剤に対する粉体材料の割合が高く、ペースト中の粒子濃度は高いが、アルカリ活性剤の粘度が Na系と比べ約 0.015 倍とはるかに低いため、初期の状態における粘度が低くなったと考えられる。

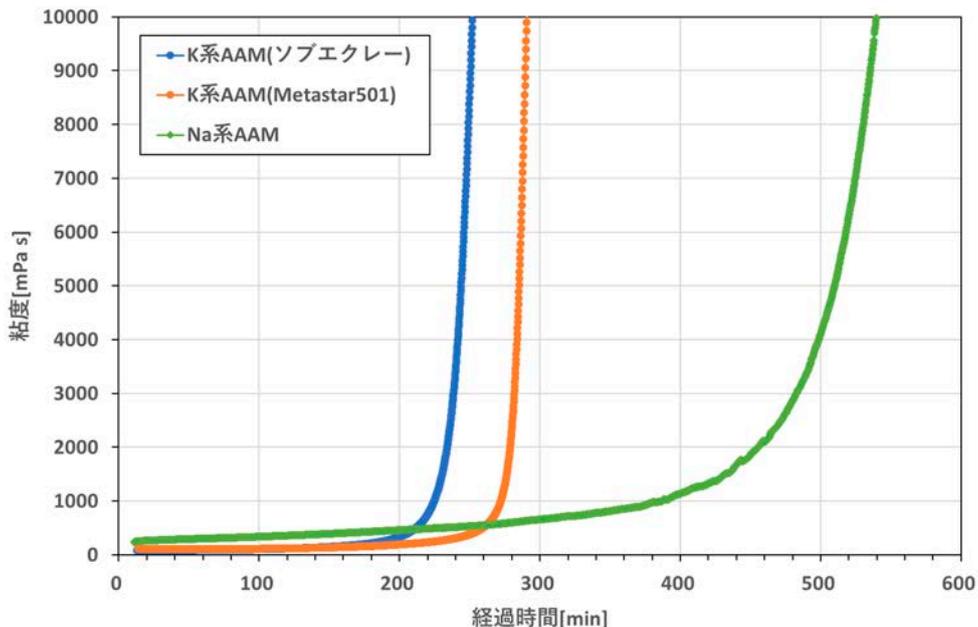


図 3.2-8 K系およびNa系 AAM ペーストの粘度変化

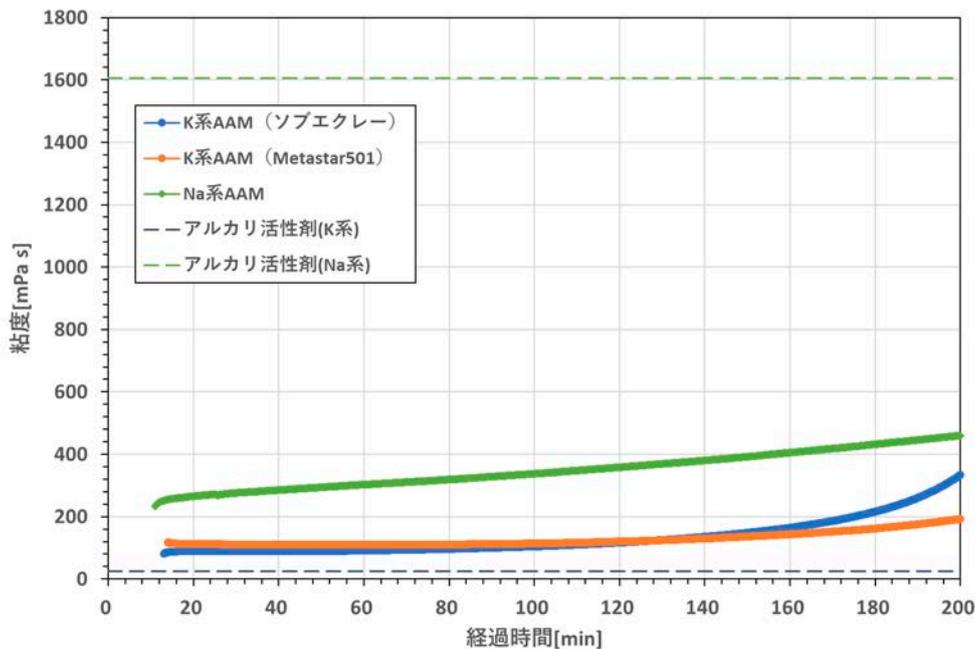


図 3.2-9 K系およびNa系 AAM とアルカリ活性剤の粘度の比較

(2) 凝結試験機を用いた硬化特性時間

K系AAM、Na系AAMおよびOPCのペーストの始発時間および終結時間の測定結果を図3.2-10に示す。縦軸は混練開始時刻からの経過時間を表す。始発時間および終結時間は、得られた測定値の平均を示しており、エラーバーは得られた最大値および最小値を示す。K系AAMは、Na系AAM、OPCより、始発時間および終結時間が早くなるという結果が得られた。また、ペーストが始発とってから終結となるまでの時間も短く、早く硬化する傾向が確認された。

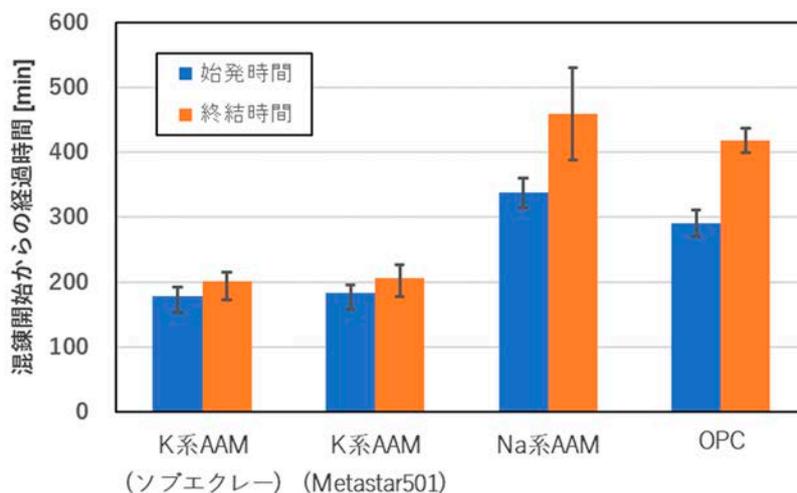


図 3.2-10 K系AAM と他の固化材料との凝結時間の比較

(3) 圧縮強度

材齢 28 日における K系AAM、Na系AAMおよびOPC 固化体の圧縮強度試験の結果を図3.2-11に示す。いずれの固化体についても、φ50×100 mm 型枠を用いて、20℃で封緘養生した材齢 28 日体を用いた。ソブエクレールを用いた K系AAM 固化体の圧縮強度は、約 50 MPa となった。圧縮強度は Na系AAM < K系AAM (ソブエクレール) < OPC 固化体の順に大きい値となり、他の固化材料を用いた固化体と同程度の圧縮強度を有することが確認された。一方で、Metastar501 を用いた K系AAM 固化体については、他の固化材料と比較して圧縮強度が低いことが確認された。

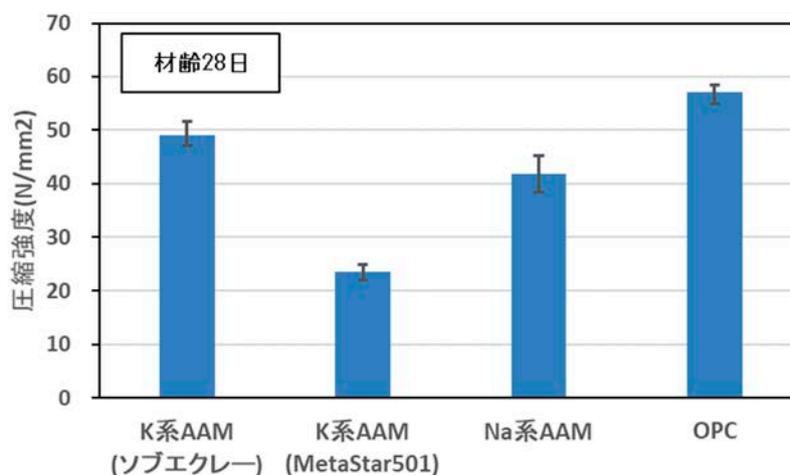


図 3.2-11 K系AAM と他の固化材料との圧縮強度の比較

(4)  $\gamma$ 線照射試験による水素発生量

$\gamma$ 線照射による K 系 AAM、Na 系 AAM および OPC 固化体の水素発生量について、ガスクロマトグラフを用いて測定した結果を表 3.2-14 に示す。また水素ガス発生量から算出した水素発生量の G 値の比較を図 3.2-12 に示す。材料の水粉体比は、表 3.2-13 に示すとおり OPC < K 系 AAM < Na 系 AAM の順に大きい値である。K 系 AAM は、Na 系 AAM と比べ水粉体比が低いですが、G 値は高くなった。結果として、K 系 AAM は他の固化材料より水素ガス発生量および G 値が大きくなる傾向が確認された。

水素ガス発生量の傾向には、固化体中の自由水量が寄与していると考えられる。放射線分解によってセメント水和物試料から発生する水素ガスの主要な発生源は自由水であり、構造水からは放射線分解によって水素が発生しないことが報告されている（高橋・藤田，2013）<sup>4</sup>。さらに K 系 AAM の特性として自由水量が多くなることが考えられ、結果として水素ガス発生量および G 値が他の固化材料と比べ大きくなったと考えられる。G 値が高くなると、廃棄物の長期保管における水素発生リスクが高まるため、固化体中の自由水量を測定し、水素ガス発生量の低減に向けた検討が必要である。

表 3.2-14  $\gamma$ 線照射による K 系 AAM と他の固化材料との水素ガス発生量の比較

	積算線量 [kGy]	水素ガス発生量 [ppm]	水素ガス発生量 [ $\mu\text{mol}$ ]	G 値
K 系 AAM (ソブエクレ)	2.75	4972	31.0	0.32
	3.30	5349	33.5	0.29
	3.25	5024	31.4	0.27
K 系 AAM (Metastar501)	2.70	2332	14.6	0.16
	2.65	2478	15.5	0.17
	2.85	2635	16.4	0.16
Na 系 AAM	2.29	341.8	2.17	0.029
	2.14	376.2	2.32	0.032
	1.94	336.2	2.12	0.034
OPC	2.45	1333	8.57	0.088
	2.45	1333	8.57	0.088
	2.45	1377	8.85	0.091

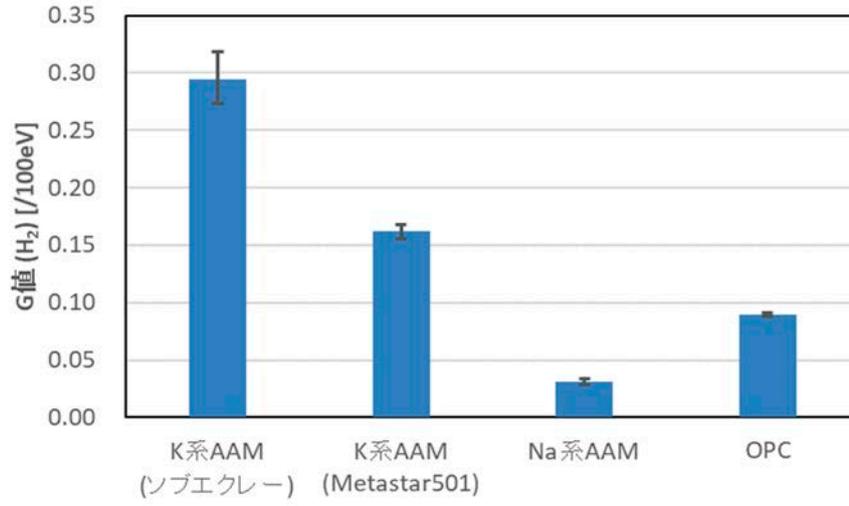


図 3.2-12 K系 AAM と他の固化材料との G 値の比較

### 3.2.4. まとめ

本研究では高い陰イオン核種保持性や流動性を有する固化材料として提案された K 系 AAM について、廃棄物処理に対するポテンシャルを確認するための物性試験を実施し、基礎物性および異なるメタカオリンを用いた場合の物性変動に関するデータを取得した。また物性試験で得られたデータについて他の固化材料 (Na 系 AAM、OPC) との比較を行った。

ペースト状態における K 系 AAM は、他の固化材料と比較すると、粘性が低く、硬化が早い等の特徴が明らかになるとともに、高い流動性を有することが認められた。また、2 種のメタカオリンを用いた K 系 AAM 固化体試験では、ペースト状態の粘性、固化体の圧縮強度および水素ガス発生量の変動が確認された。K 系 AAM 固化体は、約 50 MPa の圧縮強度を有することが確認され、 $\gamma$ 線照射による水素ガス発生量は他の固化材料より多くなる傾向が確認された。

### 参考文献

- 1) 原子力規制庁, 廃棄物確認に関する運用要領, (2014).
- 2) 大野新一, 「水の放射線分解による水素の生成」, RADIOISOTOPES, 29, pp. 401-408 (1980).
- 3) 名和豊春, 江口仁, 大久保正弘, 「セメントペーストおよびモルタルの流動性に及ぼすセメントの粉末度および粒度分布の影響」, 土木学会論文集, No. 433/V-15, pp. 139-147 (1991).
- 4) 高橋賢臣, 藤田智成, 「水素ガス発生に及ぼすセメント水和物試料中における水分の存在状態の影響」, 電力中央研究所研究報告, L11020 (2013).

### 3.3. パイロットサイズ試験体の作製と評価（再委託先：アドバンエンジン）

アドバンエンジン株式会社（以下、「アドバンエンジン」と略す）は、保有する混練試作装置を用いて実廃棄物（200 L ドラム缶）の 1/10 スケールの 20 L のペール缶でパイロットサイズ試験体を試作し、スケールアップ時の課題を抽出するために、以下の 4 項目を実施した。

- ・原料メタカオリンの影響
- ・攪拌羽の検討
- ・パイロットサイズ試験体の試作
- ・乾燥の影響評価

試験に用いた装置の概要を図 3.3-1 および表 3.3-1 に示す。

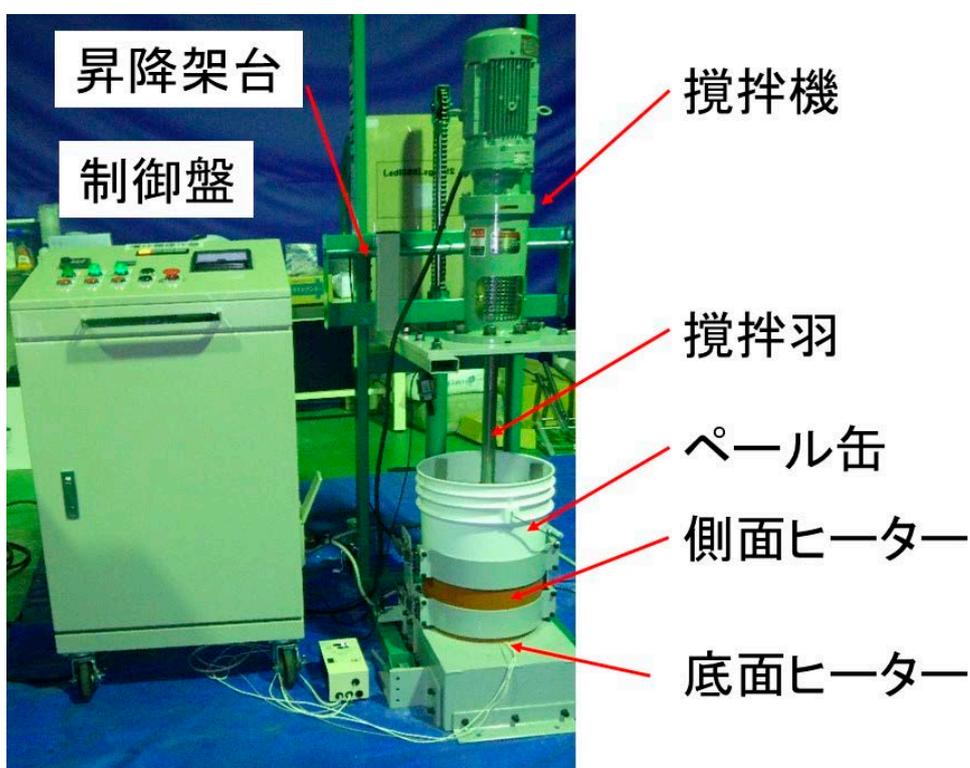


図 3.3-1 混練試作装置外観

表 3.3-1 混練試作装置主仕様

混練速度	30～120 rpm
取付可能容器寸法	直径 280～350 mm、高さ 210～400 mm
養生温度	室温～最高 80 °C
記録項目	混練速度、モーター電流値、試料温度

以下に実施した各項目の詳細を述べる。

### 3.3.1. 原料メタカオリンの影響

ソブエクレ株式会社製のメタカオリン（ソブエクレ）および IMERYS 社製のメタカオリンである Metastar®501（Metastar501）を用いて、パイロットサイズでの混錬性を比較した。

ケイ酸カリウム水溶液の配合は  $K_2O:SiO_2:H_2O = 1:1:11$ （モル比）とし、混錬後のペーストが合計 25 kg（約 14 L）となるように調整した。予めケイ酸カリウム水溶液を入れたペール缶にメタカオリンは 4 回に分けて投入し、混錬時間は合計 40 分とした。混錬中の様子をビデオカメラで撮影し、混錬性の違いを比較した。

Metastar501 はメタカオリンを全体の 3/4 を投入した時点までは混錬可能であったが、全量投入後、抵抗が増大し攪拌不能となった（図 3.3-2）。

対して、ソブエクレは全量投入後も泥水のような高い流動性を示した（図 3.3-3）。

結果として、使用するメタカオリンが混錬性に大きな影響を与えることが明らかとなった。ラボスケール試験でも同様の傾向が見られたが、パイロットサイズではその傾向がより顕著となった。以降の試験では混錬性に優れるソブエクレを用いた。



図 3.3-2 Metastar501 の混錬の様子（左）3/4 投入後、（右）全量投入後



図 3.3-3 ソブエクレの混錬の様子（左）3/4 投入後、（右）全量投入後

### 3.3.2. 攪拌羽の検討

高粘度の液体の攪拌用として一般的なアンカー羽根とリボン羽根をベースとした 4 種類の攪拌羽根を用いてその混練性を比較した。図 3.3-4 に試験に使用した攪拌羽根の外観を示す。

試験に用いたジオポリマーの組成は羽根による混練性の差を大きくするために水分量が少ないアドバンエンジの従来組成（以下、AE 組成と記す）とした。原料の配合を表 3.3-2 に示す。

混練量は混練後のペーストが合計 25 kg（約 14 L）となるように調整した。予めケイ酸カリウム水溶液を入れたペール缶にシリカヒュームを全量投入後、メタカオリンを 3 回に分けて投入し、混練時間は合計 40 分とした。混練中の様子をビデオカメラで撮影するとともに、攪拌を止めた際の羽根への原料粉の付着状態も観察し、混練性の違いを比較した。

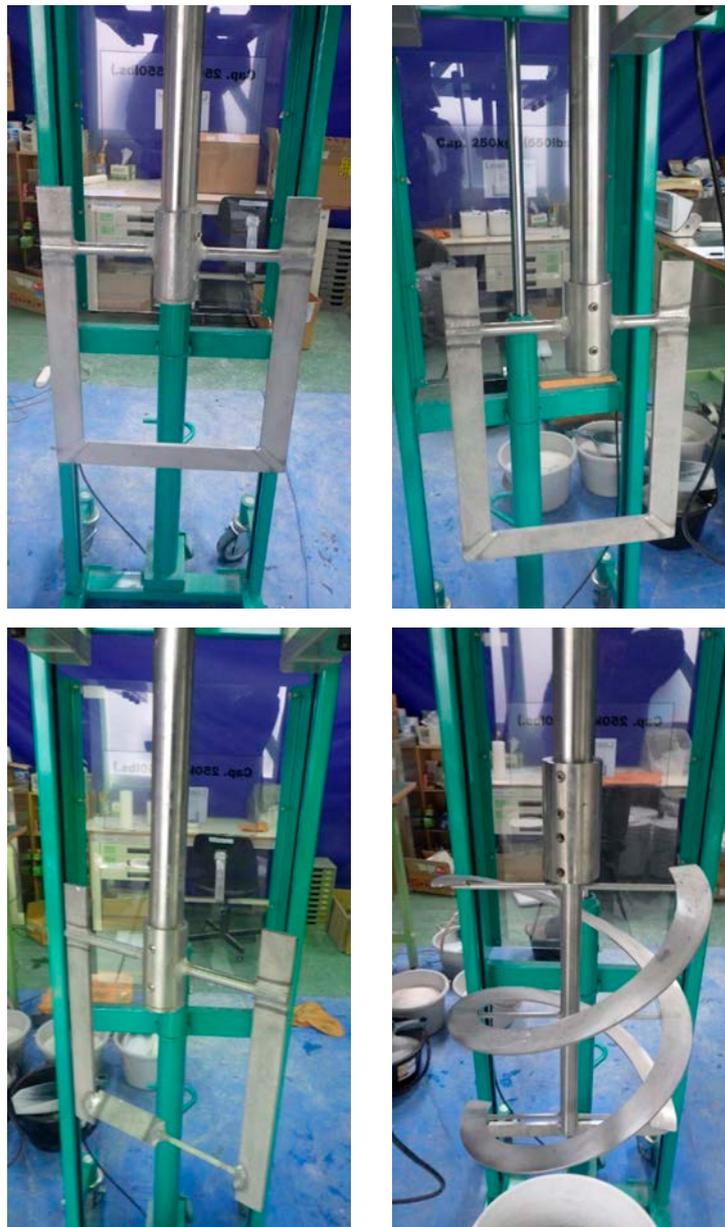


図 3.3-4 比較した混練羽根  
 (上段左：アンカー羽根 1、上段右：アンカー羽根 2、  
 下段左アンカー羽根 3、下段右：リボン羽根)

表 3.3-2 攪拌羽の比較に用いたジオポリマーペーストの配合

K/Al	1.37
Si/Al	2.50
H <sub>2</sub> O/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10.0

同時刻（混錬34分後）における混錬の様子と羽根への付着の様子を図3.3-5、図3.3-6に示す。

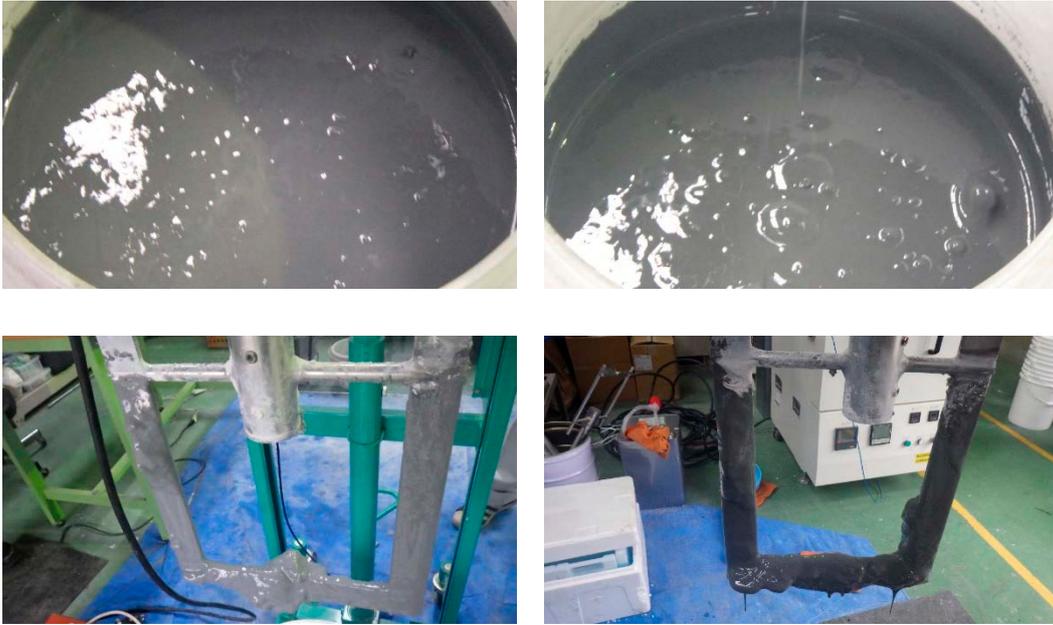


図 3.3-5 混錬性の比較①（左列：アンカー羽根 1、右列：アンカー羽根 2）

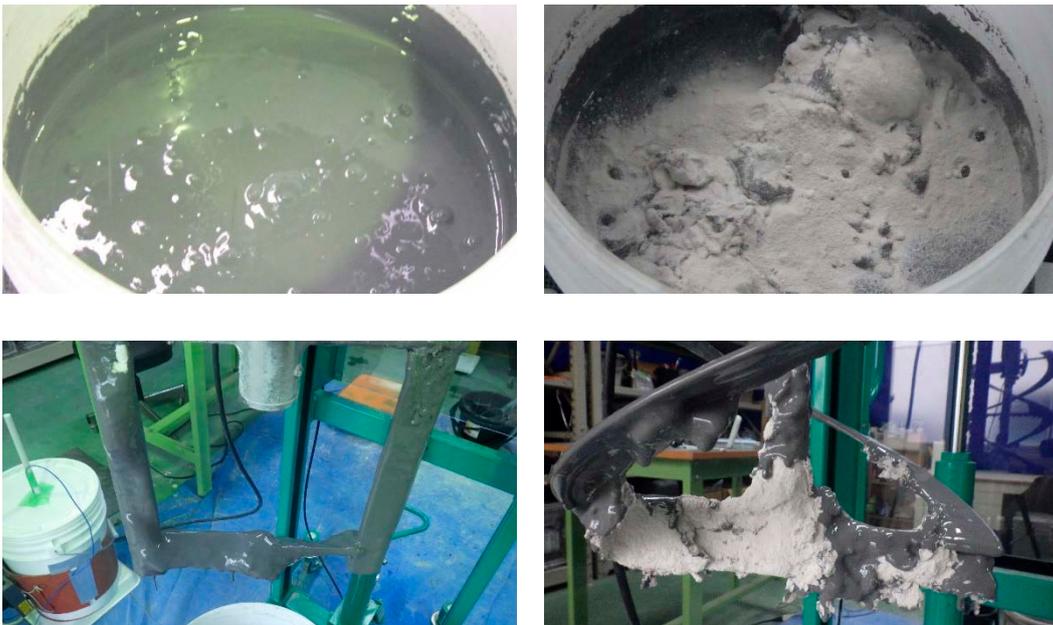


図 3.3-6 混錬性の比較②（左列：アンカー羽根 3、右列：リボン羽根）

多少の違いはあるが、全体にアンカー羽根が良好な混錬性を示した。対して、リボン羽根は羽根への原料粉の付着が顕著で本条件の混錬には適さないことが明らかとなった。

アンカー羽根でも周速度の速い容器外周付近は容易に混錬されるが、周速度の遅い容器中心付近は原料粉の塊が滞留しており混錬されにくい様子が確認された（図 3.3-7）。また、原料粉の付着については、リボン羽根に比較して少ないものの、回転の中心付近や羽根の上流側に付着が見られた（図 3.3-8）。

このことからスケールアップの課題として、「羽根への原料粉の付着」と「容器中心付近の混錬」が抽出された。今回得られた知見をもとに来年度、羽形状の最適化と表面処理を検討する。



図 3.3-7 中心付近の滞留



図 3.3-8 原料粉付着の顕著な位置

3.3.3. パイロットサイズ試験体の試作

原料にソブエクレー、攪拌羽にアンカー羽根 1、容器に 20 L ペール缶を用いてパイロットサイズ試験体の試作を行った。配合はラボスケールの 2 条件に加えアドバンエンジの条件の計 3 条件とした。それぞれの配合を表 3.3-3 に示す。

表 3.3-3 パイロットサイズ試験体の試作配合

	1 : 1 : 11	1 : 1 : 13	1 : 1.2 : 7.6
K/Al	0.86	0.86	1.37
Si/Al	1.37	1.37	2.50
H <sub>2</sub> O/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9.15	10.89	10.0

また、パイロットサイズ試験体は養生中のジオポリマー内部の温度を測定するために、試料中心に熱電対を設置した。No.4 の試験体ではスケールアップの影響を混練と養生に分けて評価するために、混練後のペーストの一部を圧縮試験体作製のモールド (φ50 mm×100 mm) に分取し養生を行った。

配合と養生条件および得られた試験体の圧縮強度を表 3.3-4、高流動性の配合の養生中の試験体中心温度を図 3.3-9、パイロットサイズ試験体の外観を図 3.3-10、図 3.3-11、図 3.3-12、図 3.3-13、分取したモールドサイズ試験体を図 3.3-14 に示す。

養生条件をラボスケールと同じ混練後 40 °C で 24 時間経過後 25 °C で 24 時間とした No.1、No.2 の試料では、養生開始から約 2 時間でジオポリマー中から蒸気が噴き出し、中心温度は 107 °C に達した。養生条件を室温 (約 10 °C) とした試料では養生開始から約 3 時間半で中心温度は 101 °C に達したが、蒸気の噴出は認められなかった。

各パイロットサイズ試験体について、圧縮強度を比較するため材齢 14 日および 28 日でコア抜きを行った。水分量の少ない No.3 の試料では材齢 28 日で試験体を得ることができたが、高流動性の配合を用いた No.1、2、4 の試料はコア抜き中に割れてしまい、圧縮試験用の試験体を得ることができなかった。高流動性の配合では水分量が多いため、パイロットサイズ試験体では十分な強度が得られていない可能性がある。また、No.4 の混練試作装置で混練したペーストを分取した圧縮試験体は正常に脱型することができ、材齢 14 日で圧縮強度 23 MPa が得られた。このことから、パイロットサイズにスケールアップする際に、混練は羽根への付着等を除き問題がなく、養生条件に課題があることが明らかとなった。

来年度はパイロットサイズ試験体について、径方向の温度分布の測定と養生条件の検討を行う。また、組成についても十分な流動性が得られていることから、水分量を減らし強度を得やすい組成をラボスケール試験と連携し、検討する。

表 3.3-4 パイロットサイズ試験体作製条件と圧縮強度

サンプル名		No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
組成		1 : 1 : 11	1 : 1 : 13	AE	1 : 1 : 11
養生条件		40 °C→25 °C	40 °C→25 °C	常温 (10 °C)	常温 (10 °C)
圧縮強度	材齢 14 日	コア抜き NG	コア抜き NG	コア抜き NG	コア抜き NG モールド : 23MPa
	材齢 28 日	コア抜き NG	コア抜き NG	コア抜き : 26MPa	コア抜き NG

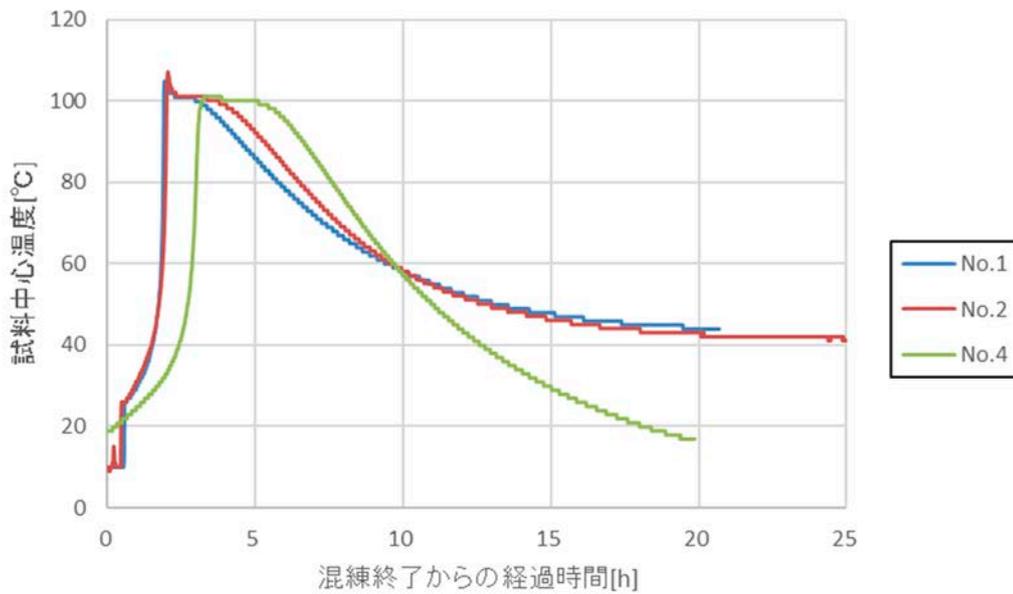


図 3.3-9 養生中のパイロットサイズ試験体中心温度



図 3.3-10 養生後の試験体 No. 1 (左 : 外観、右 : コア抜き後の試料)



図 3.3-11 養生後の試験体 No.2 (左：外観、右：コア抜き後の試料)



図 3.3-12 養生後の試験体 No.3 (左：外観、右：コア抜き後の試料)



図 3.3-13 養生後の試験体 No.4 (左：外観、右：コア抜き後の試料)



図 3.3-14 モールドサイズ試験体 No.4

### 3.3.4. 乾燥の影響評価

安全評価の項目のうち水素発生量の評価に重要となる固化体中の水分量を低減するために、20 L サイズ試験体の乾燥試験を行うための実験装置を整備し、予備試験を実施した。

整備した乾燥試験用の実験装置を図 3.3-15 に示す。

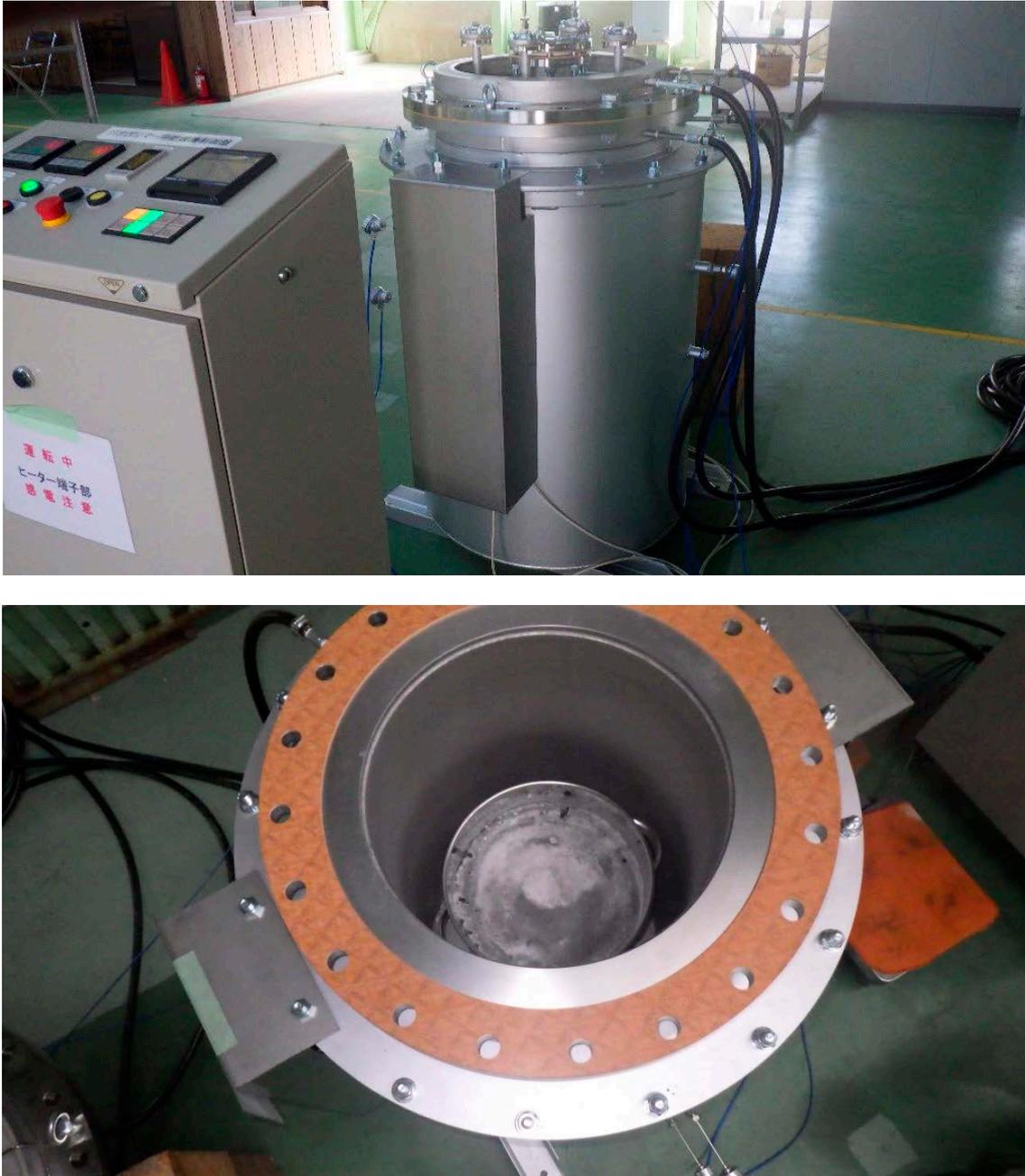


図 3.3-15 乾燥用実験装置外観  
(上：外観、下：内部)

パイロットサイズ試験体については耐熱性を考慮し、ステンレス製の容器で試料を作製した。試料の作製条件を表 3.3-5 に示す。

表 3.3-5 乾燥試験用試料作製条件

	ラボスケール	パイロットサイズ
サイズ	φ 36 mm×50 mm (約 50 mL)	φ 330 mm×240 mm (約 20 L)
組成	AE 組成	AE 組成
養生条件	60 °C、4 日間 (封緘養生)	60 °C、4 日間 (封緘養生)

本年度実施した予備試験はラボスケール、パイロットサイズともに 60 °C、7 日間とし、ラボスケール試験体は恒温槽、パイロットサイズ試験体は本乾燥装置を用いて行った。試料中の水分量の変化を図 3.3-16 に示す。なお、試料の初期水分量は原料組成から算出した。

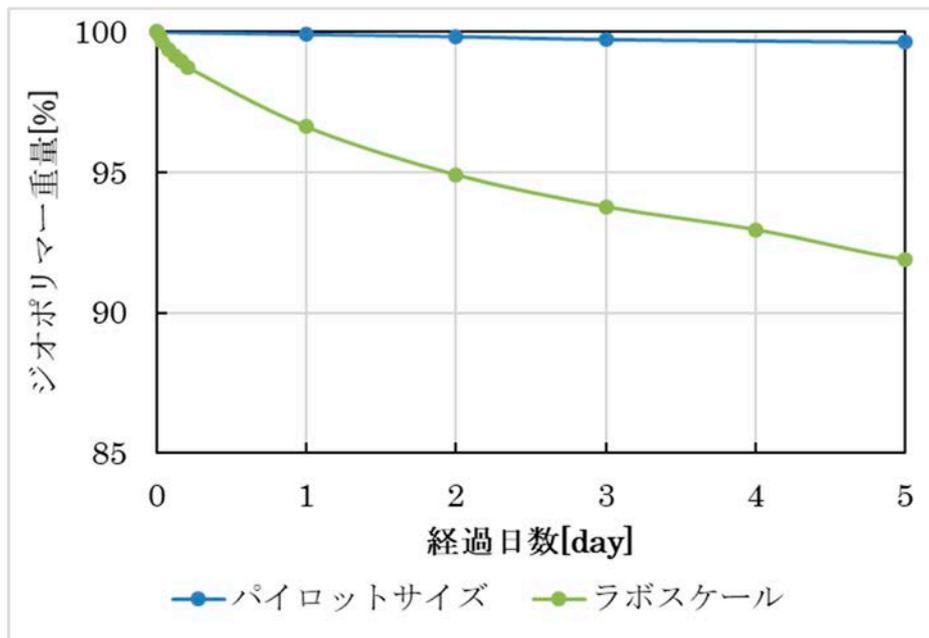


図 3.3-16 乾燥予備試験結果

パイロットサイズ試験体の乾燥試験（加熱と重量測定）が実施可能なことを確認した。

予備実験の結果として、ラボスケール（約 50 mL）の試験体と比較し、パイロットサイズでは乾燥速度が約 1/20（乾燥日数 5 日間）に低下した。

来年度乾燥条件の最適化を行うとともに 20 L サイズで実現可能な水分量を明らかにする。

### 3.4. 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため、北大内の担当者会議や再委託先や連携先と以下のような日程で協議を開催した。また、実験を担当する学生は、なるべく研究室の垣根を越えて頻繁に打ち合わせを行うようにした。

○令和元年10月11日：北大担当者会議（於 北大）

○令和元年11月20日：北大担当者および JAEA 実務担当者、CLADS との打ち合わせおよび JAEA 実験設備の見学（於 JAEA 東海）

○令和2年1月21日：北大・JAEA・アドバンエンジ合同会議およびアドバンエンジ実験設備の見学（於 アドバンエンジ、図 3.4-1）

○令和2年3月17日：北大・アドバンエンジ各担当者による打ち合わせ（於 北大）

○令和2年2月4-5日：若手担当者（北大、JAEA、アドバンエンジ）講習会（於 北大、図 3.4-2）

英国シェフィールド大学側とは、英国シェフィールド大学代表のジョン・プロビス教授が参加していたポルトガルでの学会に北大側から出向き、令和2年3月11日にキックオフ会議を開催した。そのキックオフ会議において、令和2年度の方針や日英の連携に関して議論を行った。また、次回会議を令和2年5月15日にWEB会議形式で開催することを決定した。



図 3.4-1 令和2年1月21日に開催した北大-JAEA-アドバンエンジ合同会議の様子

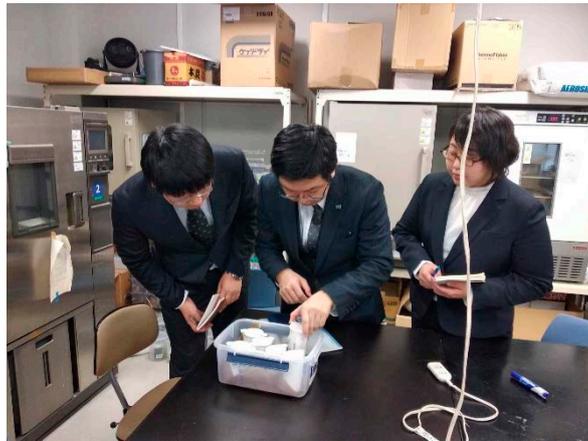


図 3.4-2 令和 2 年 2 月 4-5 日に開催した若手担当者講習会の様子

#### 4. 結言

1F 内で溜まる汚染水処理のために使われている様々な吸着材の中でも、液体状、粉粒体状のものは安全な保管や処分のために固型化する必要があるとあり、セメントやガラス固化などの研究が進められている。しかし、ヨウ化物イオンやセレン酸イオン等の陰イオン核種の閉じ込め性能や 1F で大量に発生している鉄沈殿および炭酸塩沈殿物等の廃棄物の固化のためには、出発原料やその配合などを検討して、流動性を高めてワーカビリティを向上させること、陰イオン保持能を高めること、実プラントとして成立する固化体製作装置に向けてスケールアップすることが課題となった。

そこで本業務では、放射性廃棄物の中でも鉄殿物を検討対象とし、安全な保管と処分を可能とする高い陰イオン核種保持性や流動性のアルカリ刺激材料とそのレシピを探索する。また、実廃棄物の 1/10 スケール程度のパイロットサイズ試験体の試作と評価を行い、実プラントとして成立する固化体製作装置の概念を提案する。さらには、最新の鉄殿物インベントリー情報に基づき、本課題で提案する固化体を浅地ピット処分した際の安全評価を行い、多様な性状や核種組成を有する廃棄物固化に対するアルカリ刺激材料のポテンシャルを示すことを目標に、日英協働で以下に示す 5 つの検討を実施する。そのため、前述の 2 の「業務計画」に記述した項目を研究期間全体で実施することとしている。

本年度は、2.2 節に示したように、日本側では (1) 陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計、(2) 試験体の物性試験と評価、(3) パイロットサイズ試験体の作製と評価に着手し、研究を推進した。その結果、以下に示す成果を得ることができた。

陰イオン核種の保持性能を高めたアルカリ刺激材料の設計では、酸化マグネシウムを作製時に加えた場合には、マグネシウムシリケート水和物 (M-S-H) が形成され、浸出実験の結果その M-S-H や層状複水酸化物にはヨウ化物イオンの遅延能は認められないことが明らかとなった。ただし、模擬固化体作製時に銀イオンを加えたものでは、高いヨウ化物イオン浸出遅延能が認められた。先行して実施されている TRU 廃棄物の地層処分で、隔離が最も困難と考えられているヨウ化物イオンの保持性を高めることができたことは、非常に大きな成果と考えることができる。次年度は安全評価上問題となる亜セレン酸イオンやセレン酸イオンの保持性に関して検討を始めるが、これら陰イオンの保持性を高める固化体が作成可能ということになれば、浅地中処分の可能性を高めることが可能になるものとする。

試験体の物性試験と評価では、K 系アルカリ刺激材料に関する基礎物性および異なるメタカオリンを用いた場合の物性変動に関するデータを取得した。他の固化材料と比較した結果、K 系アルカリ刺激材料は硬化が早い等の特徴が明らかになるとともに、ペースト状態での粘性が低く、高い流動性を有することが認められた。

パイロットサイズ試験体の作製と評価では、原料として使用するメタカオリンが混練性に大きな影響を与えることが明らかとなった。スケールアップ時の混練にはアンカー羽根が適していることが明らかとなった。スケールアップ時の課題として混練時の羽根への原料の付着と養生条件の最適化が必要であることが抽出された。また、パイロットサイズ試験体の乾燥試験に必要な装置の整備を行った。

研究推進では、研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

英国側との協議や協働について以下に説明する。まず研究内容に関しては、先行して実施・修了した研究後の協議もあったため、本研究の申請前に十分行うことができた。特に、本研究の大きな目標である流動性と陰イオン保持能を高めるためのジオポリマーのレシピとその実現性に関しては、かなり突っ込んだ議論ができていた。この内、高流動性のためのジオポリマーのレシピに関しては日本側の知見が乏しく、NaOHでなくKOHを用いることやその配合比に関する情報は、英国側の先行した研究による経験や知見に依るところが大きい。この英国との共同研究がもたらすシナジー効果により、日本側の3つの機関が本業務開始直後から効率的に検討を進めることができていると考える。英国側では、本研究の実働者となるポスドクの採用が新型コロナウイルス感染症流行により大幅に遅れ、現在でも教員、ポスドク、学生すべての出勤・登校が禁止されている状況で、本研究の初期の目標達成が困難な状況になっているが、日本側で流動性に関する知見を集めるために簡易テーブルフロー試験を先行して実施したことで、英国側の遅れを補うことができている。これも、英国側の代表者であるジョン・プロビス教授と密に連絡を取っていたことに依るところが大きい。また、英国もリモートワークがほとんどになったお陰で、より頻繁に情報共有や議論を行えるようになったので、本事業において新型コロナウイルス感染症流行はマイナスだけに働いているわけではない。

以上、3カ年計画の1年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比体積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。  
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup>	m/m
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(e)</sup>	1 <sup>(b)</sup>	m <sup>2</sup> /m <sup>2</sup>
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m kg s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>3</sup> A <sup>2</sup>
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	°C		K
光照射量	ルーメン	lm	cd sr <sup>(e)</sup>	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq		s <sup>-1</sup>
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性化	カタール	kat		s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。  
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。  
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。  
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。  
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。  
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。  
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>
表面張力	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
角加速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
角加減	ラジアン毎秒	rad/s	m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup>
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>4</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>
	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>12</sup> cm <sup>2</sup> ) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フオト	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm <sup>2</sup> =10 <sup>-8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド <sup>(a)</sup>	Oe	1 Oe <sub>e</sub> =(10 <sup>3</sup> /4π)A m <sup>-1</sup>

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

