

JAERI-M

6 3 6 4

海洋投棄にそなえたセメント均一固化体の
高水圧試験

1976年1月

関 晋・大 内 康 喜・比 佐 勇

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

海洋投棄にそなえたセメント均一固化体の高水圧試験

日本原子力研究所東海研究所保健物理安全管理部

関 晋、大内康喜、比佐 勇

(1975年12月18日受理)

低レベル放射性廃棄物セメント固化体の海洋処分にあたって、実大規模セメント均一固化体を深海底5000mと同等の条件(圧力500kg/cm²G, 水温2°C, 水平流速1~2cm/sec)において高水圧試験を行なった。得られた結果は次のとおりである。1.) ドラム缶付きのセメント固化体では、ひび割れなどの破壊状態を認めることはできない。2.) ドラム缶容器を具備しない固化体では、固化体内部への水の浸入により、崩れ現象が認められた。

Hydraulic Pressure-resistance Test with Monolithic
Cement Solids of Practical Size for the Sea Disposal

Susumu SEKI, Kouki OUCHI, and Isamu HISA

Division of Health Physics and Safety, Tokai, JAERI

(Received December 18, 1975)

Concerning the sea disposal of cement solid of flow-level radioactive wastes, hydraulic pressure-resistance tests have been performed with monolithic thick solids of practical size at conditions simulating the 500 m deep sea (i.e., hydraulic pressure 500 kg/cm²G, water temperature 2°C, and horizontal flow velocity 1 ~ 2 cm/sec).

The main results obtained are as follows: (1) In a drum-enclosed waste solid, there occurs no destruction such as cracking. (2) In a bared one, i.e., without the drum, crumbling takes place due to permeation of water.

目 次 な し

1. まえがき

セメント固化体は、耐圧強度や耐久性に優れている上に、原料の入手が容易で、価格も安く、さらに固形化プロセスも単純であることなどから、低レベル放射性廃棄物処分体として広く用いられている。すなわち原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物の再生濃縮廃液などは、セメントなどで均一に練り混ぜて、200ℓドラム缶内で固形化する処理方法が一般的に採られている。

このドラム缶づめセメント均一固化体は、試験的海洋処分の実施にあたって、昭和48年6月、原子力委員会、環境安全専門部会から出された「試験的海洋処分用低レベル放射性廃棄物のセメント固化体に関する暫定指針¹⁾」に示されているものが主体になると思われる。

著者らは、これまでIAEAの「固化体からの放射性核種の浸出性検定試験法についての暫定指針」に従い、軽水炉から生ずる再生濃縮廃液を取り上げ、模擬廃液とセメントペースト系およびセメントモルタル系均一固化体について、大きさが4.5φcm×4.4cmの小規模試料の浸出試験²⁾を実施してきた。しかし、今後、これらは、実物大投棄体に適合しうるものかを実験的に確認する必要がある。

このようなことを鑑み、実規模セメント均一固化体の深海底の条件における放射性核種の浸出挙動をしらべるため、予備的検討として高水圧試験を行なった。

ドラム缶容器付きセメント均一固化体の高水圧下における機械的強度その他の性状についてはさまざま報告^{3)～7)}されている。しかし、例えば、海水による腐食あるいは輸送時または投棄の際の衝撃などによって、ドラム缶容器の一部または全部が破損した場合を考慮して、ドラム缶容器を切断、撤去した裸の固化体の深海条件における機械的性状についてはまだ、検討が十分に行なわれていない。

本研究は、BWR型原子力発電所から排出される再生濃縮廃液の主成分である硫酸ナトリウム(Na_2SO_4)の水溶液を模擬廃液として製作した投棄の際に用いる実際の大きさのセメント均一固化体をドラム缶付きの場合とドラム缶の一部または全部を撤去した場合に分け、それぞれ深海底5000mの条件(圧力500kg/cm²、水温2℃、水平流速1～2cm/sec)でうける機械的变化を比較考察しようとするものである。

2. 実験の準備

2.1 供試体の使用材料

2.1.1 セメント

セメントはC種高炉セメント(新日本製鉄化学戸畠工場製品)と普通ポルトランドセメント(日立セメント日立工場製品)を使用した。その物理的性質および化学的成分を表1に示す。

表 1. セメントの物理的性質と化学成分

a) 物理的性質

比重	比表 面積 (cm ² /g)	粉末度 残分 (%)	擬結 (時 分)	安定性 (時 分)	強度 (kg/cm ²)						
					88μ	始発終結法	浸水煮沸法	曲げ強度			
								3日	7日	28日	
普通ポルトランド	3.15	3110	2.0	2-17 3-20	良	32.1	50.1	70.8	126	234	414
C種高炉	2.99	3850	1.0	4-32 5-31	良	22.8	39.9	62.7	83	176	381

b) 化学成分 (%)

	強熱減量 (Loss)	不溶残分 (Insol)	シリカ (SiO ₂)	アルミナ (Al ₂ O ₃)	酸化 第二鉄 (Fe ₂ O ₃)	酸化 カルシウム (CaO)	マグネシア (MgO)	無水硫酸 (SO ₃)	合計
普通ポルトランド	0.7	0.5	21.7	5.3	3.3	64.7	1.3	1.6	99.1
C種高炉	0.9	0.3	28.6	11.9	1.5	49.2	3.8	2.2	99.2

注) セメント会社の試験結果による。

2.1.2 細骨材

混和材として人工軽量砂、川砂および天然ゼオライトの3種を使用した。人工軽量砂は三井金属製の湿潤状態のメサライトを、川砂は茨城県那珂川産の天然砂を、天然ゼオライトは北海道長万部産のものをそれぞれ使用した。

2.1.3 模擬廃棄物

a) 濃縮廃液

この試験ではBWR型原子力発電所から発生する濃縮廃液の主成分である硫酸ナトリウム(Na₂SO₄)の水溶液を模擬廃液として使用した。

b) 使用済イオン交換樹脂

BWR型原子力発電所から発生する使用済イオン交換樹脂を模擬したもの用いた。陽イオン交換樹脂としてアンバーライトIR 120L、陰イオン交換樹脂としてアンバーライトIRA 400で、これを重量比4:1の割合で混合したものである。

2.1.4 ドラム缶容器諸元

この試験に用いた供試体はすべてドラム缶内で固化したもので、その大きさは50ℓ、200ℓの2種類がある。50ℓドラム缶は試験No C-1、C-2で、200ℓドラム缶はC-3~C-11でそれぞれ用いた。50ℓドラム缶および200ℓドラム缶の容器諸元を次に示す。

a) 50ℓドラム缶

寸法: 34φcm × 55cm

板厚: 1.2mm

材質: 熱間圧延軟鋼板

JISZ1601、3種規格品を用いている。

b) 200ℓドラム缶

寸法: $58\phi\text{cm} \times 55\text{cm}$

板厚: 1.2mm

材質: 熱間圧延軟鋼板

JIS Z 1601, 3種規格品を用いている。

2.2 実験機器とその概略仕様

2.2.1 実大固化体高圧RI浸出試験装置

本装置は、深海底 5000m における条件（圧力 $500\text{kg/cm}^2\text{G}$, 温度 2°C, 流速度 cm/sec）をつくり出し、200ℓドラム缶サイズのセメント供試体を長時間にわたってその条件に保持できるものである。

圧力は油圧駆動プランジャ型の増圧機によって、約 40 分で $500\text{kg/cm}^2\text{G}$ に昇圧し、 $\pm 1.5\%$ の誤差範囲内で長時間保持できるようにしてある。加圧媒体はイオン交換脱塩水を用いている。圧力測定は直接指示計ならびに記録計を設けて、常時、監視ができるようにしてある。

高圧水槽内を循環する循環水は、まず、1次熱交換器によって 2°C にまで降温し、さらに、昇圧後は循環水を 2 次熱交換器によって、 $\pm 1\text{°C}$ の誤差範囲に保ち長時間運転できるようにしてある。なお、冷媒（ブライン）としては 35% エチレングリコール水溶液を用いている。温度測定は連続記録ができるようになっている。

高圧水槽内の循環は高圧循環ポンプで行ない、循環系のバルブの開閉によって、深海底の流速 $1 \sim 2\text{cm/sec}$ に調節できる。

図 1 に本装置のフローシートを、図 2 に高圧水槽の概略図を示す。

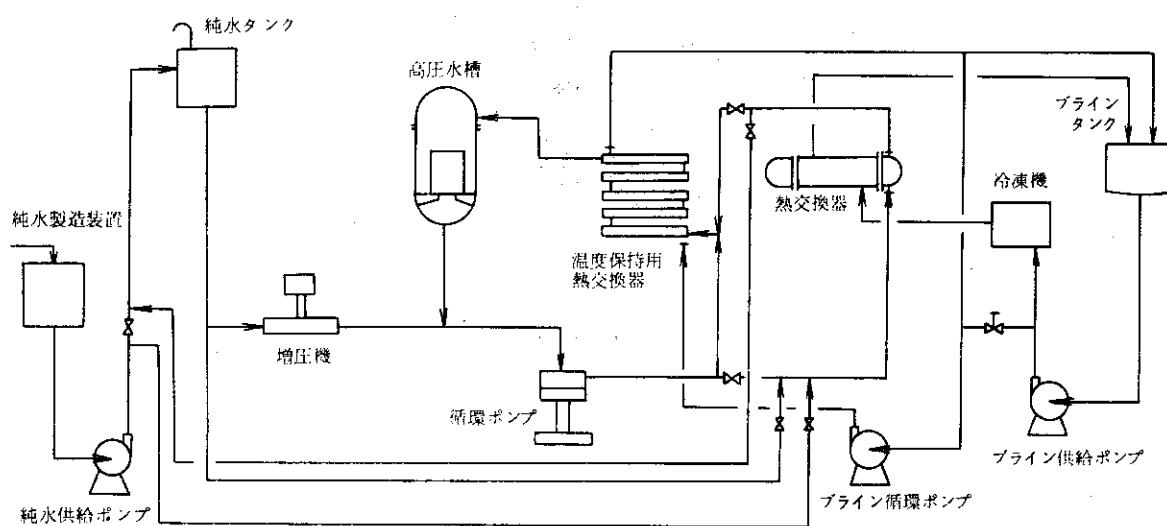


図 1 実大固化体高圧RI浸出試験装置フローシート

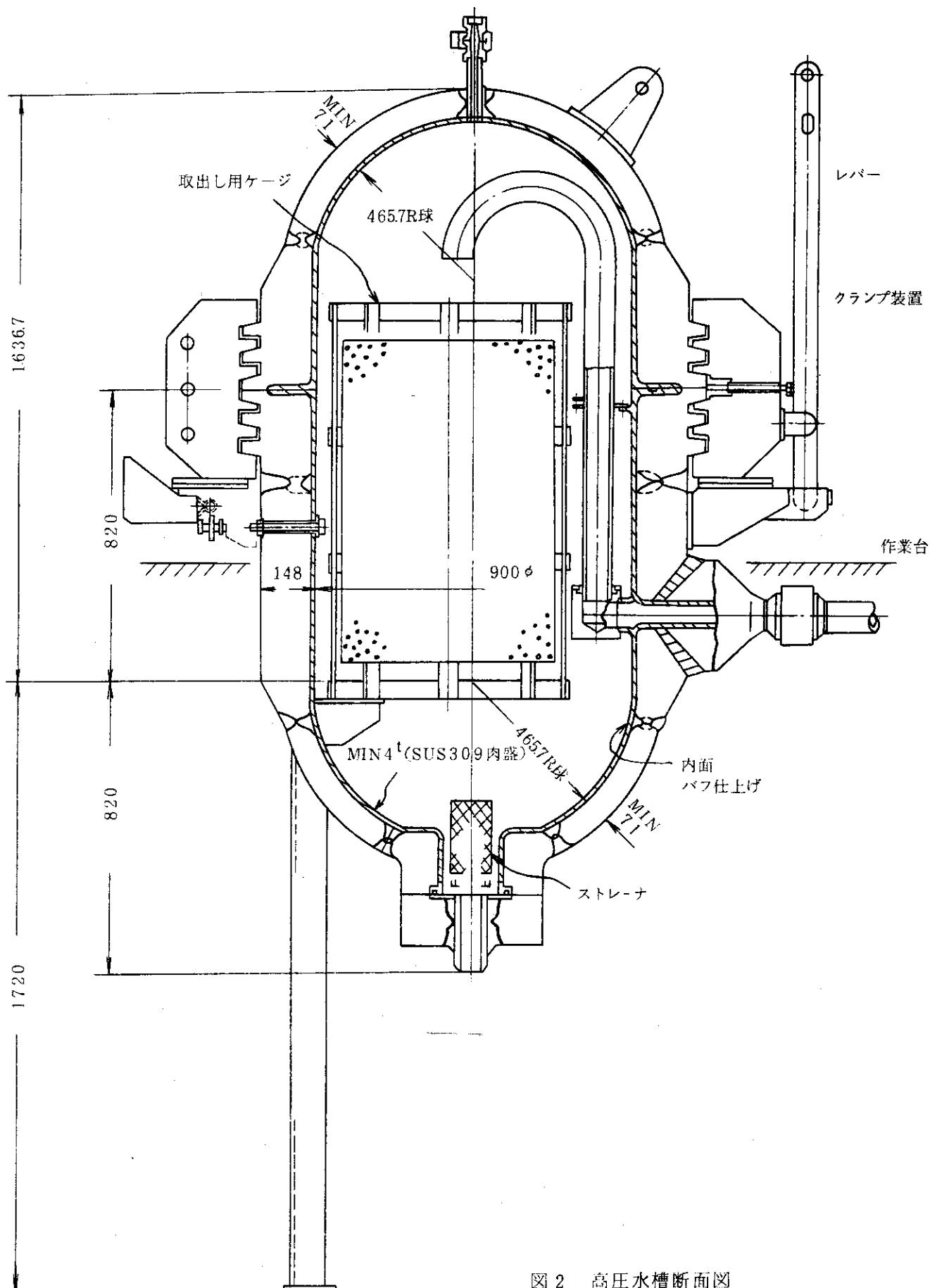


図2 高圧水槽断面図

2.2.2 供試体製作装置

セメント、細骨材および模擬廃液などを均一に練り混ぜた大きさ 200㎖までの供試体を製作するためのものである。練り混ぜについては使用済み供試体の廃棄容器を兼ねた 500㎖ドラム缶の中で行なう。攪拌翼の回転数は、30, 45, 65, 95, 138, 215 rpm の 6 段変速 V プーリによる変換が可能である。充分に混練したモルタルは 500㎖ドラム缶を転倒することによって 200㎖ドラム缶に充填し、後、所定時間静置して固化される。図 3 に本装置の概略図を示す。

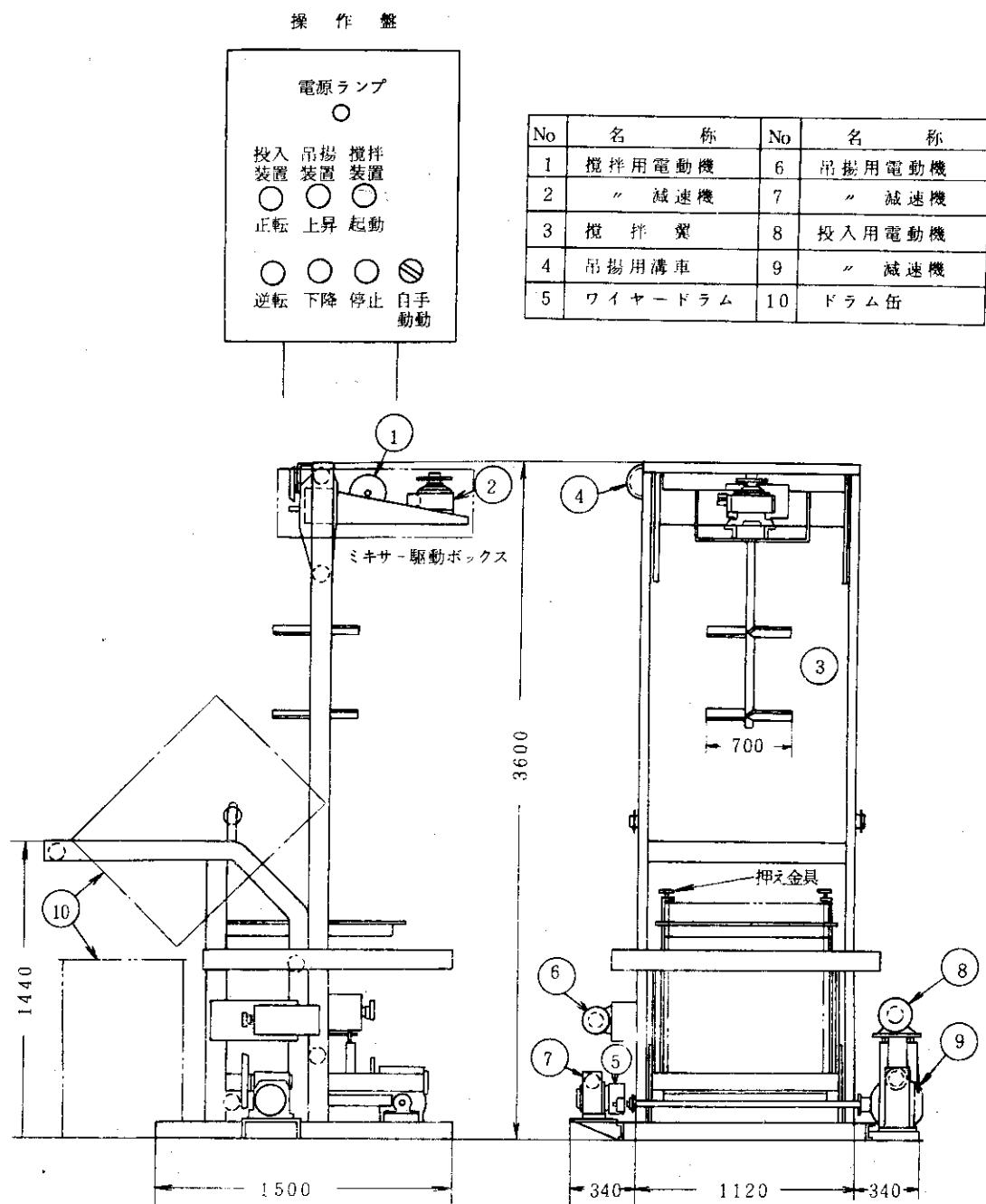


図 3 供試体製作装置

2.2.3 ドラム缶外被カッティング装置

セメント固化体からの浸出量を安全側に評価するためには、ドラム缶外被の一部または全部を切断撤去し、固化体表面をあらわにする必要がある。本装置により、ドラム缶づめセメント固化体のドラム缶外被のみをディスクグラインダで切断撤去する。その切断時に発生する鉄片およびコンクリート粉塵は、本装置に付属している小型プロワで吸引し、サイクロン、プレフィルタおよびHEPA フィルタで捕集する。図4に装置の概略図を示す。

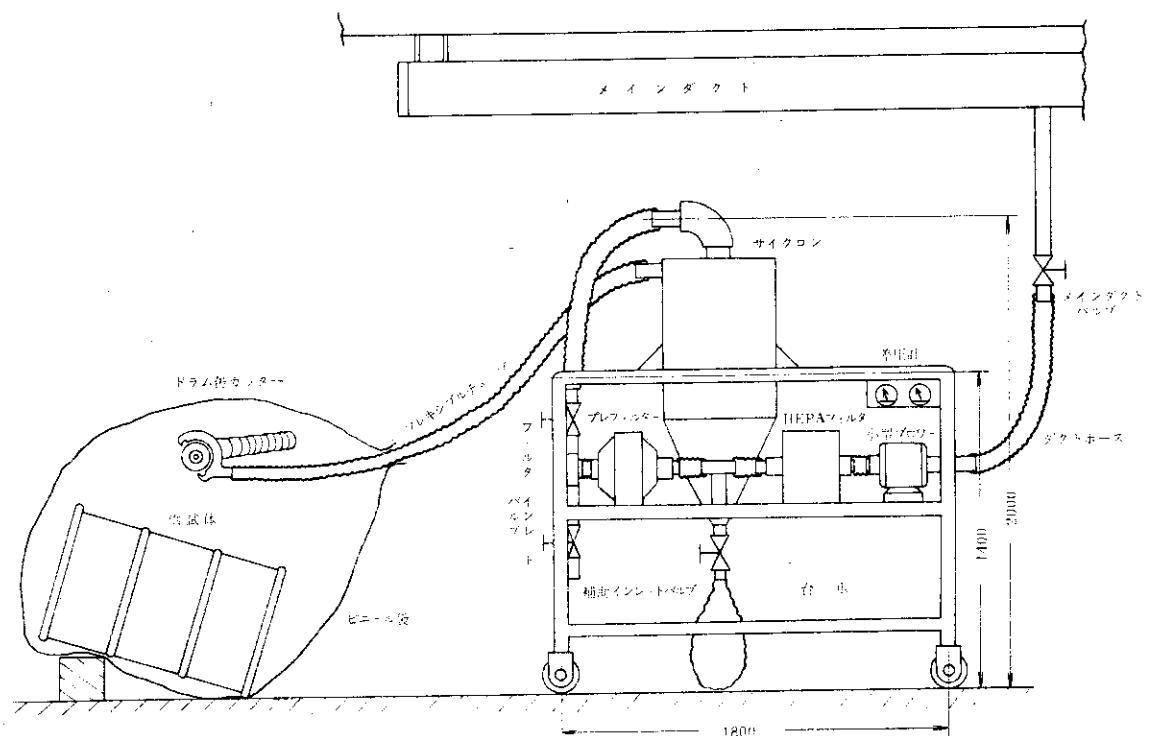


図4 ドラム缶外被カッティング装置

2.2.4 圧縮試験機

実規模固化体の一軸圧縮強度を知るための試験機である。主な仕様は、次に示すとおりである。

種類：アムスラー式

型式：堅型

容量：100トン

2.2.5 クラック発生音分析装置

高圧水槽に設置した供試体の加圧時の挙動を音の観測によって知ろうとするもので、本装置は、テープレコーダと騒音分析計からなっている。それぞれの主な仕様を次に示す。

a) テープレコーダ

テープ速度：4.8 cm/sec

周波数範囲：30～12000 C/S

スピーカ：12×8cm (ダイナミック型)

b) 騒音分析計（指示騒音計）

マイクロホン感度：約 84dB (relV/ μ bar)

測定範囲 : 35 ~ 130 ホン (dB)

指示計有効目盛 : 15dB (-5 ~ +10)

3. 実験方法

3.1 供試体の作製

使用したセメントは、C種高炉セメントと普通ポルトランドセメントで表1にその物理・化学的性質を示す。細骨材には人工軽量砂（メサライト），ゼオライト，川砂を使用した。試験Naとその示方配合を表2に示す。練り混ぜには、前述の供試体製作装置を使用した。セメント

表2 実規模固化体の配合一覧

試験 NO	セメント	骨 材		模擬廃液 (%)	W/C (%)
		種類	A/C+A (%)		
C-1	S	人工軽量砂	33	Na ₂ SO ₄ 20	6.3
C-2	S	"	33	20	6.3
C-3	S	ゼオライト	20	20	6.7
C-4	S	川砂	29	20	6.3
C-5	S	—	—	20	4.2
C-6	S	人工軽量砂	33	15	6.3
C-7	S	廃樹脂	22	NaOH 2.07kg 使用	3.9
C-8	P	人工軽量砂	22	15	6.3
C-9	P	"	25	15	8.3
C-10	P	"	22	15	6.3
C-11	S	"	22	15	6.3

注)

S: Slag P: portland cement

A: Aggregate, C: Cement W: waste

などの搅拌は、試験No C-7については 200 rpm で行ない、それ以外は、138 rpm で行なつた。表3に使用材料の練り混ぜ方式を示す。充分に練り混ぜた材料は 200 リットルドラム缶に充填し、

表 3. 示方配合の練りませ方式

廃棄物	混練物	材料投入および練りませ方法
濃縮廃液 (Na ₂ SO ₄ 水溶液)	廃棄物 セメント 骨材(メサ ライト, 砂, ゼ オライト)	
使用済イオン 交換樹脂	廃棄物 (カチオン, アニオン) セメント 水 水酸化ナトリウム	

30日以上の空气中養生を行なって固形化した。同時に同固化体の圧縮強度を知るため, JIS A 1132 の方法に従つて, 10φcm × 20 cm の圧縮強度試験用供試体を各々 3 個取得した。

高水圧試験を行なった供試体の形状については、一覧にして表 4 に示す。

表 4 試験供試体の形状

試験 No	寸法 直径×高さ (cm)	形 状	固化体の 露出度(%)
C - 1	39×58 (50ℓ)		
C - 2	"	ドラム缶付き	0
C - 5	58×90 (200ℓ)		
C - 7	"		
C - 3	"		
C - 4	"	ドラム缶外被剥離 (裸の供試体)	100
C - 6	"		
C - 8	"		
C - 10	"		
C - 9	"	ドラム缶の上蓋, 底板なし	25
C - 11	"	ドラム缶の上蓋, 底板なし。 さらに(10φcm × 9cm)剥離	33

なお、ドラム缶容器の切断撤去は、前述のドラム缶外被カッティング装置によって行なつた。

3.2 高水圧試験

試験No C - 1 から C - 11までの供試体について高水圧試験を行なつた。圧力は、固化体の外部から深海底への落下速度にみあつた速度 500kg/cm²まで高水圧を加えていき、その状態を約 2 時間保持した。降圧は、昇圧と同程度の速度で行なつた。水温は、あらかじめ予冷をしておき、加圧時には深海底とほぼ同程度の温度 2°C ± 1°C になるようにしている。流速については、循環水を深海底の水平流速に近い 1.5cm/sec で循環するように調整した。これらの試験条件を図 5 に示す。

この高圧試験を表3に示す供試体の状態でそれを行なった。また、高水圧で固化体がどのくらい吸水するかを知るため、各供試体について試験前後の重量を測定した。ドラム缶外被をはがした裸のものについては、高圧水槽にマイクロフォンを取り付け、加圧時に固化体から発する音をテープレコーダーに録音しておき、その音を騒音分析計にかけて固化体から発生する音の強弱を測定し、それによって固化体の機械的挙動を知ることを試みた。

図6に高圧水槽にマイクロフォンを取付けた位置関係を示す。

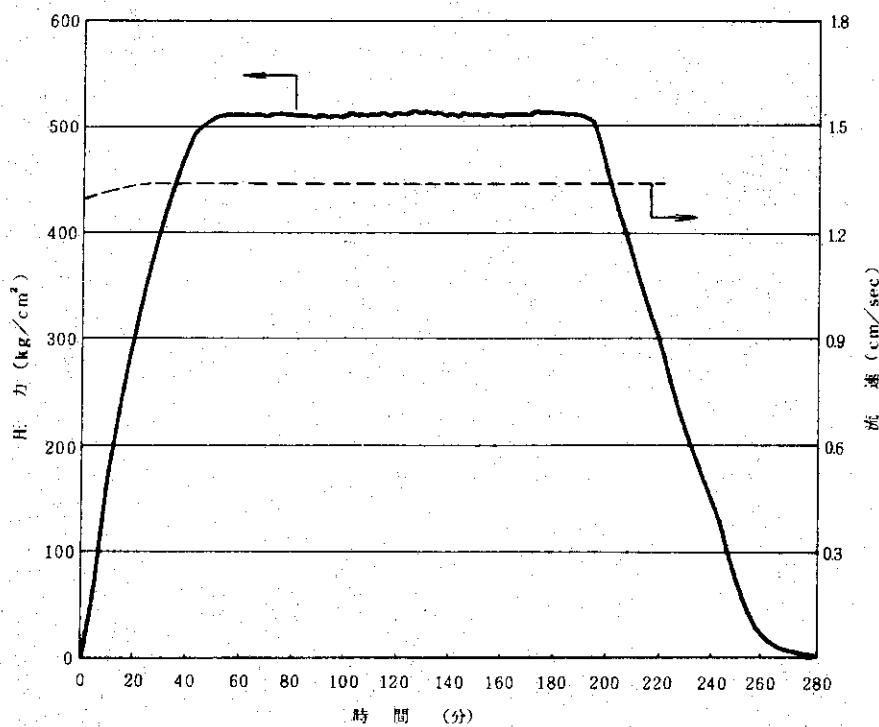


図5 高水圧試験条件

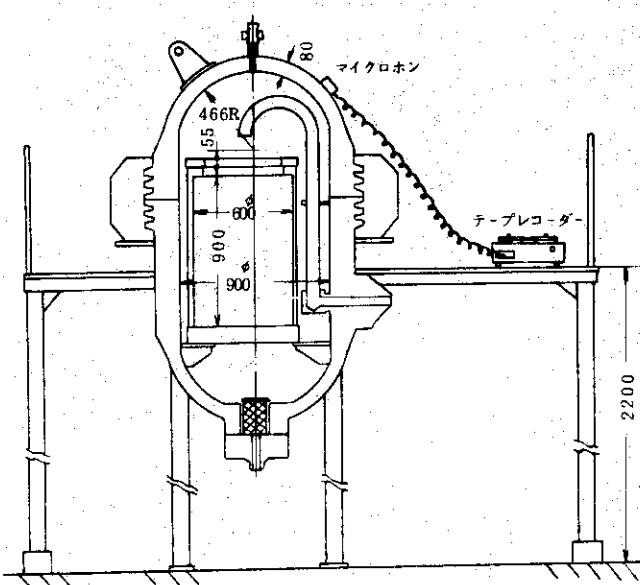


図6 マイクロホン取付位置図

3.3 圧縮試験

試験No C-1からC-11までについて3.1で述べた圧縮強度試験用供試験体をJISA1108に従って、アムスラー式圧縮試験機により一軸圧縮強度を測定した。圧縮試験は、試験Noあたり3個ずつ行ない、その平均値を採った。

4. 実験結果と考察

4.1 高水圧試験

高水圧試験を行なった後の各供試体の外観状態を表5に示す。

表5. 試験後の供試体の外観

試験 NO	供試体の 大きさ	供試体の形状	高水圧試験後の供試体の外観
C-1	50φ	ドラム缶付き	固化体に破壊状態見られず。 ドラム缶外被と固化体との空隙部分に外観変化あり。
C-2	"	"	"
C-3	200φ	裸	固化体表面にクラックが入る。固化体の角部にくずれ現象が著しくあらわれ。形状は球体になろうとする。
C-4	"	"	"
C-5	"	ドラム缶付き	試験NO C-1と同じ。
C-6	"	裸	試験NO C-3と同じ。
C-7	"	ドラム缶付き	試験NO C-1と同じ。
C-8	"	裸	試験NO C-3と同じ。
C-9	"	ドラム缶の上蓋 底板なし	水と接する部分にクラックが生ずるが外観形状は変化なし。
C-10	"	裸	試験NO C-3と同じ。
C-11	"	ドラム缶の上蓋 底板なしさらには (10cm×9ヶ所) 剥離	試験NO C-9と同じ。

表5より固化体を被覆するドラム缶容器の状態の変化が固化体にどのような影響を与えるかおよそ次のようなことがわかった。

1.) ドラム缶外被をはいだ裸の供試体については、固化体の表面に無数のクラック（ひび割れ）が生じ、そのクラックは、かなり内部にまで進行していた。このことは、固化体が有する空隙（水道）に高圧水が浸入していき、その空隙を押し広げるようにして固化体の組織を破壊するからであると思われる。なお、この現象は、裸の固化体の角部において顕著であり。このことは、固化体の配合の如何に關係なかった。

2.) ドラム缶付きの供試体については、ドラム缶外被と固化体との空隙部分には、ドラム缶が変形して空隙部分をうめ、また変形しきれないで残った空隙部分には、水が入っていたが、固化体自体にクラックなどの破壊状態は、認められなかった。その理由を次に考察する。

セメント固化体が乾燥収縮する際、ドラム缶が固化体を拘束^{*)}しているため、固化体の収縮によって生ずる応力は、バランスが保たれるので、それによる歪みは生じない。そのため、ドラム缶付きの固化体表面は、水道のない円滑なものであって、高圧水による水の浸入を許さない。従って、破壊状態は、認められないことになる。また、ドラム缶が圧力により外側から固化体に強く押付けられるため、水の浸入を抑制するとも考えられる。

3.) ドラム缶の上蓋および底板をはずしたものなど、固化体がドラム缶で何等か拘束されているものについては、水と直接、接触する部分は、多少のクラックが生じるが、固化体の形状は、そのまま保っていることがわかった。

* 拘束：供試体の側方へのふくらみを許さないこと。

4.2 固化体の露出度と吸水率との関係

高水圧によって固化体に浸入する水の量は、前途したクラックの発生と関連するので、高水圧試験前後の供試体重量を測定して、その吸水率を求めた。ここで固化体の露出度は、表3に示すとおりである。固化体の露出度と吸水率との関係を図7に示す。この図から概略次のことがいえる。

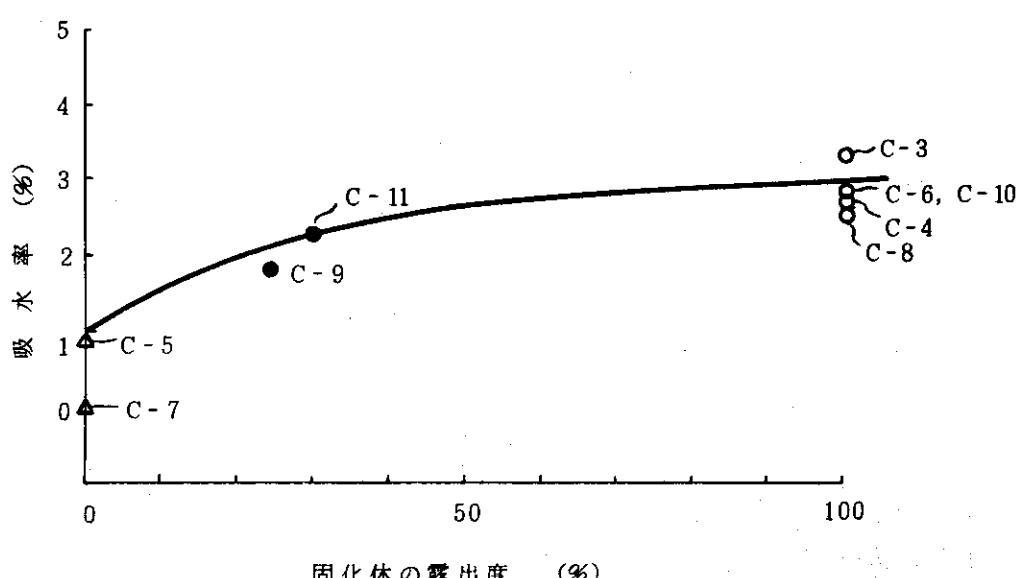


図7 固化体の露出度と吸水率との関係

固化体の吸水率は、重量比でドラム缶付きのものが固化体の重量の約1%，ドラム缶の上蓋および底板を外したもの2%，ドラム缶外被をはがしたもので3%，容量比にすると裸のもので約5%あった。

4.3 高水圧中におけるセメント固化体からの発生音分析

4.1で述べたように裸のセメント固化体は、高水圧下でクラックが生じるという現象が起きる。この破壊状況をつかむため、テープレコーダでクラックが発生するときの伝播音をとらえ、それを再生し、騒音分析計（指示騒音計）を使用して音の強弱を測定し、それによって発生するクラックの大小を推定した。図8に供試体C-10の場合の圧力線図とクラック音の指示値との関係を示す。ここで装置の冷凍ユニットや増圧機などの各種機器の暗騒音は、75ポンであった。この図からクラックは、 250Kg/cm^2 あたりから発生し、 300Kg/cm^2 （近辺から激しくなって、そのまま 500Kg/cm^2 まで続き、 500Kg/cm^2 ）の定圧保持時は、徐々に減少してき、降圧時には全く発生しなくなっていることがわかる。また、クラックの発生音を加圧時間と対応してみた場合、加圧開始して12分頃からクラックが入り始め、徐々に激しくなって75分後には大部分のクラックは出つくしてしまい、その後は散発的に出るが、急激に激少することがわかる。

4.4 一軸圧縮強度

試験NO C-1からC-11までの供試体の一軸圧縮強度を表6に示す。この表より圧縮強

表6. 使用供試体の一軸圧縮強度 (kg/cm^2)

試験 NO	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	C-7	C-8	C-9	C-10	C-11
圧縮強度 (kg/cm^2)	348	348	392	492	492	295	178	328	367	398	398

度は、すべて 150kg/cm^2 以上であって、暫定指針¹⁾が提案している水深5000m程度の場合、配合強度（一軸）は、 150kg/cm^2 以上にするのがよいという項を十分に満足している。試験NO C-7の供試体は、セメントに比して樹脂の配分が多かったためか、セメントの結合力が弱く、従って、圧縮強度は、他の供試体に比較して低いものを示した。

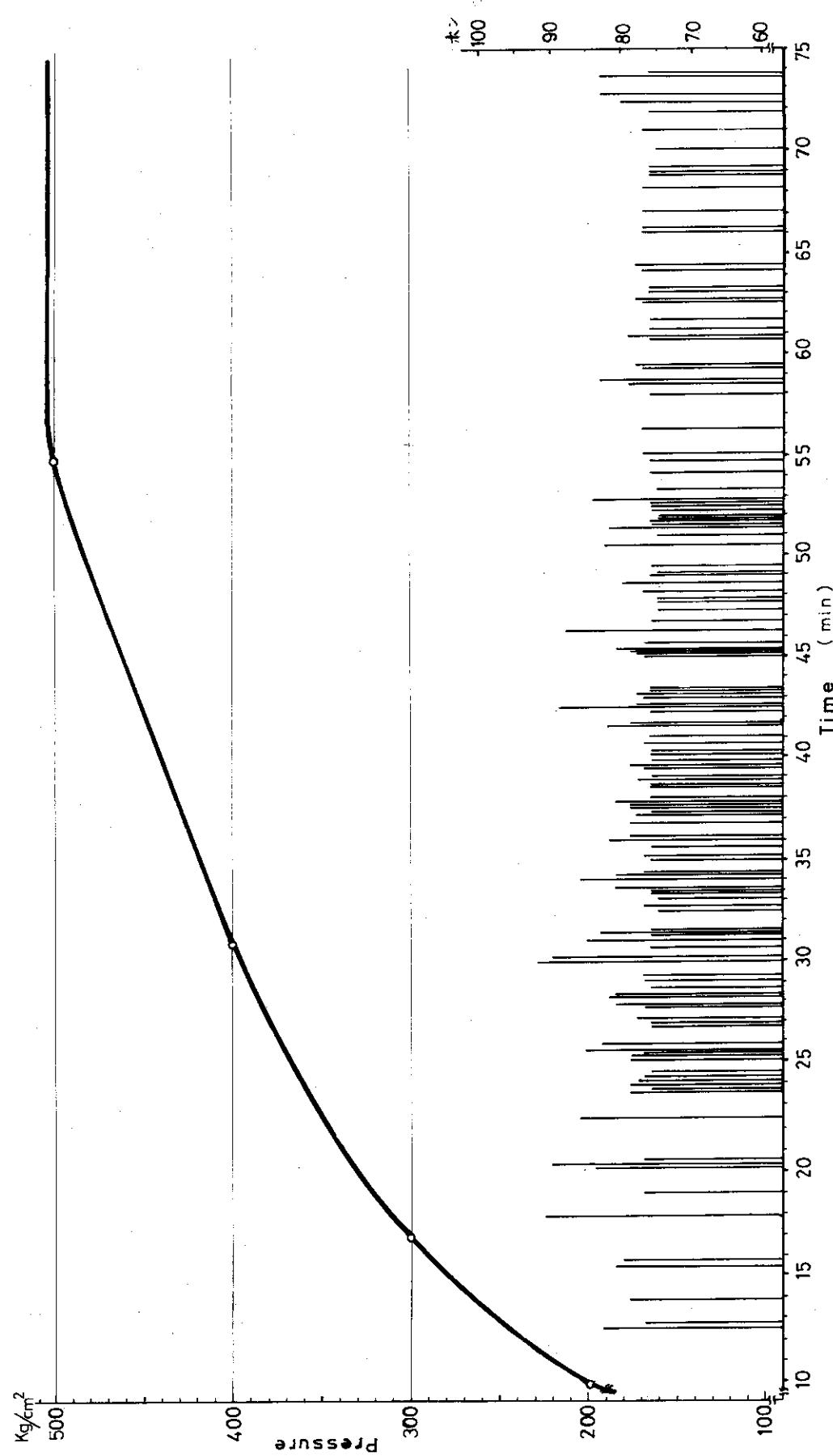


図 8 圧力とクラック音の関係

5. 結 言

深海底 5000m (圧力 500 kg/cm^2 , 水温 2°C , 流速 $1 \sim 2 \text{ cm/sec}$) を模擬した実規模大セメント均一固化体の高水圧試験で得られた結論は以下のとおりである。

- 1.) ドラム缶付きのセメント固化体ではドラム缶外被と固化体との間に生じる不可避的な空隙部分は変形により減少するが、固化体自体にひび割れなどの破壊状態は認められない。
- 2.) ドラム缶の上蓋、底板を外すしたものなど、ドラム缶で何等か拘束されている固化体では、水と直接接する部分に多少のひび割れが発生するけれども、形状の変化はない。
- 3.) ドラム缶容器を全く具備しない裸のセメント固化体では高水圧による固化体内部への水の浸入により、特に固化体の角部に顕著な崩れ現象が見られる。従って、固化体それ自体では、 500 kg/cm^2 の圧力下で健全性を保つことはできない。

終りに本研究実施にあたり、装置製作、実験および結果の解析に貴重なご討論、ご協力をいただいた日本原子力研究所廃棄物処分開発室伊藤彰彦室長、動力炉・核燃料開発事業団・江村悟氏に厚くお礼申し上げます。また、実験の実施にあたり多大のご援助をいただいた日本原子力研究所廃棄物処分開発室の諸氏に厚く謝意を表します。

6. 参考文献

- 1.) 環境安全専門部会（放射性固体廃棄物分科会ワーキンググループ），試験的海洋処分用低レベル放射性廃棄物のセメント固化体に関する暫定指針，昭和 48 年 6 月。
- 2.) 江村、松鶴、比佐、関：セメント固化体からの ^{137}Cs の浸出，JAERI-M 5779, 1974
- 3.) 阿部博俊他：原子力発電所廃棄物のドラム缶容器づめセメント固化体の高水圧下の力学的挙動に関する実験的検討（第 1 報），電力中央研究所，技術第 2 研究所報告（研究報告：71105），1971。
- 4.) 佐々木忠義他 海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究，日本海洋学会誌，Vo 1, 19, 20, 21, 22, No 1, 2, 3, 4
- 5.) K. W. Pearce and J. D. Vincent : Investigation into the effects of Deep sea pressure on waste materials and disposal containers., U. K. A. E. A. Research Group, Atomic Energy Research Establishment HARWELL. HL63/4587, 1963
- 6.) USAEC : Sea container test and evaluation. TID 13226, 1961.
- 7.) W. H. King and S. S. Hill Inreestigation into the Effects of deep-sea pressures on Disposal Pack - ages. AERE Harwell, HL75/987 (C22) 1975.