

JAERI-M
89-200

放射性廃棄物固化体へのプラスチック
コーティングによる防水効果

1989年12月

伊藤 彰彦*・梁 尚**・新妻 文明**
佐藤 護**・松鶴 秀夫

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

放射性廃棄物固化体へのプラスチックコーティングによる防水効果

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

伊藤 彰彦*・梁 尚**・新妻 文明**

佐藤 護**・松鶴 秀夫

(1989年11月4日受理)

放射性廃棄物固化体からの放射性核種の浸出は、固化体中へ浸透した水を媒体として起こる。プラスチックフィルムの透水性とコーティングのない模擬廃棄物固化体への水の浸透とを測定することにより、プラスチックコーティングを施した固化体への水の浸透防止効果（防水効果）の評価を行なった。その結果、プラスチックコーティングにより著しい防水効果が得られるとの結論に達した。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

* (財)日本皮革研究所

** 東電環境エンジニアリング(株)

Waterproof Effect of Plastic Coating on Radioactive Waste Solids

Akihiko ITO^{*}, Hisashi YANA^{**}, Fumiaki NIIZUMA^{**}
Mamoru SATO^{**} and Hideo MATSUZURU

Department of Environmental Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November 4, 1989)

Leaching of Radionuclides from the radioactive waste solids occurs through the water media penetrated into the waste solids. Water permeability of plastic films and rate of water penetration into the waste solids without plastic coating have been determined, then the water proof effect of the plastic coating in the waste solids is evaluated.

It is concluded that an appreciable water proof effect could be expected by means of plastic coating on the radioactive waste solids.

Keywords : Plastic Coating, Plastic Film, Water Permeability, Water Proof Effect, Radioactive Waste Solid, Low-density Polyethylene, Unsaturated Polyester, Polyvinyl Ester, Leaching of Radionuclide, Moisture Permeability

目 次

1. 緒 言	1
2. プラスチックフィルムの透湿性	1
2.1 試験目的	1
2.2 試験方法	2
2.3 計算方法	2
2.4 結果および考察	2
3. プラスチックフィルムの透水性	3
3.1 試験目的	3
3.2 試験方法	4
3.3 計算方法	4
3.4 結果および考察	4
4. 放射性廃棄物プラスチック固化体への水の浸透性	5
4.1 試験目的	5
4.2 試験用固化体	5
4.3 試験方法	6
4.4 結果および考察	6
5. プラスチックコーティングの防水効果	7
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Moisture Permeability of Plastic Films	1
2.1 Objectives	1
2.2 Experimental	2
2.3 Method of Calculation	2
2.4 Results and Discussion	2
3. Water Permeability of Plastic Films	3
3.1 Objectives	3
3.2 Experimental	4
3.3 Method of Calculation	4
3.4 Results and Discussion	4
4. Water Penetration into Radioactive Waste Solids	5
4.1 Objectives	5
4.2 Simulated Radioactive Waste Solids	5
4.3 Experimental	6
4.4 Results and Discussion	6
5. Water Proof Effect of Plastic Coatings	7
References	8

1. 緒 言

原子力発電所から発生する放射性廃棄物固化体からの放射性核種の浸出性については、処分の安全評価に関連して種々報告されている¹⁻⁵⁾。著者らは、各種廃棄物（蒸発缶濃縮廃液、使用済みイオン交換樹脂および焼却灰）のプラスチック固化体の浸出性について、一連の試験⁵⁾を実施したが、これらと関連して、固化体内部への水の浸透抑制効果が期待されるプラスチックコーティングに関し検討を行なった。すなわち、その効果を調べるため、固化体の固化材であるプラスチックのフィルムの透水性、透湿性を評価し、また、固化体への水の浸透について測定および考察を行なった。

固化材と同種の材料を用いて固化体表面をコーティングし、水の浸透を抑制することにより固化体の放射性核種の浸出性を低減させる試みは、ビチューメン固化体に対しなされている⁴⁾。この試みでは、コーティングされた固化体を用いて浸出試験を行なったが、試験期間内には浸出水中に放射性核種は検出されなかった。しかし、放射性廃棄物処分の安全性は長期にわたって評価すべきものであるから、本試験では限られた期間で長期の予測ができるように、コーティング材料のフィルムを用いた透湿、透水の試験と、コーティングを施していない固化体への水の浸透を測定し、その両者からコーティングの防水効果の考察をおこなった。その方法の概要は下記の通りである。

フィルムの透湿量および透水量の測定は、フィルムを透過した水分を乾燥剤に吸収させ、乾燥剤の重量変化を測定する吸収法を用い、低密度ポリエチレン、不飽和ポリエステルおよびポリビニルエステルの各フィルムについて測定した。また、コーティングを施していない固化体（4.5 cm ϕ x 4.4 cm H）を常圧下で脱イオン水に浸漬した後、これを切断し、含有される塩類結晶の水の浸入による変化を顕微鏡を用いて観察することにより、水の浸透距離を測定した。さらに、コーティングを水が透過するプロセスがコーティングを施した固化体への水の浸透の律速段階であると考え、両者を比較してコーティングによる水の浸透抑制効果を推定した。

2. プラスチックフィルムの透湿性

2.1 試験目的

材料の水蒸気に対する透過性は透湿性と呼ばれる。透湿性は、空気中からの水分の吸収または逃散により品質低下をおこすような商品の適切な防湿包装材料の選定や有効保存期間を評価するために必要なデータである。このため、透湿性は種々のプラスチック材料および条件下で求められている⁶⁾。本試験における吸収法による測定装置およびデータの良否を判定して、透水性測定へと応用するため、低密度ポリエチレンフィルムについて透湿性を測定した。

なお、低密度ポリエチレンフィルムを用いた理由は、ポリエチレン固化体のコーティングに

1. 緒 言

原子力発電所から発生する放射性廃棄物固化体からの放射性核種の浸出性については、処分の安全評価に関連して種々報告されている¹⁻⁵⁾。著者らは、各種廃棄物（蒸発缶濃縮廃液，使用済みイオン交換樹脂および焼却灰）のプラスチック固化体の浸出性について、一連の試験⁶⁾を実施したが、これらと関連して、固化体内部への水の浸透抑制効果が期待されるプラスチックコーティングに関し検討を行なった。すなわち、その効果を調べるため、固化体の固化材であるプラスチックのフィルムの透水性，透湿性を評価し，また，固化体への水の浸透について測定および考察を行なった。

固化材と同種の材料を用いて固化体表面をコーティングし，水の浸透を抑制することにより固化体の放射性核種の浸出性を低減させる試みは，ビチューメン固化体に対しなされている⁴⁾。この試みでは，コーティングされた固化体を用いて浸出試験を行なったが，試験期間内には浸出水中に放射性核種は検出されなかった。しかし，放射性廃棄物処分の安全性は長期にわたって評価すべきものであるから，本試験では限られた期間で長期の予測ができるように，コーティング材料のフィルムを用いた透湿，透水の試験と，コーティングを施していない固化体への水の浸透を測定し，その両者からコーティングの防水効果の考察をおこなった。その方法の概要は下記の通りである。

フィルムの透湿量および透水量の測定は，フィルムを透過した水分を乾燥剤に吸収させ，乾燥剤の重量変化を測定する吸収法を用い，低密度ポリエチレン，不飽和ポリエステルおよびポリビニルエステルの各フィルムについて測定した。また，コーティングを施していない固化体（4.5 cm ϕ x 4.4 cm H）を常圧下で脱イオン水に浸漬した後，これを切断し，含有される塩類結晶の水の浸入による変化を顕微鏡を用いて観察することにより，水の浸透距離を測定した。さらに，コーティングを水が透過するプロセスがコーティングを施した固化体への水の浸透の律速段階であると考え，両者を比較してコーティングによる水の浸透抑制効果を推定した。

2. プラスチックフィルムの透湿性

2.1 試験目的

材料の水蒸気に対する透過性は透湿性と呼ばれる。透湿性は，空気中からの水分の吸収または逃散により品質低下をおこすような商品の適切な防湿包装材料の選定や有効保存期間を評価するために必要なデータである。このため，透湿性は種々のプラスチック材料および条件下で求められている⁶⁾。本試験における吸収法による測定装置およびデータの良否を判定して，透水性測定へと応用するため，低密度ポリエチレンフィルムについて透湿性を測定した。

なお，低密度ポリエチレンフィルムを用いた理由は，ポリエチレン固化体のコーティングに

はその固化体と同じ材料が使用されることと、種々の厚みのフィルムが比較的容易に入手できるためである。

2.2 試験方法

試験装置(図1)の容器A, Bの間に低密度ポリエチレンフィルムを固定し, A室内に脱イオン水20mlを入れた。マイクロチューブポンプのスイッチを入れ, A室からB室にフィルムを透過した水蒸気をU字管内の塩化カルシウムに吸収させ, 塩化カルシウムの重量変化を測定して, フィルムを透過した水蒸気量をもとめた。この試験は室温(約25°C)で行ない, 厚さ20, 30, 60および80 μ mの低密度ポリエチレンフィルムを使用した。

2.3 計算方法

透湿量, Qおよび透湿度, P_r を計算するには, 式(1)および式(2)を用いる。

$$Q \text{ (g/m}^2\text{)} = \frac{W_2 - W_1}{a} \dots\dots\dots (1)$$

$$P_r \text{ (g/m}^2\text{/day)} = \frac{W_2 - W_1}{a(t_2 - t_1)} \dots\dots\dots (2)$$

ここで,

w_1 : 時間 t_1 での乾燥剤入りU字管の重量

w_2 : 時間 t_2 での乾燥剤入りU字管の重量

a : フィルム面積 ($7.07 \times 10^{-7} \text{m}^2$)

2.4 結果および考察

種々の厚みのフィルムを用いた場合の透湿量の時間変化を図2に示す。図2において, 20 μ mと40 μ mのフィルムでは試験開始から終了まで透水量は直線的に増加した。厚み60 μ mと80 μ mのフィルムでは, とともに試験開始から3日目から6日目まではほぼ直線関係にあり, 透湿度(線の勾配に相当する)の順はフィルムの厚みの順の逆になる。しかし, 2日目までとそれ以降とは勾配が異なる。

図3に, 図2の3日目を原点にとったプロットを示す。この直線関係から計算した透湿度を表1に示す。

表1の値を2.1節で述べたように文献値と比べると次の通りである。全く同条件の文献値は見当たらないので, フィルム厚み20 μ mのポリエチレンフィルムの39°C, 水蒸気圧23mmHg (25°Cにおける飽和水蒸気圧に等しい)における透湿度は23.1g/m²/day⁶⁾であるので, 透湿度の見かけの活性化エネルギーを7-8 Kcal/moleとして温度補正を行なうと25°C, 飽和水蒸気圧での透湿度は13g/m²/dayとなる。表1の1/2の値であるが, 製膜法, 製膜条件などにより, この程度の違いはありうるので, 妥当な値と考えられる。

一方、試験装置の空試験として、厚み60 μ mのフィルムを用い、試験装置のA室に水を入れないで上述と同様の試験を行なった。これは、試験装置の気密性およびプラスチックフィルム等に予め存在する水分が試験に及ぼす影響を調べるためである。その結果と、同じ厚みのフィルムの透湿度との比較を図4に示す。図より明らかなように、試験開始から2日以上経過すると、空試験による塩化カルシウムの吸収水分量は透湿度試験のその1/10以下となり、気密性およびフィルム等に予め存在する水分の影響は無視しうるものと考えられる。

定常状態における透湿度に関しては、式(3)があり、この式によれば、透湿度はフィルムの厚みに反比例する。

$$Q = D \cdot S \frac{(P_A - P_B) t}{\ell} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$P_r = \frac{Q}{t} = D \cdot S \frac{P_A - P_B}{\ell} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、

- D : フィルム中での湿気の拡散係数
- S : フィルムに対する湿気の溶解度定数
- P_A, P_B : フィルムの両側のA室, B室の水蒸気圧
- t : 時間
- ℓ : フィルムの厚み

フィルムの各厚みに対し透湿度の実測値をプロットして図5に示す。また、フィルム厚み20 μ mで実測した透湿度を標準値として用い、式(4)により計算した他の厚みにおける透湿度の値をプロットした曲線を同じく図5に示す。

図において、透湿度の実測値はフィルムの厚みが増しても、式(4)から予想されるほど低下しないことが分かる。この原因としては、フィルムの吸湿性によるとする説と、表面部分と内部の構造に相違あるためとする説がある⁷⁾が、図2のようにフィルム厚みが増すと時間の経過に従って見かけ上透湿度が低下する傾向があることから、フィルムの吸湿性の影響が主な原因と考えられる。

3. プラスチックフィルムの透水性

3.1 試験目的

透湿度は材料が水蒸気を透過する性質であり、その測定方法は2章で述べた通りである。

放射性廃棄物固化体からの放射性核種の浸出を試験する場合には、固化体は水に浸漬された条件で測定が行なわれる。従って、固化体表面に施されるべきコーティングの透水性は、浸出試験条件との関連から、コーティングと同質のフィルムの片面が水(液体)に浸漬される条件で測定することが適当と考えられる。そこで、透湿度測定方法に準じて、プラスチックフィルム的一方を水で満たし、他方を乾燥空気として透水性の測定を行ない、そのデータをプラスチ

一方、試験装置の空試験として、厚み60 μm のフィルムを用い、試験装置のA室に水を入れないで上述と同様の試験を行なった。これは、試験装置の気密性およびプラスチックフィルム等に予め存在する水分が試験に及ぼす影響を調べるためである。その結果と、同じ厚みのフィルムの透湿度との比較を図4に示す。図より明らかなように、試験開始から2日以上経過すると、空試験による塩化カルシウムの吸収水分量は透湿度試験のその1/10以下となり、気密性およびフィルム等に予め存在する水分の影響は無視しうるものと考えられる。

定常状態における透湿度に関しては、式(3)があり、この式によれば、透湿度はフィルムの厚みに反比例する。

$$Q = D \cdot S \frac{(P_A - P_B) t}{l} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$P_r = \frac{Q}{t} = D \cdot S \frac{P_A - P_B}{l} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、

- D : フィルム中での湿気の拡散係数
- S : フィルムに対する湿気の溶解度定数
- P_A, P_B : フィルムの両側のA室, B室の水蒸気圧
- t : 時間
- l : フィルムの厚み

フィルムの各厚みに対し透湿度の実測値をプロットして図5に示す。また、フィルム厚み20 μm で実測した透湿度を標準値として用い、式(4)により計算した他の厚みにおける透湿度の値をプロットした曲線を同じく図5に示す。

図において、透湿度の実測値はフィルムの厚みが増しても、式(4)から予想されるほど低下しないことが分かる。この原因としては、フィルムの吸湿性によるとする説と、表面部分と内部の構造に相違あるためとする説がある⁷⁾が、図2のようにフィルム厚みが増すと時間の経過に従って見かけ上透湿度が低下する傾向があることから、フィルムの吸湿性の影響が主な原因と考えられる。

3. プラスチックフィルムの透水性

3.1 試験目的

透湿度は材料が水蒸気を透過する性質であり、その測定方法は2章で述べた通りである。

放射性廃棄物固化体からの放射性核種の浸出を試験する場合には、固化体は水に浸漬された条件で測定が行なわれる。従って、固化体表面に施されるべきコーティングの透水性は、浸出試験条件との関連から、コーティングと同質のフィルムの片面が水(液体)に浸漬される条件で測定することが適当と考えられる。そこで、透湿度測定方法に準じて、プラスチックフィルム的一方を水で満たし、他方を乾燥空気として透水性の測定を行ない、そのデータをプラスチ

ックコーティングの固化体への水の浸透の抑制効果の評価に用いた。

プラスチックフィルムとしては、低密度ポリエチレン、不飽和ポリエステルおよびポリビニルエステルのフィルムをそれぞれ使用した。

3.2 試験方法

(1) 常温における透水性試験

透水性試験装置（図6）の容器A、Bの間にプラスチックフィルムを密着固定し、A室側のフィルム面が水に浸るように脱イオン水250mlをA室内に入れた。マイクロチューブポンプのスイッチを入れ、B室内の空気を図のように循環させてU字管内の塩化カルシウムにAからB室へフィルムを透過した水分を吸収させ、試験前後のU字管の重量変化を測定した。なお、この試験は25°Cで実施したが、低密度ポリエチレンフィルムについてのみ13°Cで行なった。

(2) 2°Cにおける透水性試験

透水性試験装置を2°Cに保った冷蔵庫に入れ、常温における透水性試験と同様に試験を実施した。なお、U字管は取外し後デシケータ中に一夜放置し、温度を室温に戻した後重量を測定した。

3.3 計算方法

透湿度および透湿度の計算式（式(1)および(2)）により計算する。

3.4 結果および考察

(1) 透水性と透湿度の比較

常温における低密度ポリエチレンフィルムの透水量と時間との関係を図7に、これに基づき計算した透水性を表2に示す。透水量はほぼ時間に比例して増加する。透湿度（2章参照）と透水性の比較を表3に示す。

透水性は透湿度に比べ、やや大きな値（約1.5倍）となる。

(2) 各種フィルムの透水性

常温における不飽和ポリエステルフィルムとポリビニルエステルフィルムの透水量と時間との関係を図8および9に、これらの図に基づき計算した透水性を表4および5に示す。いずれの図においても、透水量はほぼ時間に比例して増加する。

不飽和ポリエステルおよびポリビニルエステルはフィルムを作成するのにキャスト法を用いるため、ポリエチレンのように薄いフィルムを得ることが困難であり、表のように150 μ mを超える厚みのフィルムを用いた。2章に述べたように、フィルム中の水の拡散係数が一定であれば透水性はフィルムの厚みに反比例する筈である。しかし、表3および4のデータを

プロットした結果、反比例の関係ではなく、ほぼ0.4乗に反比例する。この関係を図10に示す。その原因については、透湿度とフィルムの厚みの関係について述べたことと同じく、フィルム中の水の拡散係数がフィルムの吸水によって影響を受けるためと考えられる。

次に、2°Cにおける各種フィルムの透水量と時間の関係を図11に示す。2°Cにおいても、各フィルムとも、透水量はほぼ時間に比例して増加する。直線の勾配から求めた各種フィルムの2°Cにおける透湿度を表6に示す。しかし、フィルムの厚みが異なるので、厚みによる補正をして比較しなくてはならない。そのため、図10の関係が成立するとして補正した室温および2°Cにおける厚み150 μ mの各種フィルムの透湿度を表7に示す。

表7において、低密度ポリエチレンの透湿度は、不飽和ポリエステルに比べ約1/3、ポリビニルエステルに比べ約2/5であり、他種のフィルムよりも防水性に優れている。このような傾向は、ポリエチレンに比べ不飽和ポリエステルおよびポリビニルエステルは極性が大であるところから、予期しうる結果である。

(3) 透水性の温度依存性

透湿度、 P_r' に対する温度の影響を調べるため、Arrheniusの式、 $P_r' = Ae^{-E/RT}$ を用いて見かけの活性化エネルギー、 E を求めた。

ここに、

- A : 頻度因子
- R : 気体定数
- T : 絶対温度

表7の値をArrheniusの式により、 $1/T$ に対し P_r' をプロットした結果を図12に示す。図の直線の勾配から求めた見かけの活性化エネルギーの値を表8に示す。見かけの活性化エネルギーの値は5-7 Kcal/moleで、透湿度のそれと殆ど変わらない値⁹⁾である。

4. 放射性廃棄物プラスチック固化体への水の浸透性

4.1 試験目的

透湿度および透水性の試験に使用したプラスチックフィルムと同種の固化剤を用いて製作した模擬濃縮廃液固化体への水の浸透について、コーティングを施していない模擬固化体への水の浸透を実験的に調べ、固化剤と同一材質でコーティングを施した場合の水の浸透について評価を行なった。

4.2 試験用固化体

50 ℓ サイズ模擬濃縮廃液プラスチック固化体(コールド)からコアを採取し、更に金鋸で長さ方向に直角に切断し、表面をサンドペーパー(JIS R 6251 #240 A. A.)で研磨して、

プロットした結果、反比例の関係ではなく、ほぼ0.4乗に反比例する。この関係を図10に示す。その原因については、透湿度とフィルムの厚みの関係について述べたことと同じく、フィルム中の水の拡散係数がフィルムの吸水によって影響を受けるためと考えられる。

次に、2°Cにおける各種フィルムの透水量と時間の関係を図11に示す。2°Cにおいても、各フィルムとも、透水量はほぼ時間に比例して増加する。直線の勾配から求めた各種フィルムの2°Cにおける透湿度を表6に示す。しかし、フィルムの厚みが異なるので、厚みによる補正をして比較しなくてはならない。そのため、図10の関係が成立するとして補正した室温および2°Cにおける厚み150 μ mの各種フィルムの透湿度を表7に示す。

表7において、低密度ポリエチレンの透湿度は、不飽和ポリエステルに比べ約1/3、ポリビニルエステルに比べ約2/5であり、他種のフィルムよりも防水性に優れている。このような傾向は、ポリエチレンに比べ不飽和ポリエステルおよびポリビニルエステルは極性が大であるところから、予期しうる結果である。

(3) 透水性の温度依存性

透湿度、 P_r' に対する温度の影響を調べるため、Arrheniusの式、 $P_r' = Ae^{-E/RT}$ を用いて見かけの活性化エネルギー、 E を求めた。

ここに、

- A : 頻度因子
- R : 気体定数
- T : 絶対温度

表7の値をArrheniusの式により、 $1/T$ に対し P_r' をプロットした結果を図12に示す。図の直線の勾配から求めた見かけの活性化エネルギーの値を表8に示す。見かけの活性化エネルギーの値は5-7 Kcal/moleで、透湿度のそれと殆ど変わらない値⁹⁾である。

4. 放射性廃棄物プラスチック固化体への水の浸透性

4.1 試験目的

透湿度および透水性の試験に使用したプラスチックフィルムと同種の固化剤を用いて製作した模擬濃縮廃液固化体への水の浸透について、コーティングを施していない模擬固化体への水の浸透を実験的に調べ、固化剤と同一材質でコーティングを施した場合の水の浸透について評価を行なった。

4.2 試験用固化体

50 ℓ サイズ模擬濃縮廃液プラスチック固化体(コールド)からコアを採取し、更に金鋸で長さ方向に直角に切断し、表面をサンドペーパー(JIS R 6251 #240 A. A.)で研磨して、

直径 4.5 cm, 高さ 4.4 cm の試験用固化体を製作した。試験用固化体は表 9 に示す 3 種である。

4.3 試験方法

固化体は I A E A 提案の浸出試験法⁵⁾に従い, メタクリル酸メチル樹脂容器 (内容積 1 ℓ) に浸出水として脱イオン水 750 ℓ を入れ, その中に試験用固化体を浸漬した。浸出水温度 2 ℃, 常圧にて 100 日間浸漬した。浸出水の交換は試験開始後 1 週間は毎日 1 回, 2 週間目から 8 週間目まで週 1 回, その後は月 1 回実施した。

浸漬済みの固化体は 2 週間シリカゲルを入れたデシケータ中に保管後, 縦軸方向にノミを用いて 2 分割した。分割面を実体顕微鏡を用いて観察し, 固化体中の模擬廃棄物 (Na_2SO_4 または $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$) の分散状況を調べた。固化体発面に近い部分は, 大きな粒子を除き, 廃棄物が水に溶解して分散してしまっているため, 顕微鏡では粒子が見えない。そこで, 粒子の残っている部分と溶解して見えなくなっている部分の境界 (図 13) を見出して写真撮影 (倍率 35 または 15) した。この境界を水の浸透した境界線として, 固化体表面とその境界線の距離を写真より求めた。

4.4 結果および考察

固化体断面かの顕微鏡写真を図 14 から 16 に示す。これらの写真から測定した水の浸透距離を表 10 に示す。結果を比較すると, C-1 のポリエチレン固化体に比べ, C-2 の不飽和ポリエステル固化体の水の浸透距離は約 3 倍である。C-3 のポリビニルエステル固化体では C-1 とほぼ等程度である。

濃縮廃液のプラスチック固化体では, 廃液は粉末状態に乾燥された後, 固化材と混合, 固化される。最高の廃棄物混入比はほぼ 60% で, その状態では, 廃液固形分の乾燥粉末は最密充填に近く, 廃液固形分乾燥粉末は互いに接触しあっている。このような固化体を浸出水に浸漬すると, 水は廃液固形分乾燥粉末を溶解しながら次第に固化体内部に浸透すると考えられる。

表 9 において, C-1 と C-2 の固化体の濃縮廃液の種類は同じであるが, C-1 より C-2 の方が廃棄物混入率が高い。このため, 同一時間内における水の浸透距離は C-2 の方が大きい (表 10)。他方, C-3 固化体の水の浸透距離は C-1 のそれとほぼ同じで, C-2 のその約 1/3 である。C-2 と C-3 とでは廃液の種類は異なる。この原因は固化材の透水性の差によるものではなく, 上述のように, 水は廃液乾燥粉末を溶解しながら浸透することから, 無水硫酸ナトリウムは四ホウ酸ナトリウムに比べ水に溶解しやすく, また, 結晶水をとって 10 水塩となる時, 著しく体積が膨張 (約 4.2 倍) することが影響していると考えられる。

高圧水中に浸漬された固化体への水の浸透についても測定した。500 kg/cm² に加圧した水中に 100 日間浸漬した C-1 固化体の顕微鏡写真を図 17 に示す。水の浸透距離は 1.97 - 2.55 であり, 常圧の場合の約 2 倍である。これは, 浸出試験結果と一致する⁵⁾

5. プラスチックコーティングの防水効果

廃棄物プラスチック固化体の表面にプラスチックコーティングを施した場合の、防水効果について評価をここで試みる。

コーティングの厚みと透水性との間に、図10のような関係があるものとし、各種フィルムが厚み1cm、2°Cの場合の透水性を表11に示す。

BWR濃縮廃液の不飽和ポリエステル固化体（廃棄物混入比60%、平均比重1.68）を2°C、常圧下で浸出水に浸漬した場合、水が固化体表面から深さ3mmまで浸透し、廃棄物の主成分である無水硫酸ナトリウムが飽和して溶解すると仮定し、不飽和ポリエステルコーティング（厚み10mm）を施した場合と施さない場合の所要時間を求め、比較する。厚み3mm、面積1m²の不飽和ポリエステル固化体（重量4.95kg）に含まれる無水硫酸ナトリウムの量は3.04kgである。これに対し、上記の仮定を適用すると、飽和溶解度は5.47%であるから、55.2kgの水が必要となる。この水量が厚み10mmのフィルムを浸透するのに必要な時間を表10の数値を用いて計算すると、低密度ポリエチレンで63年、不飽和ポリエステルで10年、ポリビニルエステルで12年を要する。これに対し、表9のC-2固化体（コーティングなし）では、表面から3mmの深さまで水が浸透するのに0.27年かかるので、不飽和ポリエステル10mmのコーティングにより所要時間が約37倍となり防水効果がある。この効果は、コーティングされていない固化体への水の浸透速度が低い場合は（例えば、廃棄物混入率が低ければ浸透速度は低い）、見かけの効果は小さくなる。一方、透水性の低いポリエチレンのようなコーティングを用いれば、より高い防水効果を期待することができる。

最後に、透湿性、透水性の測定装置などについて御指導いただいた環境安全研究部次長 和達嘉樹博士に感謝致します。

参 考 文 献

1. Matuzuru, H., Wadachi, Y., Ito, A. : "Leaching Behavior of Co-60 in Cement Composites", Atomkernenergie, 29, 287 (1977)
2. Matuzuru, H., Moriyama, N., Ito, A. : "Leaching Behavior of Ce-137 in Cement-Waste Composite", Health Physics, 32, 529 (1977)
3. Matuzuru, H., Ito, A. : "Leaching Behavior of Sr-90 in Cement Composites", Ann. Nucl. Energy, 4, 465 (1977)
4. 横山速一 : "アスファルト固化からの放射性核種浸出性 (その2) - PWR濃縮廃液アスファルトの浸出性-", 電力中央研究所報告 281006 (1981)
5. 日本原子力研究所・環境安全研究部・低レベル廃棄物処理処分研究室 : "プラスチック固化体の評価試験研究 (電力共研報告書)", 1982年
6. 高分子学会編 : "材料と水分ハンドブック", pp. 331-345, 1968年, 共立出版, 東京
7. 同上, pp. 346
8. IAEA : Technical Report Series No. 82, 1968

表1 低密度ポリエチレンフィルムの透湿度

フィルム厚さ (μm)	20	40	60	80
透湿度 ($\text{g}/\text{m}^2\text{day}$)	28.1	17.9	12.2	11.8

表2 常温におけるポリエチレンフィルムの透水性

フィルム厚さ (μm)	20	40	60	80
透水性 ($\text{g}/\text{m}^2\text{day}$)	35.5	29.0	23.2	20.1

表3 低密度ポリエチレンフィルムの透湿度と透水性の関係

フィルム厚さ (μm)	20	40	60	80
透水性 ($\text{g}/\text{m}^2\text{day}$)	35.5	29.0	23.2	20.1
透湿度 ($\text{g}/\text{m}^2\text{day}$)	28.1	17.9	12.2	11.8
透水性 / 透湿度	1.26	1.62	1.89	1.70

表4 常温における不飽和ポリエステルフィルムの透水性

フィルム厚さ (μm)	150	300	400
透水性 ($\text{g}/\text{m}^2\text{day}$)	159	135	115

表5 常温におけるポリビニルエスエルフィルムの透水性

フィルム厚さ (μm)	180
透水性 ($\text{g}/\text{m}^2\text{day}$)	119

表6 各種フィルムの2°Cにおける透水性

フィルム種類	低密度ポリエチレン (60 μ m)	不飽和ポリエステル (300 μ m)	ポリビニルエステル (180 μ m)
透水性 (g/m ² day)	15.1	47.0	50.4

表7 フィルム厚さ150 μ mの各種フィルムの試験温度および透水性

フィルム種類	試験温度 t(°C)	透水性 (g/m ² day)
低密度ポリエチレンフィルム	2.0	11.0
	13.0	17.0
不飽和ポリエステルフィルム	2.0	58.5
	25.0	159
ポリビニルエステルフィルム	2.0	53.5
	25.0	126

表8 各種フィルム透水性の見かけの活性化エネルギー

フィルム種類	低密度ポリエチレン	不飽和ポリエステル	ポリビニルエステル
活性化エネルギー Kcal/mole	5.3	7.0	5.3

表9 試験用固化体の組成

No.	C-1	C-2	C-3
固 化 材	低密度ポリエチレン	不飽和ポリエステル	ポリビニルエステル
廃 棄 物 主 成 分	Na_2SO_4	Na_2SO_4	$\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$
廃棄物混入比 (wt-%)	50	60	60

表10 固化体への水の浸透距離 (100日間)

No.	C-1	C-2	C-3
浸 透 距 離 (mm)	1.01 - 1.15	2.99 - 3.03	1.01 - 1.13

表11 厚み 1 cm の各種フィルムの透水性 (2°C)

フィルムの種類	低密度ポリエチレン	不飽和ポリエステル	ポリビニルエステル
透 水 度 ($\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$)	2.4	15	13

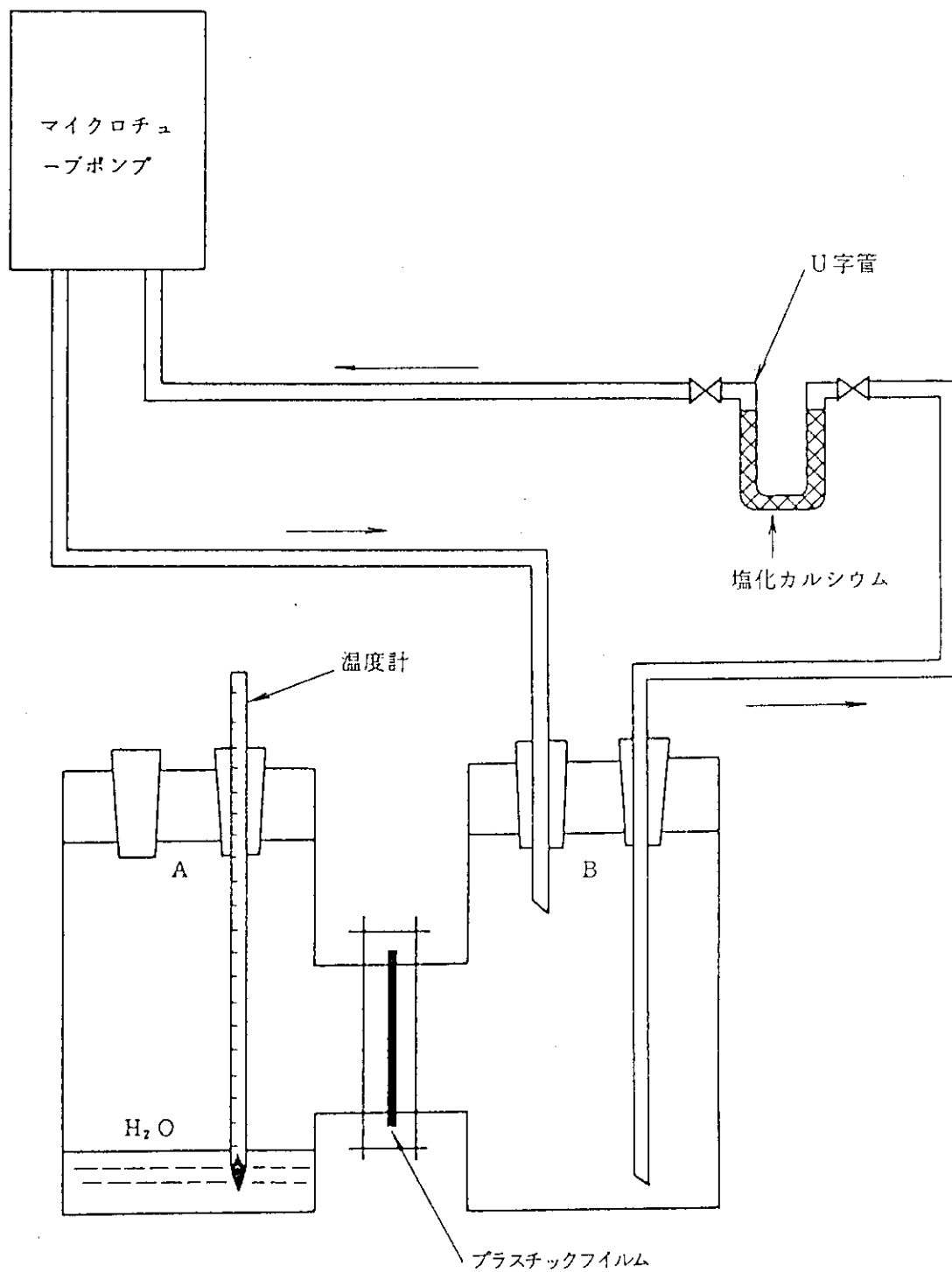


図1 透湿性試験装置

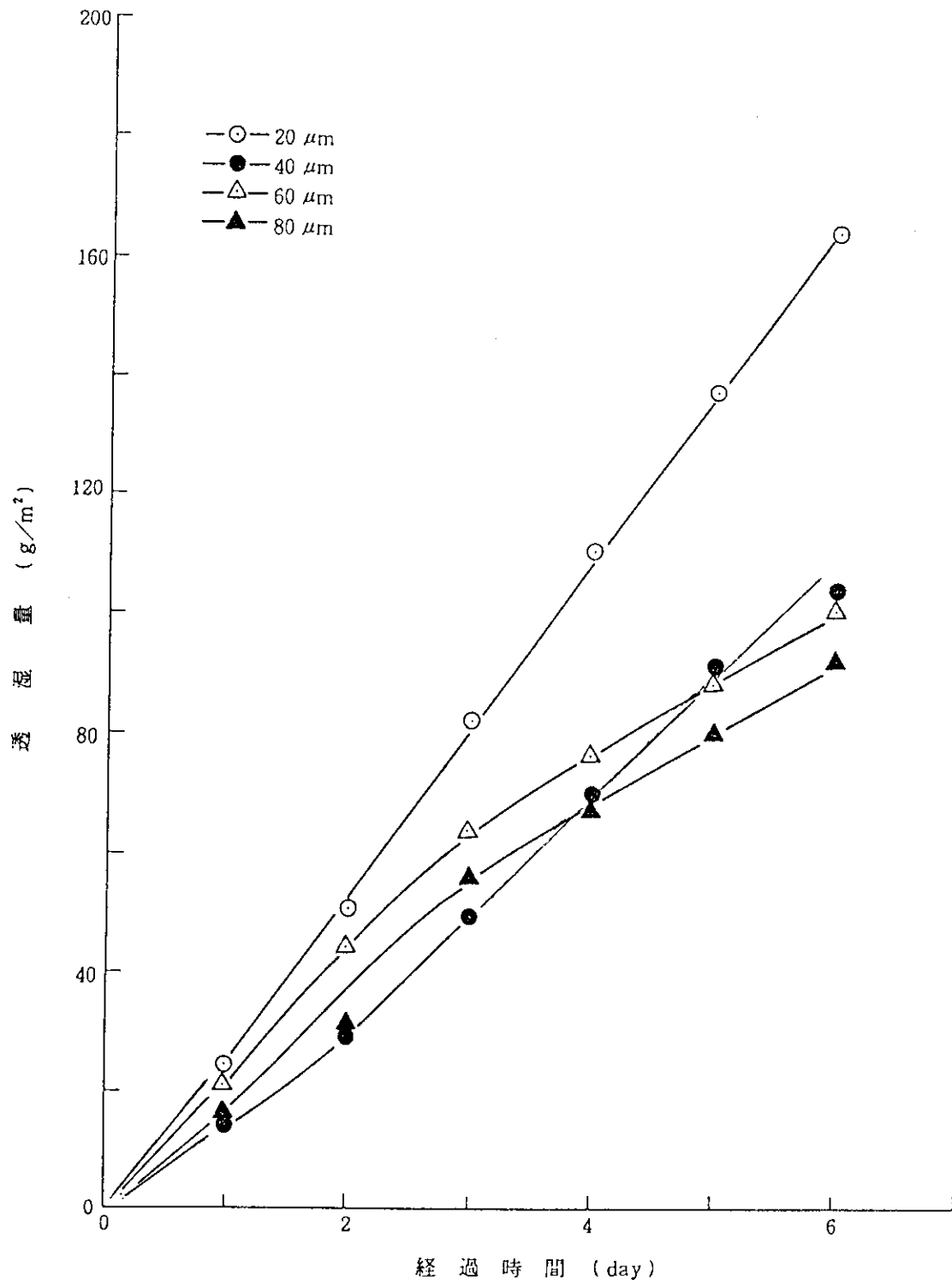


図2 低密度ポリエチレンフィルム透湿量の時間変化

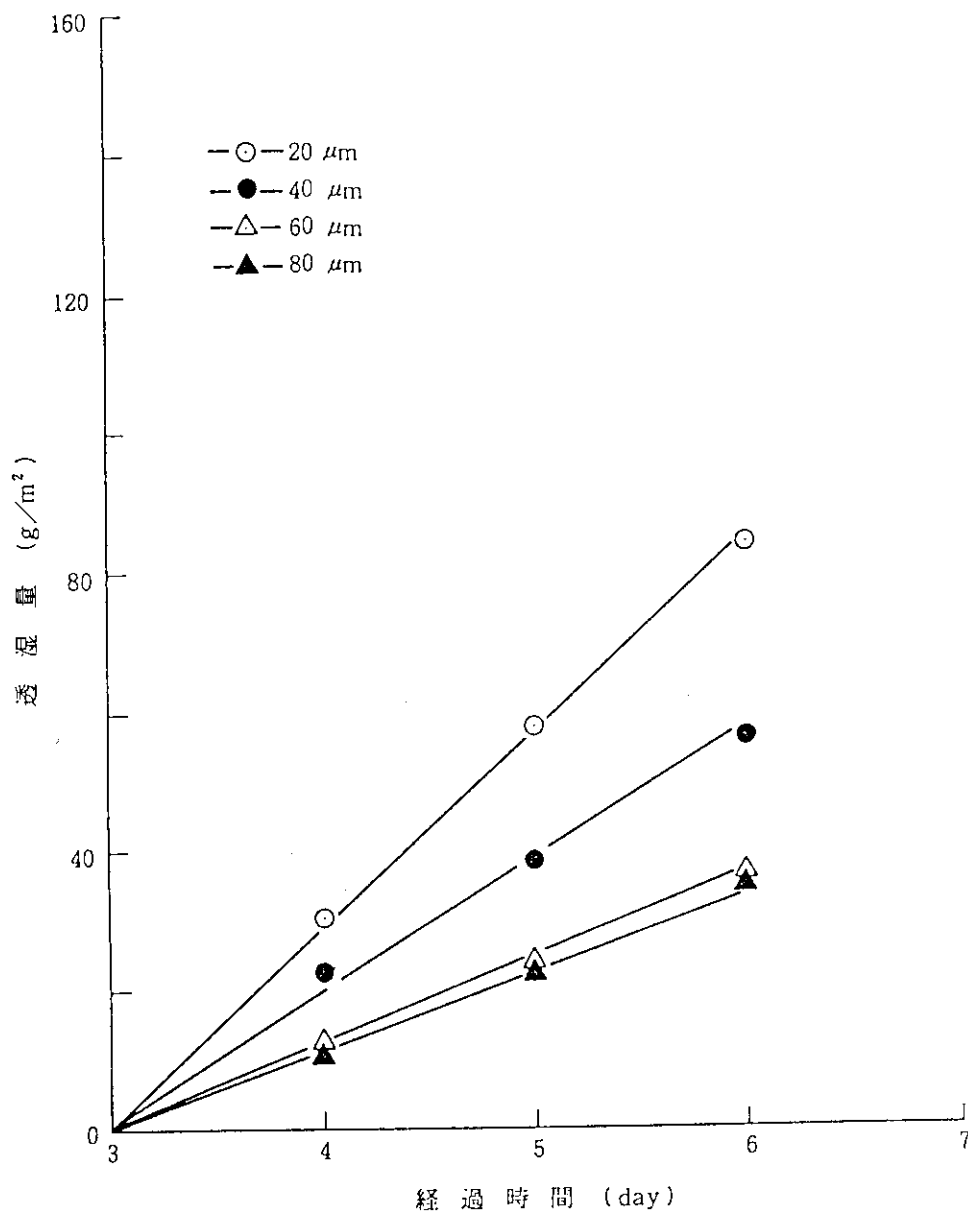


図3 低密度ポリエチレンフィルム透湿量の時間変化
(3日後の透湿量を原点とした)

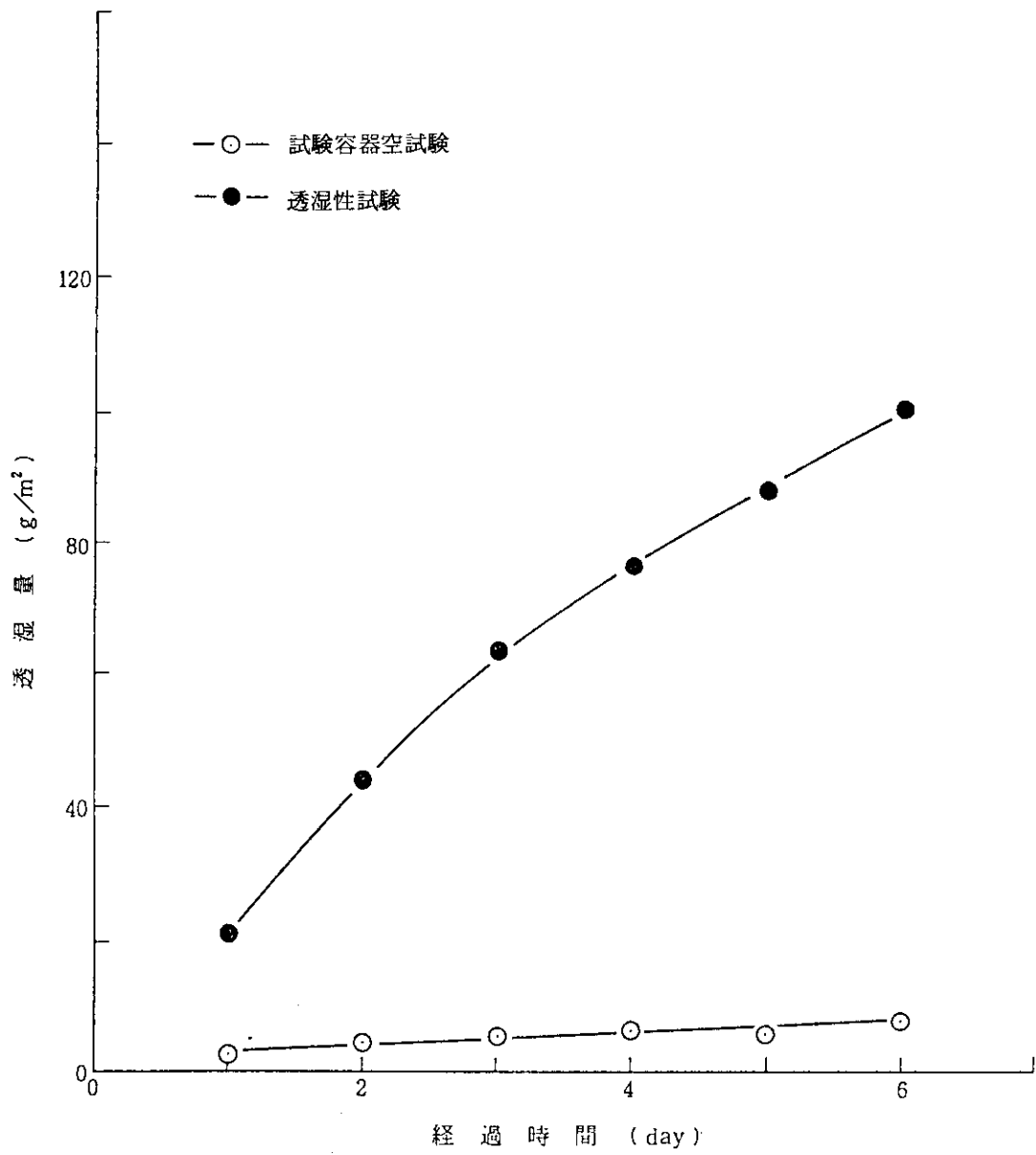


図4 試験容器空試験 (ポリエチレンフィルム厚さ $60\mu\text{m}$ 使用)

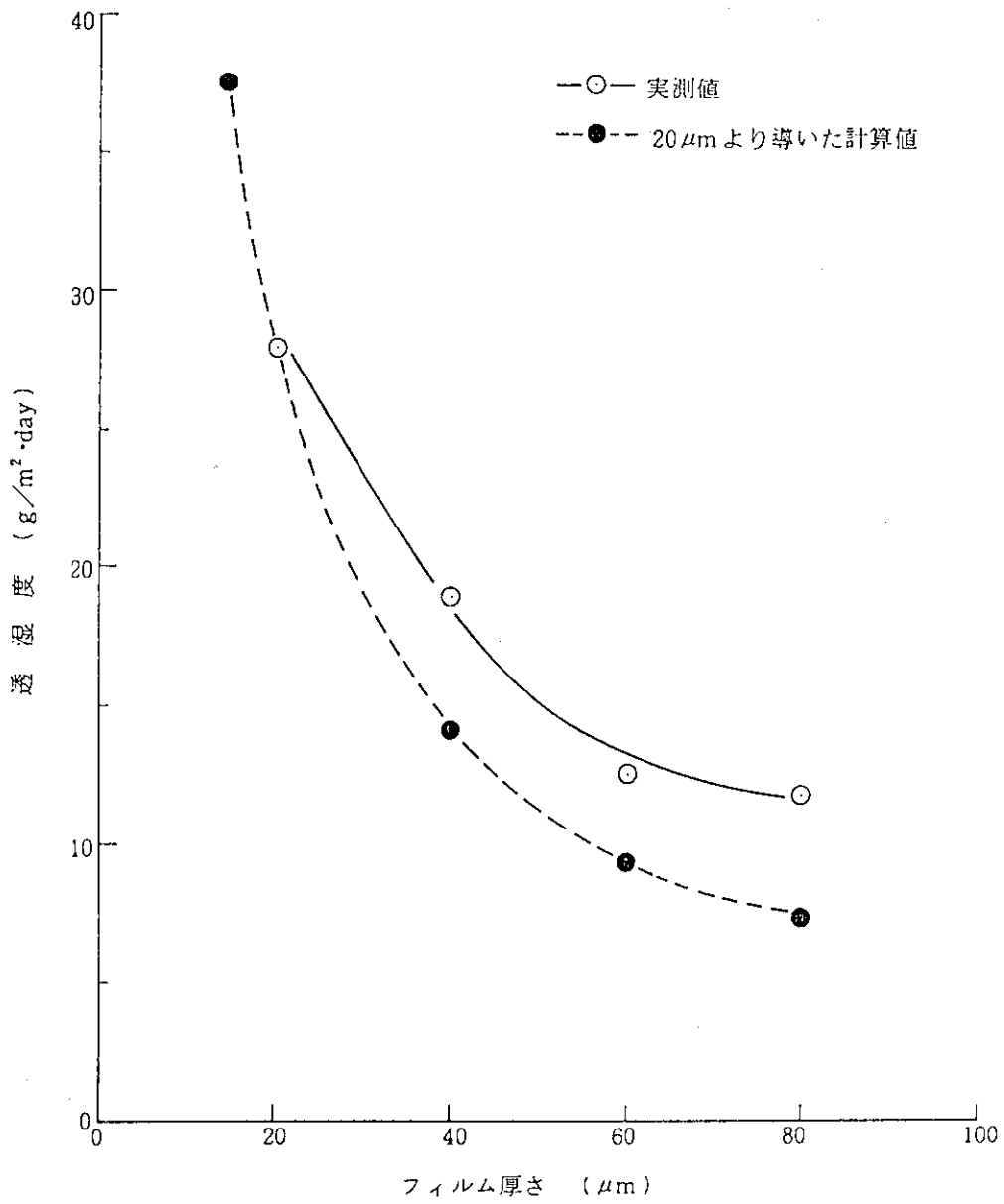


図5 低密度ポリエチレンフィルムの透湿度と厚さの関係

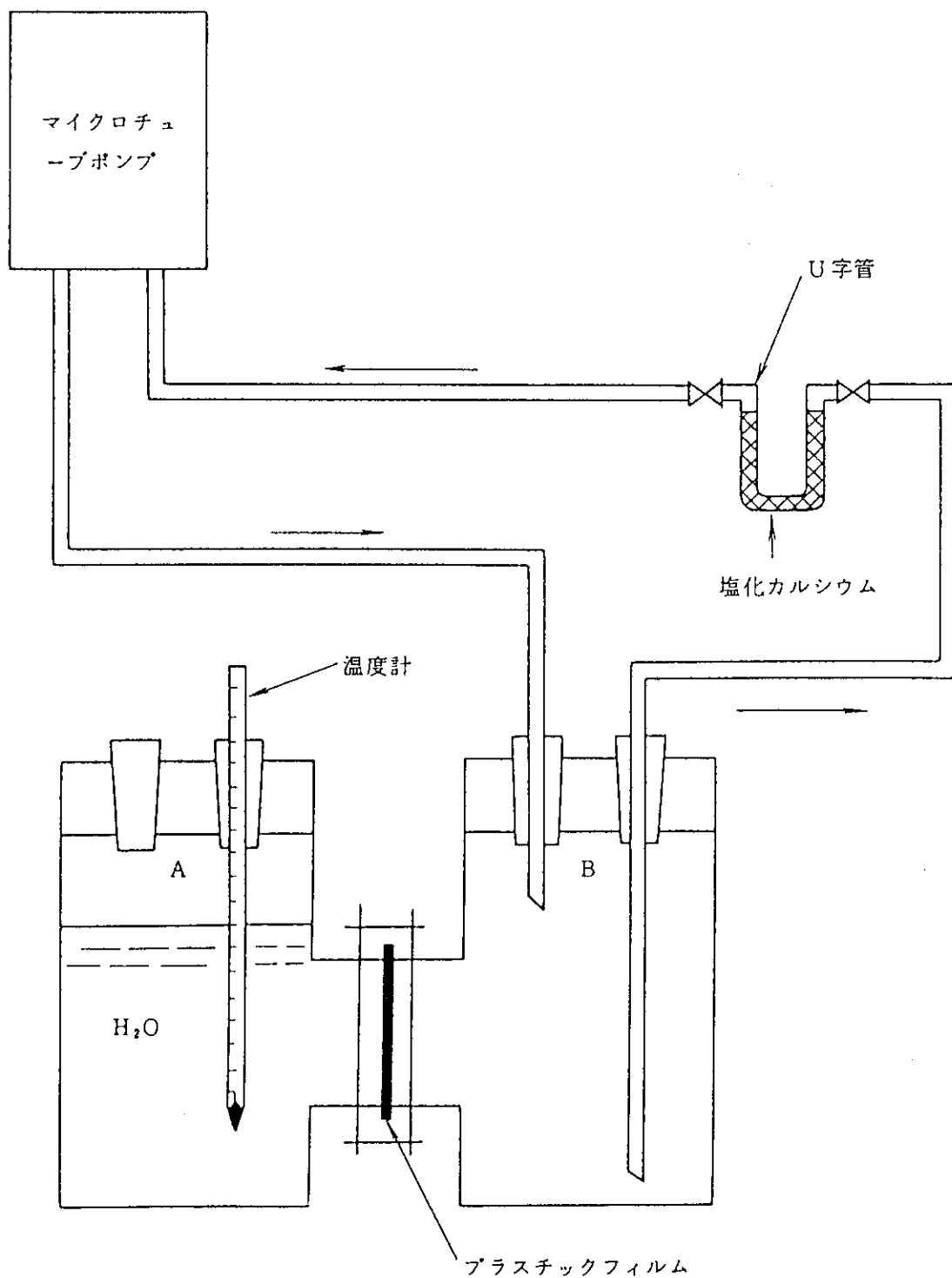


図6 透水性試験装置

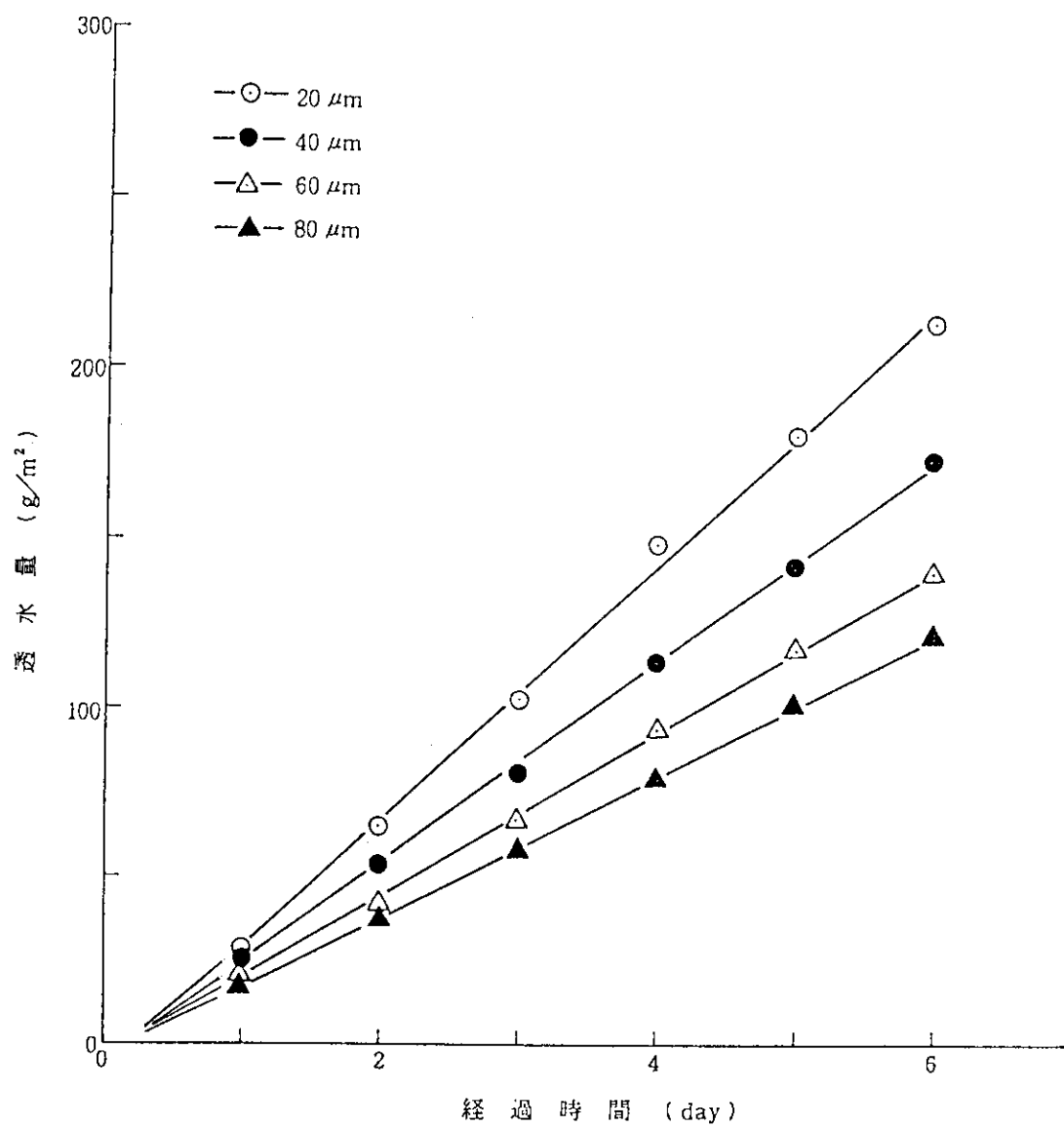


図7 低密度ポリエチレンフィルム透水量の時間変化

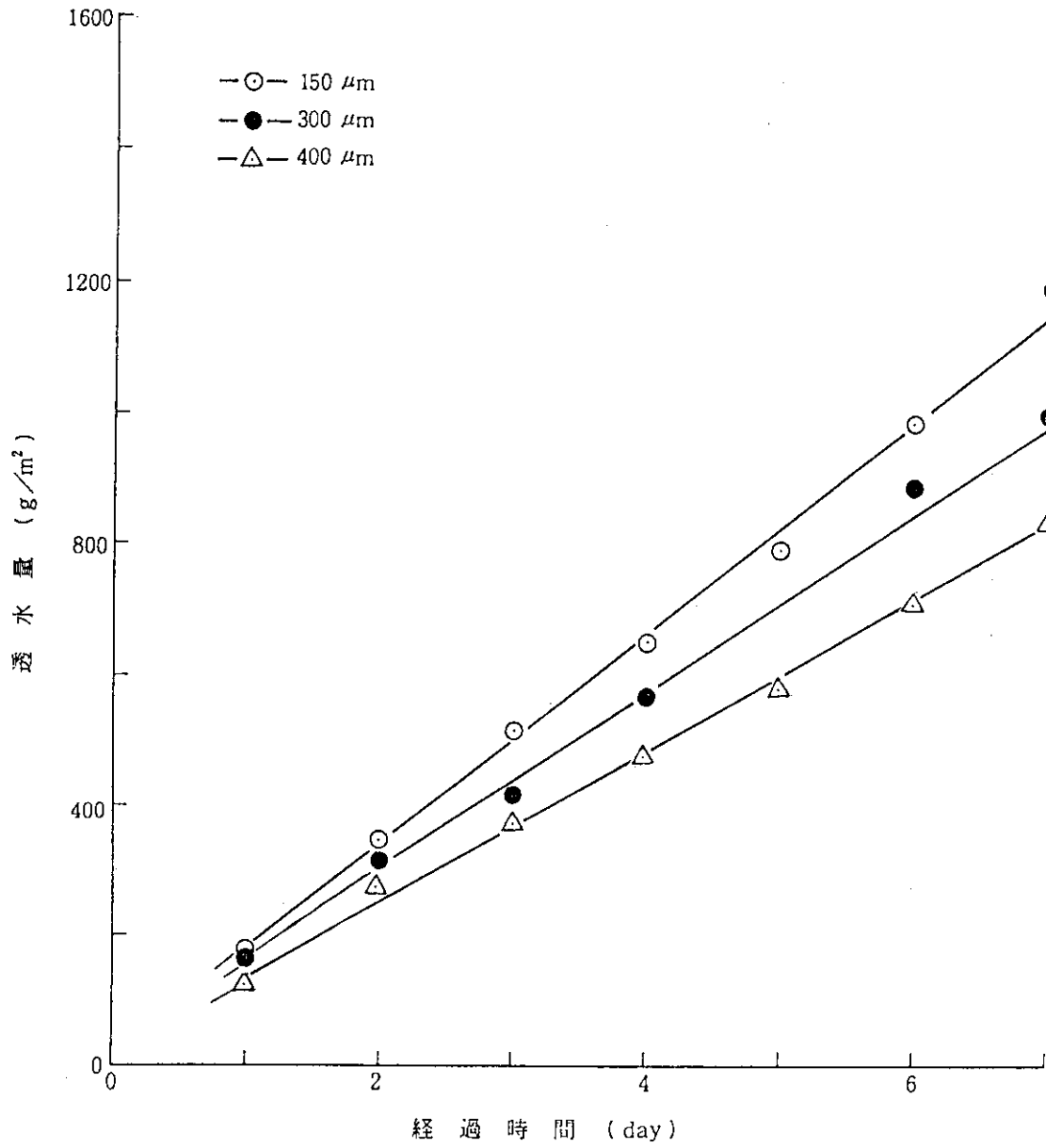


図8 不飽和ポリエステルフィルム透水量の時間変化

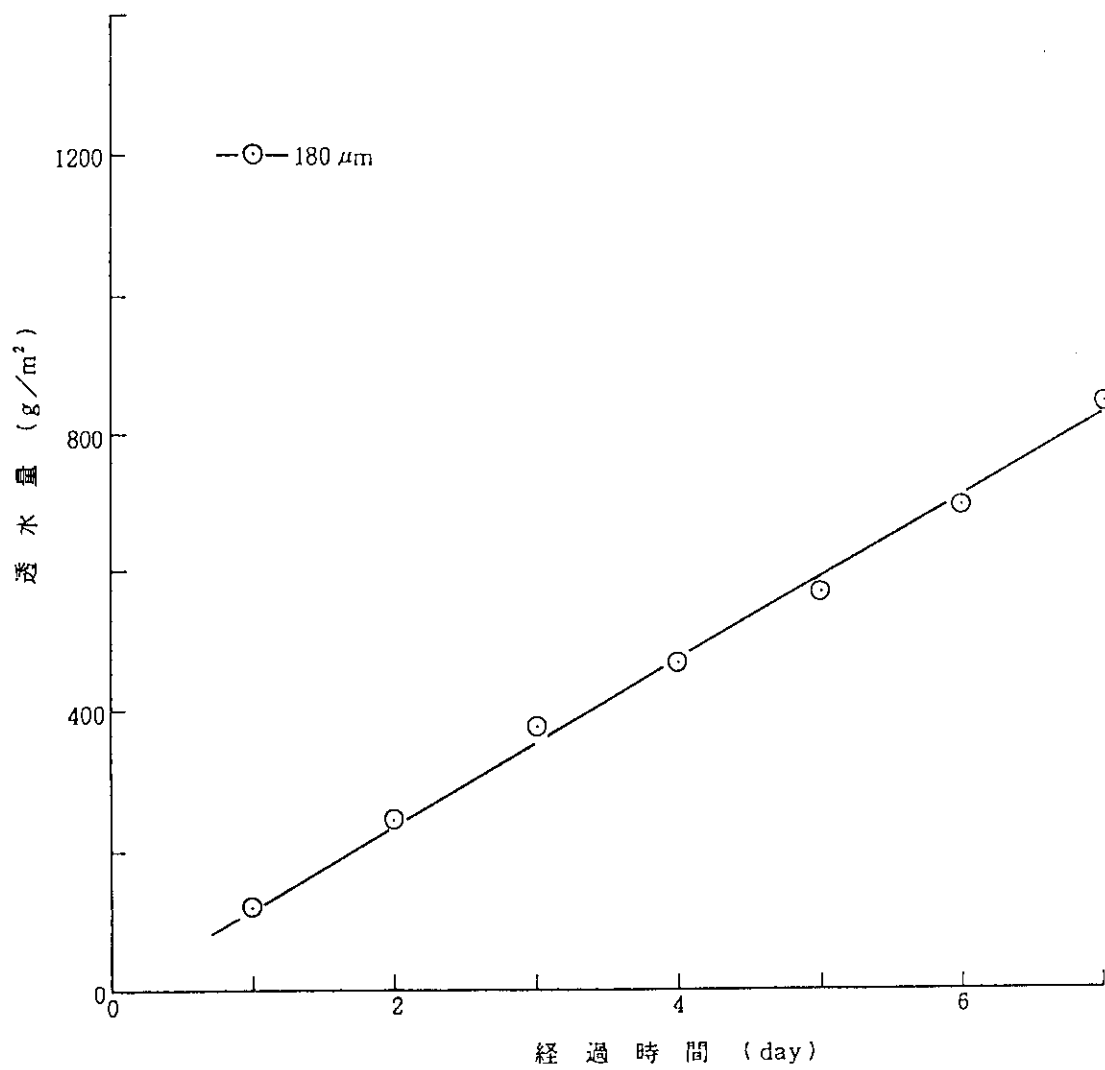


図9 ポリビニルエステルフィルム透水量の時間変化

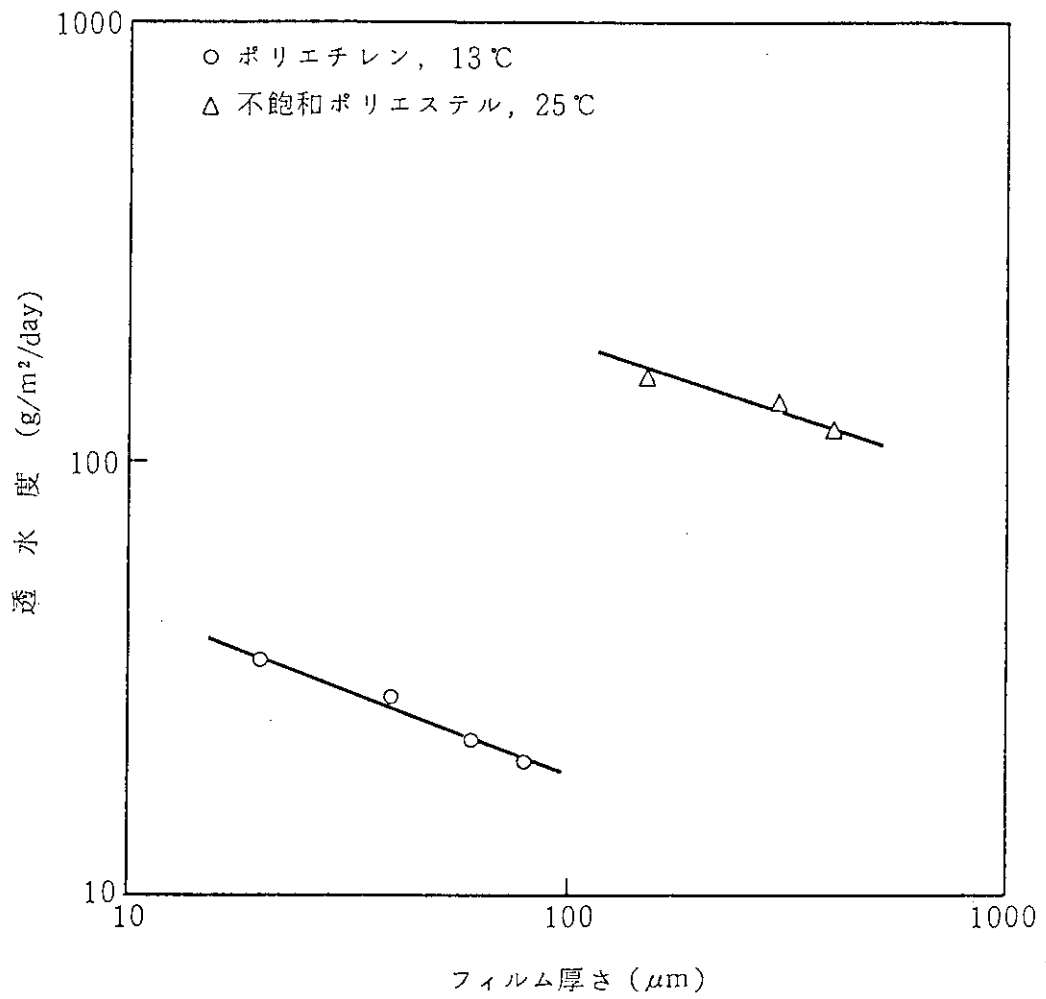


図10 透水性度とフィルム厚さの関係

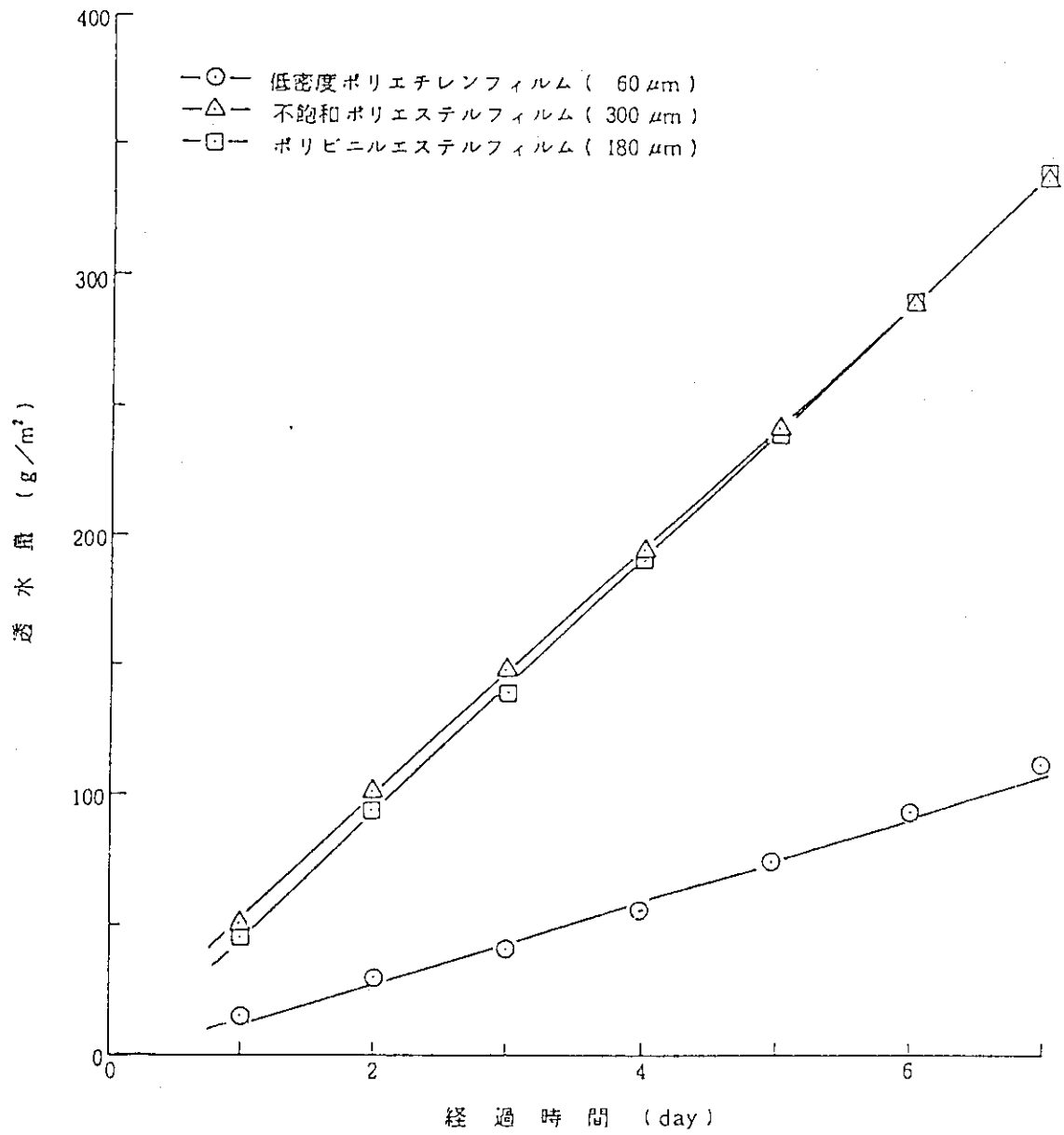


図11 2°C下における各種フィルム透水量の時間変化

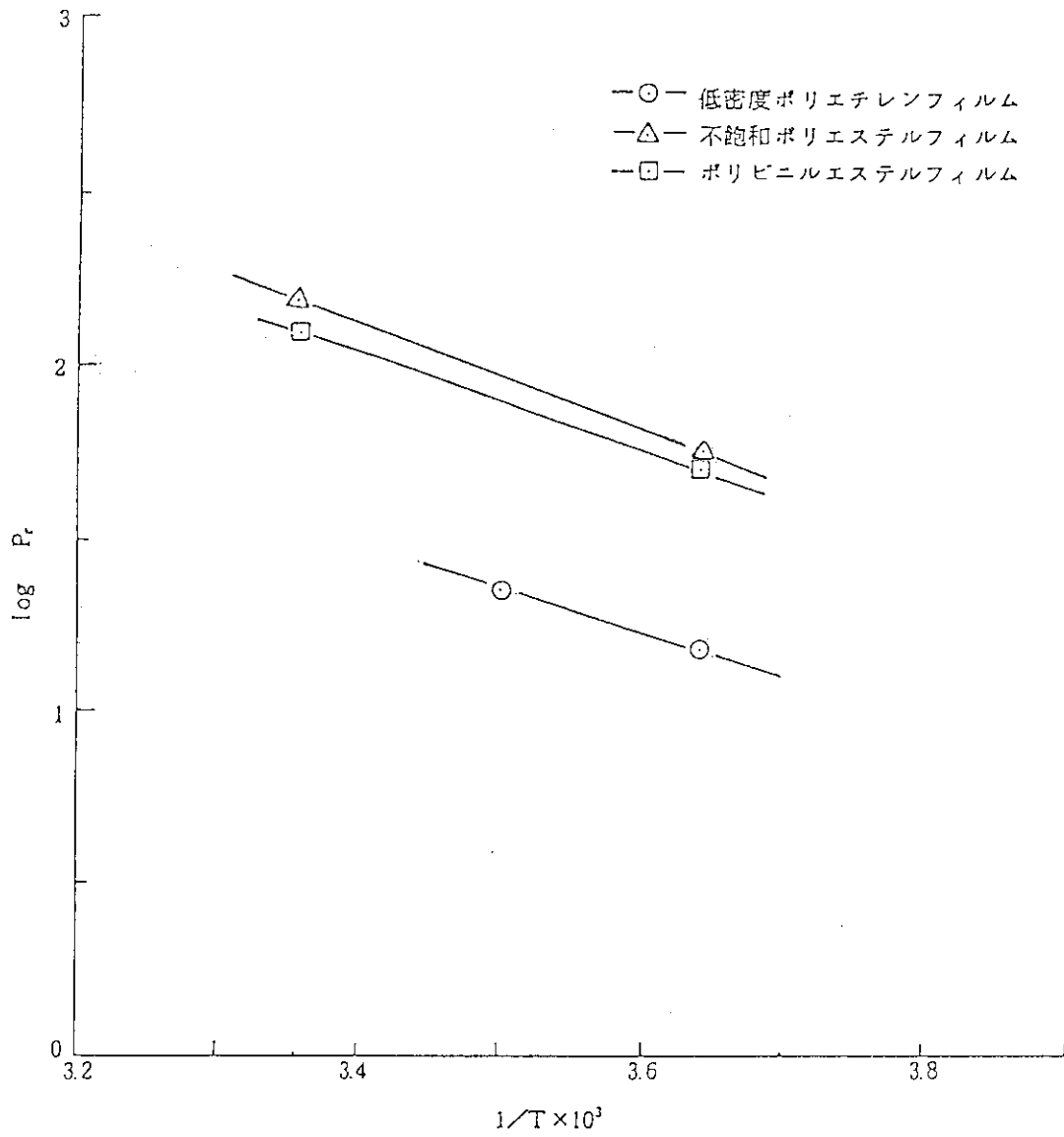


図12 フィルム厚さ 150 μm の各種フィルム透水性の温度依存性

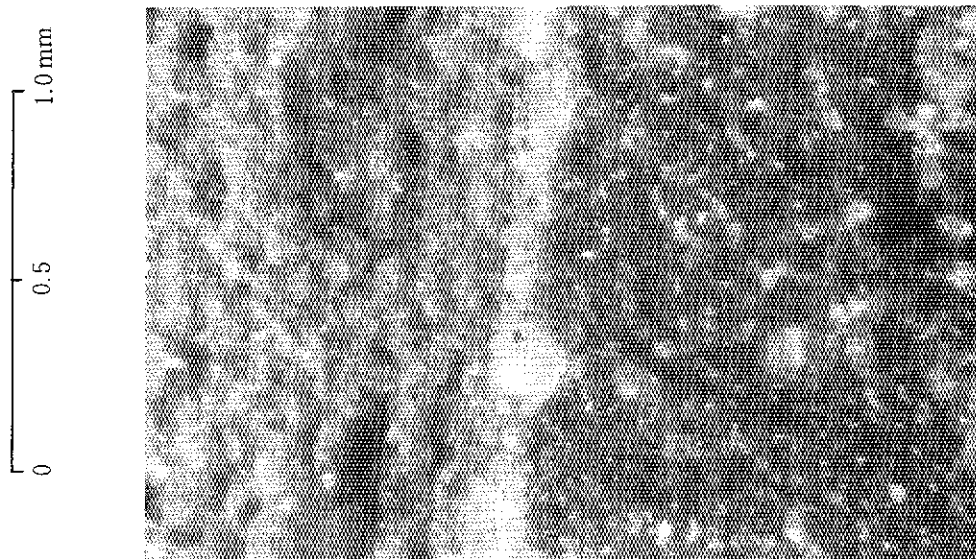


図13 水に浸漬したプラスチック固化体断面 (50倍)
水の浸入した部分：中央より左
水の浸入していない部分：中央より右

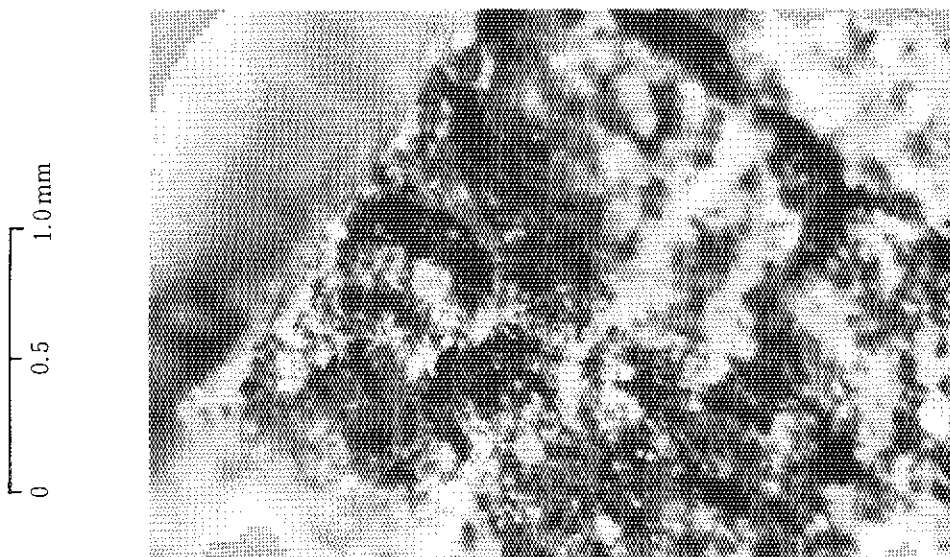


図14 100日浸漬後のC-1固化体断面 (35倍)

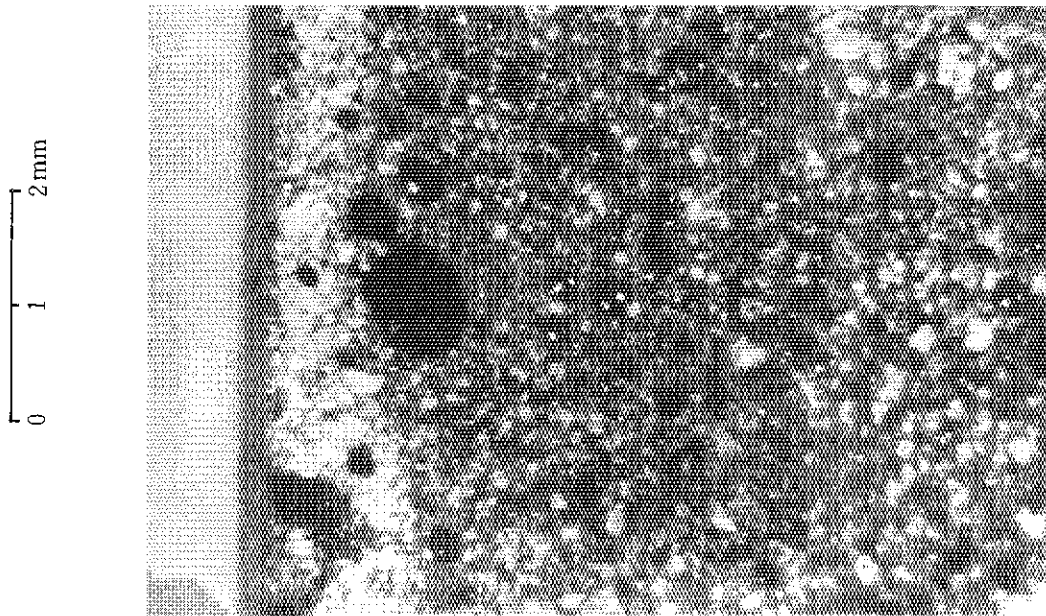


図15 100日浸漬後のC-2固化体断面(15倍)

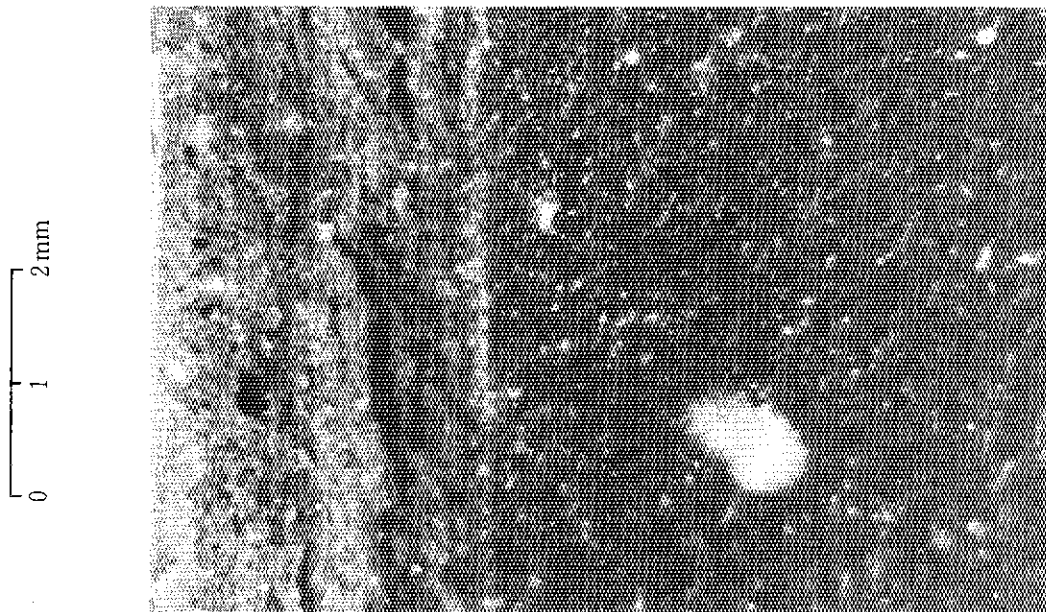


図16 100日浸漬後のC-3固化体断面(15倍)

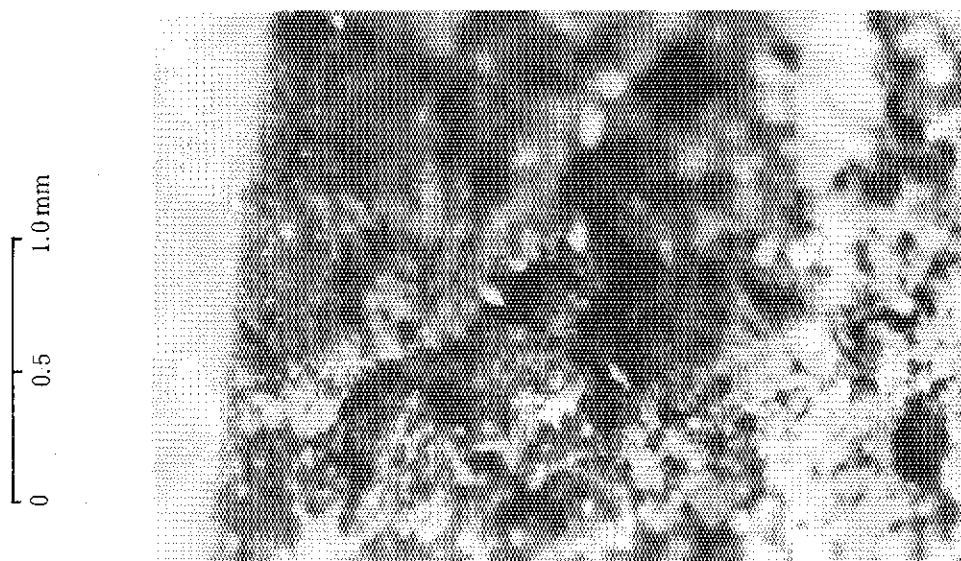


図17 高圧水 (500kg/cm², 2°C)中に100日浸漬後の
C-1 固化体断面 (35倍)