

JAERI-M

9762

深海条件における放射性廃棄物セメント  
均一固化体の安全性評価に関する研究

1981年11月

関 晋

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、複製などのお問合せは、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.

JAERI -M 9762

深海条件における放射性廃棄物セメント均一固化体の  
安全性評価に関する研究

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

関 晋

(1981年9月30日受理)

低レベル放射性廃棄物の海洋処分に関連して、処分体の中心であるセメント均一固化体の安全性評価を行った。

本報告は、上記固化体の深海中健全性、非破壊検査法の開発および放射性核種の浸出性について研究した結果をまとめたものである。

これらの研究から、セメント固化体自体、放射性核種の浸出に対する防壁効果を有し、その閉じ込めの効果は大きいため、放射性廃棄物の海洋処分に対する従来の評価は、かなり安全側にあり、実際とはかけ離れたきびしい評価であるとの結論を得た。

Study on Safety Evaluation of Monolithic Cement Packages of  
Radioactive Wastes under Deep-Sea Conditions

Susumu SEKI

Division of Environmental Safety Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received September 30, 1981)

For sea disposal of the low-level radioactive wastes, the safety of monolithic cement solidified products to be the main solidified waste for dumping was evaluated.

Safety evaluation covers the results of integrity test under deep-sea conditions, development of nondestructive inspection and leaching test of nuclides of the above solidified waste.

It is concluded that previous evaluation for the sea disposal of radioactive wastes should be more conservative than the real situation, because the cement solidified products have appreciable retardation effect for dispersion of radionuclides and thus the effect of containment is enhanced.

Keywords; Monolithic Cement Product, Radioactive Waste, Drum, Deep-sea Disposal, Hydrostatic Pressure, Integrity, Leachability, Nondestructive Test,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 深海中健全性試験 .....	7
2.1 緒 言 .....	7
2.2 実大固化体高圧 RI 浸出試験装置 .....	8
2.2.1 装置の使用目的 .....	8
2.2.2 装置の概要 .....	9
2.2.3 高圧水槽 .....	10
2.2.4 その他の機器 .....	13
2.2.5 おわりに .....	13
2.3 深海中健全性模擬試験 .....	13
2.3.1 試験の概要 .....	14
2.3.1.1 試験体の製作 .....	14
2.3.1.2 試験条件 .....	14
2.3.2 結果と考察 .....	17
2.3.2.1 セメント固化体の健全性に及ぼす容器の効果と加圧条件 .....	18
2.3.2.2 固化体の重量増加と健全性との関係 .....	19
2.3.2.3 高水圧中におけるセメント固化体からの発生音 .....	20
2.4 放射性廃棄物セメント均一固化体の圧縮強度試験 .....	24
2.4.1 試験の概要 .....	24
2.4.1.1 試薬および使用器具 .....	24
2.4.1.2 試験体製作と試験方法 .....	24
2.4.2 結果と考察 .....	25
2.4.2.1 BWR系セメント固化体の一軸圧縮強度 .....	26
2.4.2.2 PWR系セメント固化体の一軸圧縮強度 .....	29
2.5 海洋における健全性実証試験 .....	30
2.5.1 試験の概要 .....	30
2.5.1.1 使用試験体 .....	30
2.5.1.2 海洋実証試験 .....	31
2.5.2 結果と考察 .....	32
2.5.2.1 パッケージ表面の写真撮影 .....	32
2.5.2.2 回収パッケージの検査 .....	35
2.6 結 言 .....	37
3. ドラム缶詰めセメント均一固化体の非破試験法の開発 .....	39
3.1 緒 言 .....	39

3.2 反発硬度法による非破壊検査	40
3.2.1 試験の概要	40
3.2.1.1 反発硬度測定器	40
3.2.1.2 試験体	41
3.2.1.3 反発硬度試験	42
3.2.2 結果と考察	45
3.2.2.1 一軸圧縮強度	45
3.2.2.2 反発硬度と一軸圧縮強度との対応	45
3.3 超音波試験法による非破壊検査	48
3.3.1 試験の概要	49
3.3.1.1 超音波試験装置	49
a) 装置の構成	49
b) 試験装置の電気系統	51
3.3.1.2 試験体	51
3.3.1.3 超音波伝播速度試験	53
3.3.2 結果と考察	54
3.3.2.1 超音波伝播速度と一軸圧縮強度との対応	54
3.3.2.2 欠陥の探査	56
3.4 結　　言	59
4. 放射性核種の浸出試験	61
4.1 緒　　言	61
4.2 小規模固化体の常圧浸出試験	61
4.2.1 試験の概要	62
4.2.1.1 試料の製作	62
4.2.1.2 常圧浸出試験	63
4.2.2 試験結果の整理	63
4.2.3 結果と考察	66
4.2.3.1 浸出に与える廃液・セメント比(Wa/C)の影響	66
4.2.3.2 浸出に与えるセメントの種類の影響	68
4.2.3.3 浸出に与える浸出水の温度の影響	68
4.2.3.4 浸出に与える浸出水の種類の影響	69
4.2.3.5 $^{60}\text{Co}$ の浸出挙動	69
4.2.3.6 浸出に与える養生期間の影響	69
4.2.3.7 浸出に対する骨材の効果	71
a) 骨材のイオン交換容量	71
b) 浸出に対する骨材添加の影響	71
4.3 実大固化体の高水圧浸出試験	75
4.3.1 試験の概要	75

4.3.1.1 試験体の製作 .....	75
4.3.1.2 高水圧浸出試験 .....	78
4.3.2 結果と考察 .....	79
4.3.2.1 昇圧速度の浸出に対する影響 .....	79
4.3.2.2 キャッピングの浸出に対する影響 .....	81
4.3.2.3 ドラム缶蓋の浸出に対する影響 .....	81
4.3.2.4 浸出に対するセメントの種類の影響 .....	82
4.3.2.5 $^{60}\text{Co}$ の浸出挙動 .....	83
4.3.2.6 浸出に関する長期予測 .....	85
4.4 結　　言 .....	87
付　　記 放射性廃棄物パッケージの放射性核種浸出に対する防壁(バリア)効果 .....	90
付記 1. 評価にあたって設定する条件 .....	90
付記 2. 環境安全評価方法 .....	91
付記 3. 計算方法 .....	91
a) 試験的海洋処分の場合 .....	91
b) 本格的海洋処分の場合 .....	92
付記 4. 計算結果 .....	93
付記 5. 考　　察 .....	99
5. 総　　括 .....	100
謝　　辞 .....	104

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Integrity Test under Deepsea Condition .....	7
2.1 Introduction .....	7
2.2 High Pressure Leaching Test Apparatus for Full-Scale Radioactive Waste Solids .....	8
2.2.1 Purpose of using of the Apparatus .....	8
2.2.2 Outline of the Apparatus .....	9
2.2.3 Pressure Vessel .....	10
2.2.4 Other Instruments .....	13
2.2.5 Conclusion .....	13
2.3 Simulating Test of Deepsea Integrity .....	13
2.3.1 Outline of the Test .....	14
2.3.1.1 Preparation of Specimen .....	14
2.3.1.2 Test Condition .....	14
2.3.2 Results and Discussion .....	17
2.3.2.1 Effect of Container and Pressurized Condition on Integrity of Cement Solidified Products .....	18
2.3.2.2 Relationship between Weight Increase of Solidified Products and Integrity of Packages .....	19
2.3.2.3 Sound Generated from Cement Solidified Products under Pressurization in Water .....	20
2.4 Test of Uni-axial Compressive Strength of Monolithic Cement ..	24
2.4.1 Outline of the Test .....	24
2.4.1.1 Reagent and Implement Used .....	24
2.4.1.2 Preparation of Specimens and Experimental Method ...	24
2.4.2 Results and Discussion .....	25
2.4.2.1 Uni-axial Compressive Strength of Cement Solidified Products Used in BWR .....	26
2.4.2.2 Uni-axial Compressive Strength of Cement Solidified Products Used in PWR .....	29
2.5 Integrity Demonstration Test in Ocean .....	30
2.5.1 Outline of the Test .....	30
2.5.1.1 Specimen Used .....	30
2.5.1.2 Demonstration Test in Ocean .....	31

2.5.2 Results and Discussion .....	32
2.5.2.1 Photographing of Package .....	32
2.5.2.2 Inspection of Package Recovered .....	35
2.6 Conclusion .....	37
3. Investigation on Nondestructive Inspection of Drum-Filled Monolithic Cement Solidified Products of Radioactive Wastes ...	39
3.1 Introduction .....	39
3.2 Nondestructive Inspection by Method of Rebound Hardness ....	40
3.2.1 Outline of the Test .....	40
3.2.1.1 Rebound Hammer .....	40
3.2.1.2 Specimens .....	41
3.2.1.3 Measurement of Rebound Hardness .....	42
3.2.2 Results and Discussion .....	45
3.2.2.1 Uni-axial Compressive Strength .....	45
3.2.2.2 Relationship between Rebound Hardness and Uni-axial Compressive Strength .....	45
3.3 Nondestructive Inspection by Ultrasonic Wave .....	48
3.3.1 Outline of the Test .....	49
3.3.1.1 Ultrasonic Test Apparatus .....	49
a) Construction of the Apparatus .....	49
b) Electric Circuit of the Apparatus .....	51
3.3.1.2 Specimens .....	51
3.3.1.3 Method of Ultrasonic Test .....	53
3.3.2 Results and Discussion .....	54
3.3.2.1 Relationship between Ultrasonic Wave Velocity and Uni-axial Compressive Strength .....	54
3.3.2.2 Search of Defects in Cement Package .....	56
3.4 Conclusion .....	59
4. Leaching Test of Radionuclides .....	61
4.1 Introduction .....	61
4.2 Leaching Test under Atmospheric Pressure using Small Size Specimens .....	61
4.2.1 Outline of the Test .....	62
4.2.1.1 Preparation of Specimens .....	62
4.2.1.2 Leaching Test under Atmospheric Pressure .....	63
4.2.2 Pigeonhole of Experimental Results .....	63
4.2.3 Results and Discussion .....	66

4.2.3.1	Effect of Waste-Cement Weight Ratio (Wa/C) on Leachability .....	66
4.2.3.2	Leachability of $^{137}\text{Cs}$ from Portland and Slag Cement Solidified Products .....	68
4.2.3.3	Effect of Temperature of Leachant on Leachability ..	68
4.2.3.4	Leachability of $^{137}\text{Cs}$ in Deionized Water and Synthetic Sea Water .....	69
4.2.3.5	Leaching Behavior of $^{60}\text{Co}$ .....	69
4.2.3.6	Effect of Setting Periods on Leachability .....	69
4.2.3.7	Effect of Aggregates on Leachability .....	71
a)	Ion Exchange Capacity of the Aggregate .....	71
b)	Effect of Aggregate Added on Leachability .....	71
4.3	Leaching Test under High Pressure using Full Scale Specimens ..	75
4.3.1	Outline of the Test .....	75
4.3.1.1	Preparation of the Specimens .....	75
4.3.1.2	Leaching Test under High Hydrostatic Pressure .....	78
4.3.2	Results and Discussion .....	79
4.3.2.1	Effect of Pressure Increasing Speed on Leachability .....	79
4.3.2.2	Effect of Capping on Leachability .....	81
4.3.2.3	Effect of Drum Lid on Leachability .....	81
4.3.2.4	Comparison of Leachability of $^{137}\text{Cs}$ from Portland Cement and Slag Cement Solidified Products .....	82
4.3.2.5	Leaching Behavior of $^{60}\text{Co}$ .....	83
4.3.2.6	Long Term Estimation of Leaching .....	85
4.4	Conclusion .....	87
Appendix	Effect of Barrier for Radionuclides Leach out from Radioactive Waste Packages .....	90
Appendix 1	Condition Used for Estimation .....	90
Appendix 2	Method of Environmental Safety Evaluation .....	91
Appendix 3	Method of Calculation .....	91
a)	In case of the Experimental Sea Disposal .....	91
b)	In case of the Full Scale Sea Disposal .....	92
Appendix 4	Calculation Results .....	93
Appendix 5	Discussion .....	99
5.	Conclusion .....	100
Acknowledgements	.....	104

## 1. 諸 言

今後ますます厳しくなる資源・エネルギー事情の中にあって、なおわが国の経済社会を健全に発展させ、国民生活を永続させて行くためには、エネルギーの長期的かつ安定的な確保は不可欠な課題である。ここにおいて、石油に代替するエネルギーとしての原子力の役割は、きわめて重要である。わが国の原子力発電規模は、1985年には3,300万KW、2000年には15,000万KWになることが予想されている。このためわが国独自の核燃料サイクルの確立が急がれている。軽水炉の核燃料サイクルとは、ウラン鉱石の採掘、製練、転換、濃縮、加工、燃焼から再処理、廃棄物の処理処分までを含む原子力の全体系である。

しかしながら、現在、核燃料サイクルの確立にあたって、多くの解決すべき問題がある。特に核燃料サイクルのバックエンドである放射性廃棄物の処理処分は、サイクル確立に不可欠で、現在最も開発がせまられている課題である。原子力利用の進展に伴ない、原子力発電所、再処理施設、核燃料加工施設等から発生する放射性廃棄物は、年々増大するにも拘らず、その処分に関する十分な対策が確立されているとはいがたい。

核燃料サイクル関連施設から排出される放射性廃棄物は、高レベル廃棄物と低レベル廃棄物とに区分される。

高レベル廃棄物は、再処理過程において使用済の燃料からウラン、プルトニウム等の有用な核分裂性物質を回収した後の残さいであって、高レベル廃液と使用済被覆管(Hull)が主なもので、容積は小さいが放射能は高く、かつ高レベル廃液には半減期が非常に長い超ウラン元素を含んでいる。これに対して、低レベル廃棄物は、使用済イオン交換樹脂、フィルタスラッジ、再生濃縮廃液、雑固体などの放射性液体および固体廃棄物であって、放射能は低いが、発生量はきわめて多い。

これらの放射性廃棄物は、放射性物質の拡散とそれによる環境の汚染を未然に防止するため、そのまま容器に封入するか、または固化後、容器に封入して、パッケージの形にして保管される。ここでは、低レベル放射性廃棄物に限定して記述することとする。

低レベル放射性廃棄物パッケージは、現在(1981年現在)出力100万KW/年の原子力発電所当たりに換算すると、1基あたり200ℓ大ドラム缶にして年間約4,000本、わが国全体では年間60,000本が常時発生している。これらの廃棄物は1980年3月現在で、約300,000本が蓄積され、各サイト内の貯蔵庫に保管されている。しかも新しい原子力発電所が増えるにしたがい、その累積量は1985年には、約600,000本、1995年には約2,000,000本にもなると予想される。このように年々増大する放射性廃棄物を人間の生活環境から隔離するための新たな処分場(サイト)を確保することは、スペース上の制約による保管能力の面から、また放射線障害から人々を守るという面からも重要である。

原子力委員会は、1972年の原子力開発長期計画において、低レベル放射性廃棄物の処分は、海洋処分と陸地処分をあわせて行うとの方針を示した。これによると、『海洋処分は放射能レベルの低い廃棄物を安全な固化体に処理し、これを深海底に処分するものとする。陸地処分は、海洋

処分に適さないもの、回収可能な状態で処分しておく必要のあるもの等を施設に貯蔵し、あるいは地中に処分するものとする”としている。

海洋は、地球表面の70%強を占め、その水深は、平均3,800mにもなり、深いところでは10,000m以上に達する。したがって、海洋が優れた隔離効果と膨大な水量による抜群の希釈能力を有することは、誰もが認めるとところである。また、有史以来、地球表層面におけるいかなる苛酷な変化（例えば、氷河期および間氷期の繰返し、あるいは極の転換など）に対しても、深海底は、比較的安定した環境を保ってきた。したがって深海が有する性質をうまく利用すれば、放射性廃棄物の海洋処分の可能性は、十分考えられる。

深海のもつ主な特質として、一般的に次のようなことが挙げられる。

海中における水圧は海表面からの深さが10m増す毎に約 $1\text{ kg/cm}^2$ ずつ増す。したがって水深5,000mの海底では水圧は約 $500\text{ kg/cm}^2$ ということになる。海水の比重は、1よりわずかながら大きいので、圧力はそれ以上になる。水温は、表面から深さとともに低下し、水深2,000m以上では、摂氏1°Cから2°Cの低温となる。これは、極地方の冷い水が深層に沈み、潜流しているためである。深海付近の水の流れは、ごく弱く、1cm/sec内外である。また、水平および鉛直方向にもうず拡散があり、海域によっては湧昇流のあるところもある。しかし、それらは非常に遅いので、海底に放射性廃棄物を処分した場合、可溶性の廃棄物であっても、その移動は、ごく遅いことが確かめられている。海水の密度は、塩分と水温の両方できまり、1.025前後である。また密度は深さとともに増し、鉛直方向の安定度は良く保たれる。したがって上下方向における水の対流は少く、混合も遅い。海水の塩分は、3.5%くらいであり、深さとともに少しづつ変化する。海水中には、酸素が溶けていて、無酸素のところは非常に少く、その濃度が生物の存在を左右する。海洋では、表面から500mくらいまでしか太陽光線が届かないで、それより深い層での生物活動は、極端に少くなる。深海底には、細かい粒子からなる粘土質の堆積物があり、その堆積速度は、非常に遅く、太平洋を例にとれば、1,000年につき1mm前後であるといわれている。また、海底土は、その密度が1.5くらいの軟泥状のものであって、放射性物質を化学的に捕促する効果を有し、さらに物理的に移動を抑止（堆積土に吸着したものは海水と同じようには移動しない）する。

以上深海の特質をいくつか述べたが、このように深海は、環境の変化が非常に乏しいところであるため、放射性廃棄物の隔離場所として、最も適した所の一つといわれている。

以上のように海洋が、放射性廃棄物の隔離場所、云い換えれば、処分場所としてすぐれていることを確めた上で、世界各国では、海洋処分を実施し、その経験は、数年ないし30数年にわたって蓄積されている。しかし、海洋処分用パッケージに関しては、その安全評価を十分検討したとは云いがたい。

米国では、放射性廃棄物の海洋処分は、原子力開発の初期（1946年）から太平洋および大西洋で行われていたが、1969年太平洋における投棄を最後に陸地処分に転換した。自国に利用価値の少い広大な砂漠を有している米国では、陸地処分が海洋処分よりも経済的に有利だからである。しかし、初期に実施した海洋投棄では、廃棄物にプルトニウムを含むものが多く、その放射能も強く、十分な安全対策がとられていなかったため、処分後の安全評価で問題になっている。

ヨーロッパにおいては、1948年から英国が独自に低レベル廃棄物の大部分を大西洋および英仏海峡に海洋処分していたが、英國以外のNEA加盟国の中でも実施を望む国が現れ、NEAはそ

の要望に応じ、投棄海域の選定、投棄船、投棄体の基準の制定を行うとともに、その安全評価を行った。現在は、海洋処分実施国が経済協力開発機構—原子力機関（OECD／NEA）の傘下に集まり、協同して海洋処分を実施している。1967年および1969年には、試験的な海洋処分を実施した。この試験的処分に参加した国は、英國、ベルギー、オランダ、スイス、フランス、西ドイツ、イタリア、スウェーデンの8ヶ国である。このうち前者の4ヶ国は、現在も引き続いで投棄に参加しているが、後の4ヶ国は、1971年以降参加していない。なお、試験的投棄は、1969年で終り、1971年からは本格的投棄に移行している。海洋処分に供したパッケージの中には、容器自身またはその内容物が海面に浮上することもある、NEA内部でもその管理を厳しくする必要があるといわれており、海洋処分への適合性を十分確認する方法の開発が望まれている。

アジアでは、韓国が1968年から1972年までの5年間に日本海の深さ2,200mの韓国領海に200ℓドラム缶115本を投棄したが、韓国政府は、「投棄された放射性廃棄物は、医療用などに使う放射性同位元素の生産過程で生じたもので、半減期が短かく、安全上全く問題にならない」と云っている。

わが国では、日本のアイソトープ協会が1955年から1969年までの15年間にわたって、ドラム缶本数にして1,660本を千葉県野島崎沖の深海（水深2,400m～2,800m）に投棄した。その後、東海区水産研究所が投棄点周辺の海底土の放射能を測定した結果、わずかに<sup>137</sup>Csが検出されたが、これは核実験による核分裂生成物が蓄積したもので、投棄した放射性廃棄物が漏れ出たものではないと判断されている。

原子力委員会は、1978年、「放射性廃棄物の廃棄に関する技術的基準」をまとめた。その中で、海洋投棄に供する投棄物は、セメント固化体についてのみ基準化しており、アスファルト固化体、プラスチック固化体あるいは多重構造型固化体など、その他の投棄物については、技術的基礎データの蓄積に基づいて順次基準化することとしている。このため、著者は、まずセメント固化体の安全評価法の開発を試みた。

原子力発電所から発生する濃縮廃液などの低レベル放射性廃棄物はセメントで均一に練り混ぜ、200ℓドラム缶内で固化する処理方法が一般的に採られている。セメント固化体は、圧縮強度や耐久性に優れているうえ原料の入手が容易で、価格も安く、さらに固化プロセスも単純であることなどの特長がある。

ドラム缶詰めセメント均一固化体は、わが国で近い将来、実施が予定されている試験的海洋処分に用いられる投棄体の主体となるものである。

海洋処分を実施するにあたっては、パッケージの安全性を健全性および浸出性の両面から検討しなければならない。

放射性廃棄物の海洋処分の安全性は、通常処分によって公衆が被曝する線量でもって評価される。放射能が、処分された廃棄物パッケージから、水相に移行する過程が浸出で、その後海水中を拡散したのち公衆に被曝をもたらす。

放射性廃棄物の海洋処分によって海洋中に放出される放射性核種からうける放射線量については、従来、海洋による希釈効果が被曝に対する唯一の防壁であるという仮定のもとに計算されており、放射性廃棄物固化体および容器は、長期にわたり、防壁としての信頼性を有しないものと仮定されていた。しかし、最近では、海洋処分に用いられる廃棄物パッケージは、経済的に許さ

れる範囲内で、放射性核種の拡散をできるだけ低くするように廃棄物を閉じ込める能力を有すべきであるという考え方へ変化してきている。

本研究では、そのような考え方のもとに安全評価法の開発を行った。

(1) パッケージが着底後も長期にわたって健全性を保持できるならば、<sup>137</sup>Csのような中程度の半減期の放射性核種をかなり減衰するまで閉じ込め得るかどうか浸出試験によって明らかにする。

(2) そうした場合、高水圧条件下にあるドラム缶詰めセメント均一固化体は、健全であることが前提となる。その健全性にどのような要因が影響するか検討する。

なお、健全性試験の一環として、着底時におけるパッケージの耐衝撃性も検討しなければならない項目である。

実大のセメント均一固化体を海洋投棄した場合、その固化体は、落下開始後、約2秒で終速度2～3m/secに達し、その時の海底岩盤上における落下衝撃力は、陸上で約10cmの高さからコンクリート面に落下させた場合と同等の衝撃力であることが知られている。この条件下の陸上における模擬海洋落下衝撃試験では、セメント固化体に異常は認められず、また、砂層上に落下させた場合には、コンクリート面にくらべて、衝撃力は1/3程度に減ずることが報告されている。<sup>1)</sup>

(3) 海洋処分に際してセメント均一固化体が高水圧で健全性を保つには、一軸圧縮強度は、処分海底の圧力の1/4以上必要であることが明らかにされている。このような強度を放射性廃棄物を含むパッケージが持っているかどうか明らかにするための非破壊検査方法を開発することも必要である。

以下に本研究の概要を述べる。

先ず、放射性廃棄物の実大(200ℓ)セメント均一固化体の深海底における健全性ならびに放射性核種の浸出性の評価を行うため、水深5,000mの深海底を模擬できる装置(実大固化体高圧RI浸出試験装置)の開発と製作を行った。装置の設計にあたっては、前述した深海条件を最もよく代表すると思われる圧力(500kg/cm<sup>2</sup>)、水温(2℃)、および流速(1～2cm/sec)を長時間にわたって保持できるように考慮した。

上記装置を使用して、実大セメント均一固化体の深海中健全性模擬試験を行い、固化体のクラック発生と昇圧速度の関係およびクラック発生の原因などを明らかにし、さらにクラック防止対策を検討した。また、海洋処分に供する廃棄物パッケージの健全性保持に必要である一軸圧縮強度を確保するためのセメント、廃液、骨材など配合の適合性についても検討した。

実大固化体高圧RI浸出試験装置では、接液部の腐食と放射能汚染海水の処理等を考慮して海水を用いていないので、深海条件を全ての点で模擬することは不可能である。これを補うため、実際に海洋において実大セメント均一固化体の吊下ろし一回収試験を水深5,000mまでの範囲で行い、健全性を実証確認した。

以上を深海中健全性試験としてまとめた。その詳細については第2章に述べる。

第3章では放射性廃棄物を含むドラム缶入りセメント均一固化体の圧縮強度を測定する検査法として、反発硬度および超音波による非破壊検査法を開発し、両検査法を比較考察する。

放射性廃棄物セメント均一固化体の品質検査を行うためには、汚染の拡大および廃棄物の増加

など不適条件を避けるため、ドラム缶に封入したまでの非破壊検査法の開発が必要となる。このため、非破壊検査によるドラム缶内固化体の圧縮強度推定法として、反発硬度法および超音波試験法について検討している。また、一軸圧縮強度推定に関して反発硬度法と超音波試験法の比較を行っている。さらに超音波試験法によりドラム缶詰めセメント均一固化体の内部に存在する欠陥についても調べ、欠陥の存在およびその位置の探査の可能性についても述べる。

放射性廃棄物セメント均一固化体の海洋処分のための安全性を検討する上で重要な項目の一つに放射性核種の浸出性がある。このため、第4章では実際に放射性核種<sup>137</sup>Csおよび<sup>60</sup>Coを用い、それらの浸出性に及ぼすパッケージが置かれる各種条件の影響について検討した。

IAEAは、放射性核種の浸出に関して、試験法ならびに結果の評価法の暫定指針を提案している。この指針に基づき、小規模セメント均一固化体(4.5 cm φ × 4.4 cm)の常圧下における<sup>137</sup>Csの浸出試験を行い、浸出性に影響を及ぼす各種要因について検討した。

実際に海洋に処分されるセメント固化体は、ドラム缶で覆われ、さらにキャッピングが施されていること、実大パッケージと小規模試料との間には、寸法に大きな差があることなど実状と大きな隔たりがある。このため、小規模試料の結果をそのまま実大パッケージに適用することは、難しい。したがって小規模試料による浸出試験の結果を実大投棄体に適用し得るものか否かを深海底を模擬した条件において実験的に確認する必要がある。このため実大固化体高圧RI浸出試験装置を用い、深海5,000 mの条件に置いた実大パッケージの高水圧浸出試験を行った。この結果、アスファルトキャッピングを施したセメント固化体からの放射性核種の浸出は、検出できないほど低いこと、またドラム缶蓋の効果についても検討し、キャッピングおよびドラム缶容器の重要性について述べている。さらに<sup>137</sup>Csおよび<sup>60</sup>Coの浸出試験結果を解析して海洋処分により水相へ移行する放射能の長期予測を行い、パッケージの防壁効果についても言及している。

第5章は総括であり、前章までの放射性廃棄物セメント均一固化体を海洋処分投棄体として導入するという面からの特質をしらべ、その質的向上をはかった結果について系統的に整理するとともに、この研究および技術開発によって得られた成果についても言及する。

参考文献

- 1) 海洋科学技術センター：“海洋処分のための低レベル放射性固体廃棄物の安全性に関する予備的海洋試験”（1976）。

## 2. 深海中健全性試験

### 2.1 緒 言

海洋処分を実施するに際し、事前の安全評価を十分行うことが必要であるが、その中でも深海の高水圧における放射性廃棄物パッケージの健全性を確保することは、放射性核種の浸出挙動とともに重要な検討項目である。すなわち、パッケージの健全性を確保する見地から、その機械的強度を十分に検討しなければならない。

パッケージとは、容器、前処理された放射性廃棄物、その他の充填のための助材や材料および密閉蓋で構成されるものである。<sup>1)</sup>

<sup>2)</sup> 原子力委員会では、処分用パッケージは海底に到達するまでの間、内容物が露出するような破壊を生じないこと、さらに深海底に到達した後もできるだけ長期間、健全性を保持することなどの諸条件を定めている。また、経済協力開発機構／原子力機関（OECD／NEA）のパッケージ指針<sup>1)</sup>でも、パッケージが海底に着底するまで、その内容物を完全に保持し、着底後においては放射能の漏洩ができる限り最小に抑えることを必要条件としている。

ドラム缶詰めセメント均一固化体の高水圧下の機械的強度その他の性状についてはさまざま報告<sup>3)～7)</sup>されている。しかし、もしも容器が完全でない場合、内部の固化体が高水圧によってどのような機械的影響を受けるか、また容器は固化体の健全性保持にどのような役割を果しているかなどについての報告は見当らない。すなわち、容器を具備しないセメント固化体が深海条件に置かれた場合の健全性については、まだ検討が行われていない。したがってこれらに関する試験結果は、新しいOECD／NEAのパッケージ基準を保証するにたる重要な知見を提供することになる。

著者は、先ず、水深5,000mの深海底を模擬した条件（水圧500kg/cm<sup>2</sup>、水温2°C、流速1～2cm/sec）で実物大（200ℓ）パッケージの高水圧健全性試験ならびに浸出試験を可能とする装置を製作した。

次に同装置を使用して、実大セメント均一固化体の高水圧試験を行った。すなわち、BWR型原子力発電所から排出する再生濃縮廃液の主成分となる硫酸ナトリウムの水溶液を模擬廃液とし、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および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5,000mの条件でうける機械的变化を考察した。

今まで述べた高水圧装置による試験は、深海底の重要と思われる条件についてのみシミュレーションを行った。しかし、これ以外の深海条件は、パッケージに影響をほとんど与えないと思われるものの、上記陸上における深海のシミュレーションは、実際の海洋処分における条件と比較して種々の点で異なる。すなわち、高水圧装置による試験では海水を用いてないこと、パッケージ内部へ水が浸入する場合、加圧速度が減少し、そのためパッケージに対する加圧条件は、海洋におけるパッケージの落下に伴なう加圧速度と異なってくる場合があること、水温の降下速度も異なるであろうことなどが挙げられる。

このように陸上の試験では、再現困難と思われる条件における知見を得るために、海洋において実証試験を行った。すなわち、実大のドラム缶詰めセメント固化体を試験体として、同パッケージの吊下ろし一回収を海洋の水深 5,000 m の場所で行い、同時にパッケージの上部に取付けた深海カメラの連続写真撮影により、昇降時におけるパッケージ表面の変化を観察した。その回収後、さらにパッケージの詳細な検査を行った。

以上の試験から、海洋処分に備えたセメント均一固化体の安全性の基準化に有用な結果が得られた。

## 2.2 実大固化体高圧 RI 浸出試験装置

実大パッケージと小規模固化体の間あるいは海洋処分条件と常圧の試験条件の間には、さまざまな点で大きな差がある。放射性廃棄物パッケージの海洋処分のための安全評価には、深海条件においていた実大パッケージの健全性ならびに浸出試験を行う必要がある。ここにおいて、実際の大きさのパッケージが収容でき、かつ深海底と同等の条件を模擬することのできる実大固化体高圧 RI 浸出試験装置を製作した。

今まで、海洋処分実施国においても、上記のような装置を使った廃棄物パッケージの事前安全評価は、ほとんど行われていなかった。例えば、米国環境保護庁が 1974 年、1975 年に実施した投棄の回収・観測作業の結果<sup>8)</sup>によると、1951 年から 1967 年の間に大西洋に投棄された鋼製ドラム缶そのものの腐食は小さく、予想以上に健全な状態であったが、圧力平衡などが考えられていなかったため、かなりの破損が認められた。この点からもパッケージの事前安全評価は不十分であったといえる。

英国は、1948 年から 1967 年までに単独で海洋処分を実施していた段階で、パッケージの耐圧性や廃棄物の水圧による圧縮等について開発試験を行っている。<sup>7)</sup>しかし、英国における試験装置では、深海条件の一部である圧力のみを模擬しているのであって、その他の条件（例えば、水温、流速等）は考慮されていない。また、同装置で放射性核種の浸出試験は行えない。

わが国では、電力中央研究所が各種パッケージの耐圧試験<sup>3)</sup>を行っているが、やはり深海条件を模擬しているのは圧力のみであって、放射性核種を使用した試験は行っていない。

本実大固化体高圧 RI 浸出試験装置は、従来装置より精度のよいデータが得られるように深海条件をより忠実に模擬することができ、さらに放射性核種を用いた浸出試験を行うことができる目標に設計した。すなわち、深海の特質を最も代表すると思われる圧力、水温および流速を模擬し、それらの状態を長時間安定に保持できるように設計した。パッケージに対する加圧は、実際の海洋投棄で、パッケージが深海底へ落下する速度から予測される速度で行えるようにした。また、現実の設計にあたってはパッケージの取付け、取外しおよび深海条件の設定などが迅速、簡便に行えるよう装置の操作性も十分に配慮した。さらに本装置の特長は、実大パッケージの放射性核種の浸出試験を深海条件の下で行えることである。

### 2.2.1 装置の使用目的

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物について、セメントなどで固化したドラム缶

詰めセメント均一固化体は、近い将来実施が予定される試験的海洋処分（水深 5,000～6,000 m）の処分体として採用されることになっている。このため、本装置によって陸上で深海 5,000 m における高水圧低温条件をつくり出し、大きさ 200 ℥までのセメント固化体の健全性ならびにこのなかに含まれる放射性核種の浸出挙動の検討を実施し、国が予定している試験的海洋処分実施のための総合安全評価に資することを目的としている。

### 2.2.2 装置の概要

本装置は、200 ℥ドラム缶サイズのセメント固化体を用いて、深海 5,000 m の条件（水圧 500 kg/cm<sup>2</sup>、水温 2°C、水平流速 1～2 cm/sec）をつくり出し、その状態を長時間にわたって安定に保持できるものである。

圧力は油圧駆動方式の増圧機によって、セメントパッケージの海中落下速度（2 m/sec）に相当する加圧速度で 500 kg/cm<sup>2</sup> まで約 40 分で昇圧し、その圧力を ± 1.5% の誤差範囲内で長時間保持できる。加圧媒体には本来海水を使用すべきであるが、ここでは装置の腐食性を考慮し、イオン交換脱塩水を用いることとした。圧力は、コントロール室における連続記録と現場における圧力計によって、常時、監視できるようにしてある。

高圧水槽内を循環する浸漬水（加圧媒体）は、冷凍機および 1 次系熱交換器によって 2°C まで冷却し、2 次系（温度保持用）熱交換器を使用して調節することによって温度を 2°C に長時間保持する。なお、冷凍機の能力は、66,000 kcal/hr であり、冷媒としては 35% エチレングリコール水溶液を用いている。定常運転時における温度変動は、± 1°C 以内であり、温度は循環ライン中の数ヶ所で測定し、これをコントロール室の計装盤に連続記録ができるようにしてある。

高圧水槽内の水の循環は、高圧循環ポンプで行い、循環系のバルブの開閉によって、深海底の流速に相当する 1～2 cm/sec で行えるようにしてある。流速の測定は、循環系に設けたフロータービン型流量計で行い、これをコントロール室の計装盤に連続的に記録している。また、本装置は高圧機器を扱っていることによる危険を防止する観点から、現場での操作ならびに遠隔操作が可能なように製作されている。

Fig. 2.1 に本装置のフローシートを、また、Fig. 2.2 に本装置の冷却系のフローシートを示す。

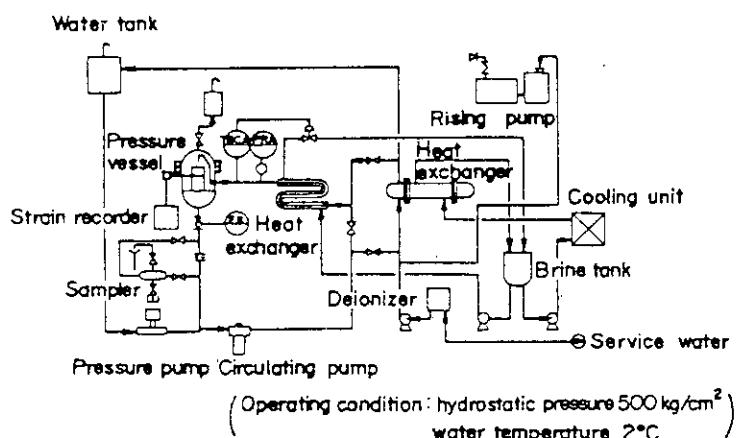


Fig. 2.1 Flowsheet of High Pressure Leach Test Apparatus for full size solidified waste.

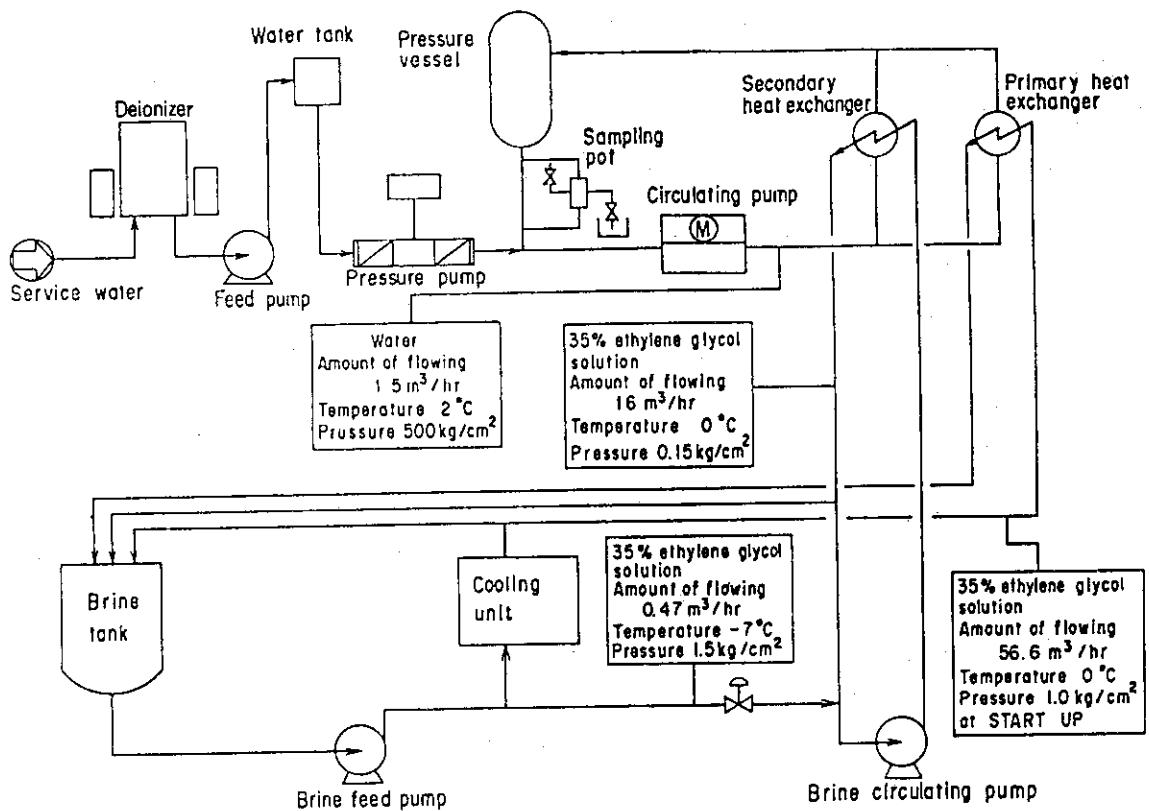


Fig. 2.2 Flowsheet for cooling of the apparatus

### 2.2.3 高圧水槽

本装置の主要部分である高圧水槽について説明する。

高圧水槽の設計にあたって、使用圧力  $500 \text{ kg/cm}^2$  に対して、設計圧力  $530 \text{ kg/cm}^2$  を、使用温度  $2^\circ\text{C}$  に対して設計温度  $0^\circ\text{C}$  をそれぞれ基準にした。高圧水槽の寸法は、使用する供試体のうち最も大きい  $200 \text{ l}$  ドラム缶 ( $60 \text{ cm} \phi \times 90 \text{ cm}$ ) の 1.5 倍、すなわち、内径は  $90 \text{ cm} \phi$ 、直胴部が  $135 \text{ cm}$  の円筒型とした。主要構造材は、ボイラ用鋼 A 533-BC 1 を使用し、その厚さは直胴部で約  $15 \text{ cm}$ 、湾曲部で  $7 \text{ cm}$  となっている。さらに腐食性、除染性を考慮して厚さ  $4 \text{ mm}$  の SUS 304 を内面に溶着し、その表面は、3.2 S パフ仕上げを施した。

高圧水槽の主要部は、水槽本体、蓋、本体と蓋の締付け用 4 分割 クランプ の他蓋取付け取外時のガイドバーおよび蓋上部に着脱可能なベントバルブより成っている。水槽本体内部には、循環水供給用のノズル、供試体設置用架台、計測用リード線取出端子（3個）および循環水出口の本体下部にセメントなどの細い粉塵を遮断するストレーナが設けてある。Fig. 2.3 に高圧水槽の断面を示す。これら内装部品の材質は、すべて SUS 304 である。

高圧水槽本体と蓋の締付け機構は、勾配付の溝を設けたクランプ（重量は各々 1 トン）と本体の溝の谷と山部を噛み合わせる機構となっている。さらに溝部の噛み合いが加圧によってゆるむことのないよう 4 分割したクランプと 3 本のクランプボルトで締付ける。ボルトの締付けには締付力を均等にかつ定量的に行うため、トルクレンチを使用する。

高圧水槽本体とその蓋との間の水密性は、 $500 \text{ kg/cm}^2$  といった高圧においても十分保持でき

なければならない。このため、本装置のモックアップを製作し、それによってバックアップリング、Oリング、溝の形状および材質について試験し、Fig.2.4に示す方式を探った。この方式の機構は、次のとおりである。すなわち、高圧水槽の圧力上昇に伴って本体と蓋との間隙は大きくなってくるが、ネオプレンゴム製Oリングの弾力性が常にその間隙に追随し、Oリングの伸縮に伴って、Oリングを上下に挟んだ2個の金属製バックアップリングが本体と蓋との間隙をふさいで行き、その強じん性が500 kg/cm<sup>2</sup>の高圧を抑える。

ドラム缶を外すした裸のセメント固化体を試験する場合には、高圧水槽に設置するセメント供試体の破損に備え、ステンレス製の供試体用ケージを使用する。

高圧水槽循環系配管には、SUS 304、肉厚18 mmの3B管を使用し、溶接部は90箇所全部について<sup>192</sup>Ir線源による放射線透過検査を行った。線源の強さは6 Ciであり、溶接部から40 cm離して1箇所につき10分間の照射を行い、溶接部全部の写真撮影を行った。写真判定の結果は、全数合格であった。この他、高圧配管系以外で、放射性汚染水が流れる配管系の溶接部は、全数カラーチェックを実施し、欠陥のないことを確認した。

配管系のうち、冷却水およびブライインが流れる配管については、可能なかぎり保冷した。

高圧水槽、高圧循環系配管などの溶接部の材質は、放射性物質の表面付着量が少なく、かつ耐食性の材料であることが要求される。候補材料として、SUS 304、フェノール系コーティングおよびエポキシ系コーティングの3種類を選び、これらの試験片をpH 12、濃度100 μCi/mlの<sup>137</sup>Cs水溶液に一定時間浸漬し、汚染量の測定、約2 N硝酸での除染および水洗後の残存汚染量の測定を行った(Table 2.1)。その結果、<sup>137</sup>Csの耐汚染性ならびに除染性ともに優れているSUS 304を選定した。

Table 2.1 Results of contamination and decontamination test

Specimen <sup>a)</sup>	Radioactivity (cpm/specimen)		Residual activity after decontamination (cpm/specimen)		Decontamination factor	
	3 hr	24 hr	3 hr	24 hr	3 hr	24 hr
SUS 304	$1.20 \times 10^4$	$1.22 \times 10^4$	$1.60 \times 10^3$	$1.72 \times 10^3$	7.5	7.1
Phenol resin coating	$1.85 \times 10^4$	$3.12 \times 10^4$	$3.51 \times 10^3$	$6.10 \times 10^3$	5.3	5.1
Epoxy resin coating	$3.63 \times 10^5$	$4.12 \times 10^5$	$6.40 \times 10^4$	$1.63 \times 10^5$	5.7	2.5

a) Size of specimen: 15mm × 15mm × 2mm

高圧水槽内の循環水としては、先にも述べたように海水を用いるべきであるが、装置接液部の腐食および放射性汚染海水の処理等を考えてイオン交換脱塩水を用いることとした。海水による実験は、小規模固化体(IAEAサイズ)によってのみ行った。

高圧水槽内の水のサンプリングについては、500 kg/cm<sup>2</sup>の定圧保持状態下で、大きな圧力変動を与えることなく約1 lの浸出水を完全に採取でき、かつ減少分は自動的に補充できるものである。

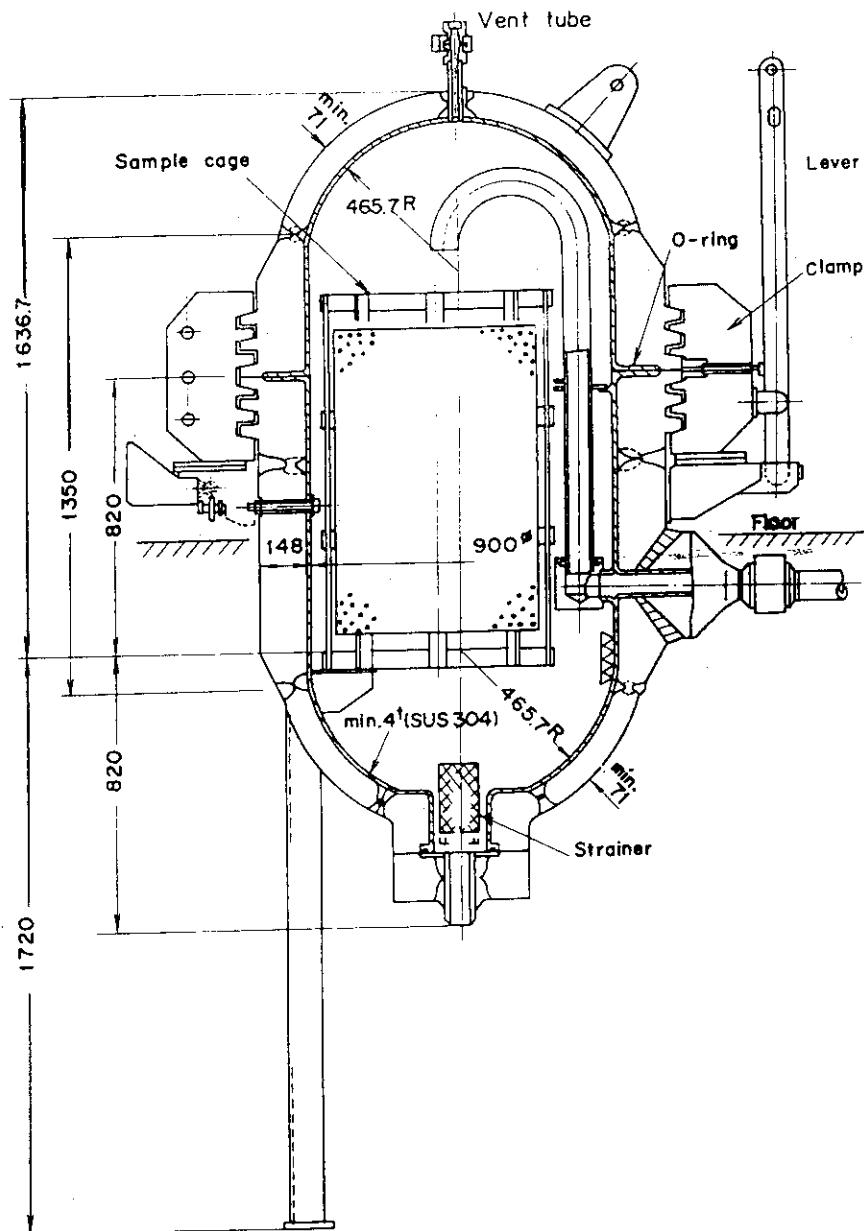


Fig. 2.3 Cross section of pressure vessel

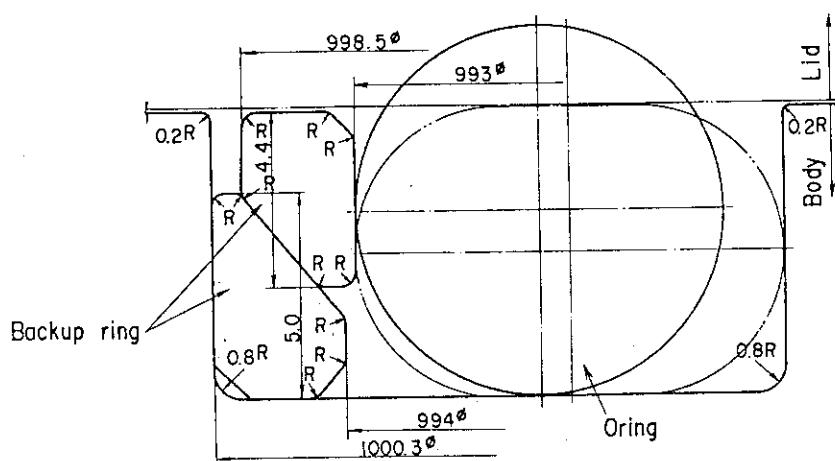


Fig. 2.4 O-ring and backup ring at the pressure vessel

### 2.2.4 その他の機器

本装置は、高圧水槽のほか、2.2.2装置の概要のところで述べた性能を十分発揮するために必要な増圧機、冷凍機、熱交換器、循環ポンプ等を備えている。これら機器の詳細は省略するが、装置の構成、装置の概略諸元等はFig.2.1およびFig.2.2に示してある。

### 2.2.5 おわりに

本装置は、本装置を収容する廃棄物処理処分開発棟とともに、放射性廃棄物および放射線被曝に対する障害防止対策、ならびに火災、地震および機器の異常等による人身あるいは機器の破損に対する安全（事故防止）対策を十分に検討し、厳重な審査の後、1975年2月より同装置の特性試験もかねて本格的な運転を始めた。これまで、セメント均一固化体の健全性試験ならびに浸出試験をはじめ、各種パッケージの安全性試験を行い、数々の期待された成果をあげてきた。

## 2.3 深海中健全性模擬試験

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、セメントと均一に練り混ぜて、200 ℥ドラム缶内で固化する処理方法が一般的に採られている。

このドラム缶詰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、処分体の主体となる。<sup>9)</sup>

海洋処分に備えた放射性廃棄物パッケージの安全性評価にあたって、深海底条件に対応する高水圧下のパッケージの健全性は、その浸出挙動とともに重要な検討項目である。

OECD/NEAのガイドライン<sup>1)</sup>によれば、パッケージは、最小限次の要件と合致しなければならないとしている。

- (1) パッケージは、海底までの落下中に作用する外水圧に耐え得るものでなければならない。
- (2) パッケージは、海底着底時の衝撃に対して損傷することなく、またそれ以降の期間については、最終的には放出されると思われる放射能が合理的に可能な限り少なくなるような、十分な強度をもたなければならない。

同様に、わが国の原子力委員会、放射性廃棄物安全技術専門部会<sup>2)</sup>は、海洋処分用パッケージは次の要件を満足すべきであるという方針を示した。

- (1) パッケージは、海底までの落下中、容器から内容物が漏れ出るような破壊を生じないこと。
- (2) パッケージは、海底に着底後もできるだけ長く、健全性を保つこと。

高水圧下のセメントパッケージの機械的な強度あるいはその他の性状に関する報告<sup>3)-7)</sup>はいろいろある。パッケージが海洋処分された場合、セメント固化体の一軸圧縮強度が150 kg/cm<sup>2</sup>以上あれば、パッケージの健全性は確保できるという報告<sup>9)</sup>がある。しかしながら、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、ドラム缶の一部または全部が破損した場合を考慮し、容器を具備しないようなセメント固化体が深海条件に置かれた場合の健全性については、まだ検討されていない。これらの知見は、海洋処分の安全性を確立するためには重要なものとなるであろう。

このようなことに鑑み、実大固化体高圧 RI 浸出試験装置を使用して、実大セメント均一固化体の深海底の条件における深海中健全性模擬試験を行った。

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 ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) の水溶液を模擬廃液として製作した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 5,000 m の条件 (水圧 500 kg/cm<sup>2</sup>, 水温 2°C, 水平流速 2 cm/sec) でうける機械的変化を比較考察しようとしたものである。

### 2.3.1 試験の概要

#### 2.3.1.1 試験体の製作

使用したセメントは、C種高炉スラグセメントと普通ポルトランドセメントの2種である。Table 2.2 にその物理的性質および化学的成分を示す。骨材には、人工軽量砂（三井金属 K.K. 製メサライト）、ゼオライト（北海道長万部産）、川砂（茨城県那珂川産）および使用済イオン交換樹脂を用いた。模擬廃液には、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 ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) の水溶液を、また使用済イオン交換樹脂セメント固化体の模擬廃液には、樹脂とセメント水和物により生じたアルカリ性物質との作用によって生ずる膨張破壊を防止するため<sup>10)</sup>、3.5% の水酸化ナトリウム水溶液（あらかじめ樹脂を膨張させておくためのもの）を使用した。試験用固化体の試験 No. とその配合を Table 2.3 に示す。セメントなどの攪拌は、使用済イオン交換樹脂セメント固化体の場合は 200 rpm で行い、それ以外は 138 rpm で行った。充分に混練したモルタルは、200 ℥ ドラム缶に充填し、約 1 ヶ月の空气中養生を行って固形化した。同時に、同固化体の圧縮強度を知るため、JIS A1132 の方法にしたがって、10 cm  $\phi \times 20$  cm の圧縮強度試験用供試体を各々 3 個作製した。

試料 No.C-11 では、ドラム缶を外はずした裸の固化体の表面にコールタールエポキシ樹脂（大日本塗料 K.K. 製）を塗布して、厚さ 1 mm の耐水性の被覆で被膜したものを用いた。

使用した 200 ℥ ドラム缶は、材質が熱間圧延軟鋼板で、その厚さ 1.2 mm, JIS Z1601, 3 種規格品を用いた。

試験に用いた各試験体の状態ならびに加圧条件を Table 2.4 に示す。

#### 2.3.1.2 試験条件

試験 No.C-1 から C-11 までの試験体を用いて、深海中健全性模擬試験を行った。

海洋処分は、IAEA の勧告の改定案<sup>11)</sup>によれば、水深 4,000 m 以上の海域で行うべきであるとしている。そのような海底の水温は、緯度が 50 度より低いところでは 1~2°C であり<sup>12)</sup>、深層流の平均流速は一部を除き<sup>13)</sup> 数 cm/sec であることが知られている<sup>14)</sup>。また、セメントパッケージの海中落下速度は 2.2~3.3 m/sec である。これらの条件を考慮して試験条件は水圧 500 ± 7.5 kg/cm<sup>2</sup>、水温 2 ± 1°C、高圧水槽内の試験体の側面における流速 1.2 cm/sec とした。圧力は、試験体の海中落下速度にほぼ見合った速度で、すなわち 500 kg/cm<sup>2</sup> まで 40 分間で昇圧した。また、それとは別に 500 kg/cm<sup>2</sup> まで 6 時間かけた試験も行った。500 kg/cm<sup>2</sup> の状態を約 2 時間保持した後、いずれの場合も昇圧と同程度の速度で降圧を行った。

Table 2.2 Physical property and chemical composition of cement

## a) Physical property\*

	Fineness			Time of setting			Soundness			Strength (kg/cm <sup>2</sup> )		
	Specific gravity	Specific surface residue (cm <sup>2</sup> /g)	<88 μ residue (%)	Initial (hr-min)	Final (hr-min)	Boiling test	Soaking test	3 days	7 days	28 days	3 days	7 days
Normal Portland cement	3.15	3110	2.0	2-17	3-20	Good	Good	32.1	50.1	70.8	126	234
Blast furnace slag cement	2.99	3850	1.0	4-32	5-31	Good	Good	22.8	39.9	62.7	83	176

\* According to Japanese Industrial Standard R 5201

## b) Chemical composition (%)

	Loss on ignition	Insoluble residue	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>	Total
Normal Portland cement	0.7	0.5	21.7	5.3	3.3	64.7	1.3	1.6	99.1
Blast furnace*** slag cement	0.9	0.3	28.6	11.9	1.5	49.2	3.8	2.2	99.2

\*\* According to Japanese Industrial Standard R 5210

\*\*\* According to Japanese Industrial Standard R 5211

Table 2.3 Mix proportions of specimens for simulation test of deepsea integrity

Specimen No.	Cement	Simulated waste	Aggregate	Wa/C (w/o)	A/(A+C) (w/o)
C-1	S	20% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Zeolite	67	20
C-2	S	"	Sand	63	29
C-3	S	"	—	42	—
C-4	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Mesalite	63	33
C-5	S	Spent resin* 3.5% NaOH	—	28 39	—
C-6	P	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Mesalite	63	22
C-7	P	"	"	83	25
C-8	P	"	"	63	22
C-9	S	"	"	63	22
C-10	S	"	"	63	22
C-11	S	"	"	63	22

S : Blast furnace slag cement, P : Normal Portland cement,

A : Aggregate, C : Cement, Wa : Simulated waste

\* Spent resin (Wa/C = 28) was treated with 3.5%NaOH aqueous solution (Wa/C = 39)

## Notes:

Grain size of aggregate used: Zeolite = 177~254μ, Sand = 105~297μ,  
Mesalite = <5mmSpecific gravity of aggregate used: Zeolite = 3.36, Sand = 2.65,  
Mesalite = 1.86

Table 2.4 Appearance of package and pressurizing condition

Specimen No.	Appearance of package	Exposed surface (%)	Period to attain 500kg/cm <sup>2</sup> (min.)
C-1	Without drum	100	40
C-2	"	100	40
C-3	Drum with lid	0	40
C-4	Without drum	100	40
C-5	Drum with lid	0	40
C-6	Without drum	100	40
C-7	Drum without lid and bottom	25.6	40
C-8	Without drum	100	40
C-9	Drum without lid	12.8	360
C-10	"	12.8	360
C-11	Without drum and painted	0	40

Hydrostatic pressure 500 kg/cm<sup>2</sup>

Temperature 2 °C,

Flow velocity 1.2 cm/sec

試験に用いた各試験体の容器の形状ならびに加圧条件を Table 2.4 に示した。

高水圧で固化体がどのくらい吸水するかを知るため、各試験体について試験前後の重量を測定した。また、ドラム缶外被をはがした裸のものについては、加圧時に固化体から発する音をテープレコーダに録音しておき、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変化を知ることを試みた。このためマイクロフォンを高圧水槽蓋に接触させて取付けた。

### 2.3.2 結果と考察

試験 No.C-1 から C-11 までの一軸圧縮強度を Table 2.5 に示す。今回の試験では、圧縮強度はすべて 150 kg/cm<sup>2</sup> 以上あった。すなわち、セメント固化体が深海圧によって損なわれるこ<sup>1)</sup>とがないためには、一軸圧縮強度は 150 kg/cm<sup>2</sup> 以上必要であるという基準<sup>1)</sup>を満足している。試験 No.C-5 の試験体は、セメントに比してイオン交換樹脂の配分が多かったためか、セメントの結合力が弱く、したがって、他の試験体に比較して低い圧縮強度を示した。

Table 2.5 Experimental results of simulating test of deepsea integrity

Specimen No.	Uni-axial compressive strength <sup>a)</sup> (kg/cm <sup>2</sup> )	Visual inspection	Increase in weight (%)
C-1	392	Cracked	3
C-2	341	"	3
C-3	492	No cracks	1
C-4	295	Cracked	3
C-5	178	No cracks	1
C-6	328	Cracked	3
C-7	367	"	2
C-8	398	"	3
C-9	372	No cracks	0.5
C-10	377	"	0.5
C-11	346	"	<0.5

a) Experimental result before simulating test of deepsea integrity

なお、Table 2.5 に示した一軸圧縮強度の値は試験体 3 個の平均値であるが、測定値の誤差は平均値の 10 % 以内である。

### 2.3.2.1 セメント固化体の健全性に及ぼす容器の効果と加圧条件

深海中健全性模擬試験の結果を Table 2.5 に要約した。Table 2.5 より 500 kg/cm<sup>2</sup> まで 40 分で昇圧させた場合、セメント固化体に与える容器の影響は次のとおりであった。

- (1) ドラム缶をはいだ裸の固化体の場合、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。
- (2) 完全なドラム缶付きの固化体については、ドラム缶外被と固化体の間の空隙部分は、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は水で満たされた。しかし、固化体にクラックの発生は認められなかった。
- (3) ドラム缶の上蓋および底板を外したものなど、ドラム缶で部分的に覆われている固化体は、露出部分にいくらかのクラックが観察された。

上記のように露出面を設けた固化体に変化が生じ、露出面のない固化体に変化が生じなかった

原因としてドラム缶の耐圧能力は考えにくい。すなわち、薄肉円筒の外圧を受ける場合の(1)式<sup>16)</sup>について計算すると、

$$P = m^2 E / 4 (m^2 - 1) \cdot (t/r)^3 \quad (1)$$

ここで、

P: 円筒が耐えうる限界圧力 ( $\text{kg}/\text{cm}^2$ )

m: ポアソン数 (鋼は約 3)

E: ヤング係数 (鋼は  $2.1 \times 10^6 \text{ kg}/\text{cm}^2$ )

t: 板厚 (ドラム缶の場合 0.12 ~ 0.16 cm)

r: 円筒の半径 (ドラム缶の場合 29 cm)

(1)式より P は  $0.041 \sim 0.01 \text{ kg}/\text{cm}^2$  となる。(1)式は比較的長い薄肉円筒の式であって、ドラム缶では鏡板を有するために実際の耐圧能力はもう少しあるが、いずれにしても大きな耐圧能力がないことは明白である。

以上の結果から考えると、裸の場合にクラックが生ずるのは、水が圧入されるためと考えられる。これを確認するため、裸の固化体の表面に耐水性のコールタールエポキシ樹脂で被覆したもの(試験 No.C-11)を  $500 \text{ kg}/\text{cm}^2$  まで 40 分間で昇圧させ、試験を行った。

その結果、耐水性の被膜で被覆した固化体では、クラック等の変化は観察できなかった。以上のことからクラックの原因是、セメント固化体への高圧水の急激な浸入であるとの結論を得た。

上記に述べたクラックの原因をさらに確認するため、 $500 \text{ kg}/\text{cm}^2$  までの昇圧時間を 6 時間と延長した試験(試験 No.C-9, 10)を行った。

その結果、予期したように露出面をもつ固化体でもクラックは外観上認められなかった。したがって、クラックの原因是、セメント固化体への急激な水の浸入であることを確認した。

### 2.3.2.2 固化体の重量増加とパッケージの健全性との関係

高水圧によって固化体に浸入する水の量は、前述したクラックの発生と関係があるので、試験前後の各試験体重量を測定して、重量増加分を求めた。固化体の露出度は、Table 2.4 に示すとおりである。固化体の露出度と重量増加の関係を Fig. 2.5 に示す。なお、重量増加分は、水に浸したために吸収される水量も含まれる。Fig. 2.5 から概略次のことがいえる。

$500 \text{ kg}/\text{cm}^2$  まで 40 分間で昇圧させた場合、固化体の重量増加は、重量比でドラム缶付きのものがパッケージ全体の重量の約 1%, ドラム缶の上蓋および底板を外すしたもの 2%, ドラム缶外被をはがした裸のもので 3% であった。また、 $500 \text{ kg}/\text{cm}^2$  まで 6 時間かけて昇圧したもの(試験 No.C-9, 10)は、40 分間で昇圧したものに比べ、はるかに低い重量増加を示した。さらに、耐水性の被膜で被覆したもの(試験 No.C-11)は、 $500 \text{ kg}/\text{cm}^2$  まで 40 分間で昇圧しても重量増加はほとんど認められなかった。

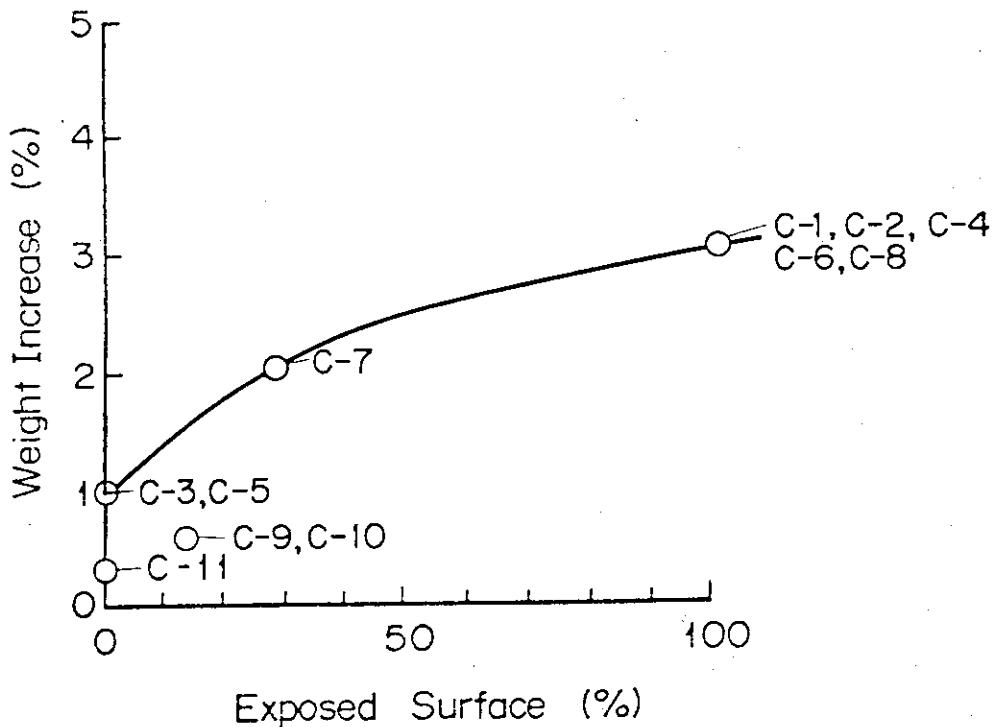


Fig. 2.5 Relationship between exposed surface and weight increase of packages.

### 2.3.2.3 高水圧中におけるセメント固化体からの発生音

前項で述べたように露出面のある固化体に急激な高水圧をかけると、クラックが発生する。この破壊状況をつかむため、テープレコーダでクラック発生とともに音をとらえ、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、それによってクラックの発生時期およびその程度を推定した。Fig. 2.6 に試験 No.C-8 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。ここで装置の冷凍機や増圧機などの暗騒音は、75 ホンであった。この図からクラックは、 $250 \text{ kg/cm}^2$ あたりから発生し、約  $300 \text{ kg/cm}^2$  から著しくなって  $500 \text{ kg/cm}^2$  まで続き、 $500 \text{ kg/cm}^2$  の定圧保持時は徐々に減少し、降圧時には全く発生しなくなっていると推定できる。また、クラックの発生音を加圧時間と対応してみた場合、加圧を開始して 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減少することがわかる。

ドラム缶の上蓋のみ外すし、 $500 \text{ kg/cm}^2$  まで 6 時間かけて昇圧した固化体の圧力とクラック音の関係を Fig. 2.7 に示す。また、ドラム缶なしの裸の固化体の表面に耐水性の被膜で被覆し、 $500 \text{ kg/cm}^2$  まで 40 分間かけて昇圧した試験体の圧力とクラック音の関係を Fig. 2.8 に示す。いずれの場合もクラック音は極度に減少し、その強さも最大で 80 ホンを越えることはなかった。この結果からもクラック発生の原因は、固化体への高圧水の急激な浸入であると結論することができる。

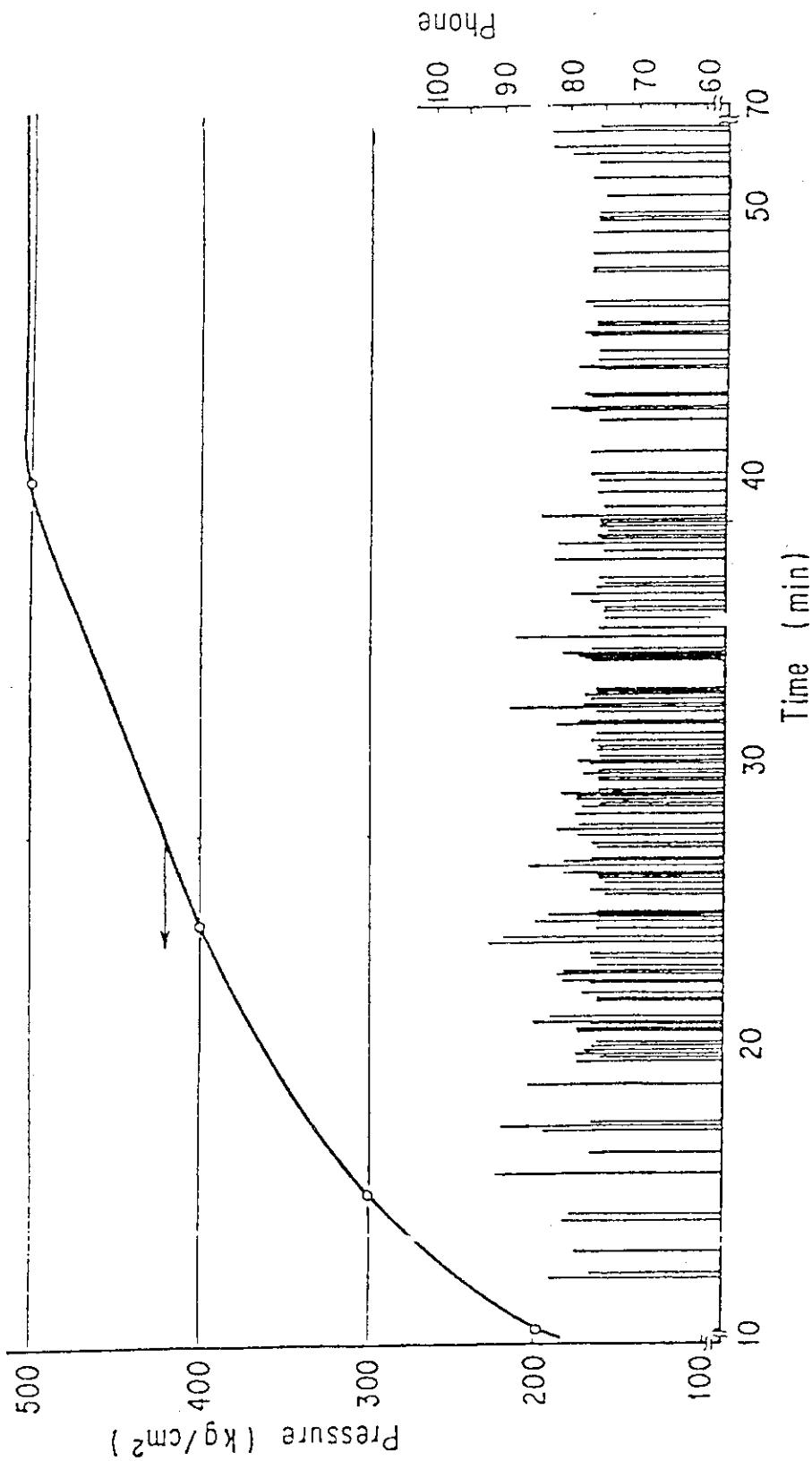


Fig. 2.6 Relationship between hydrostatic pressure and crack sound (1).  
Period to attain 500 kg/cm<sup>2</sup>G, 40 min.; specimen, slag cement  
solidified product of simulated evaporator concentrate from  
BWR without drum.

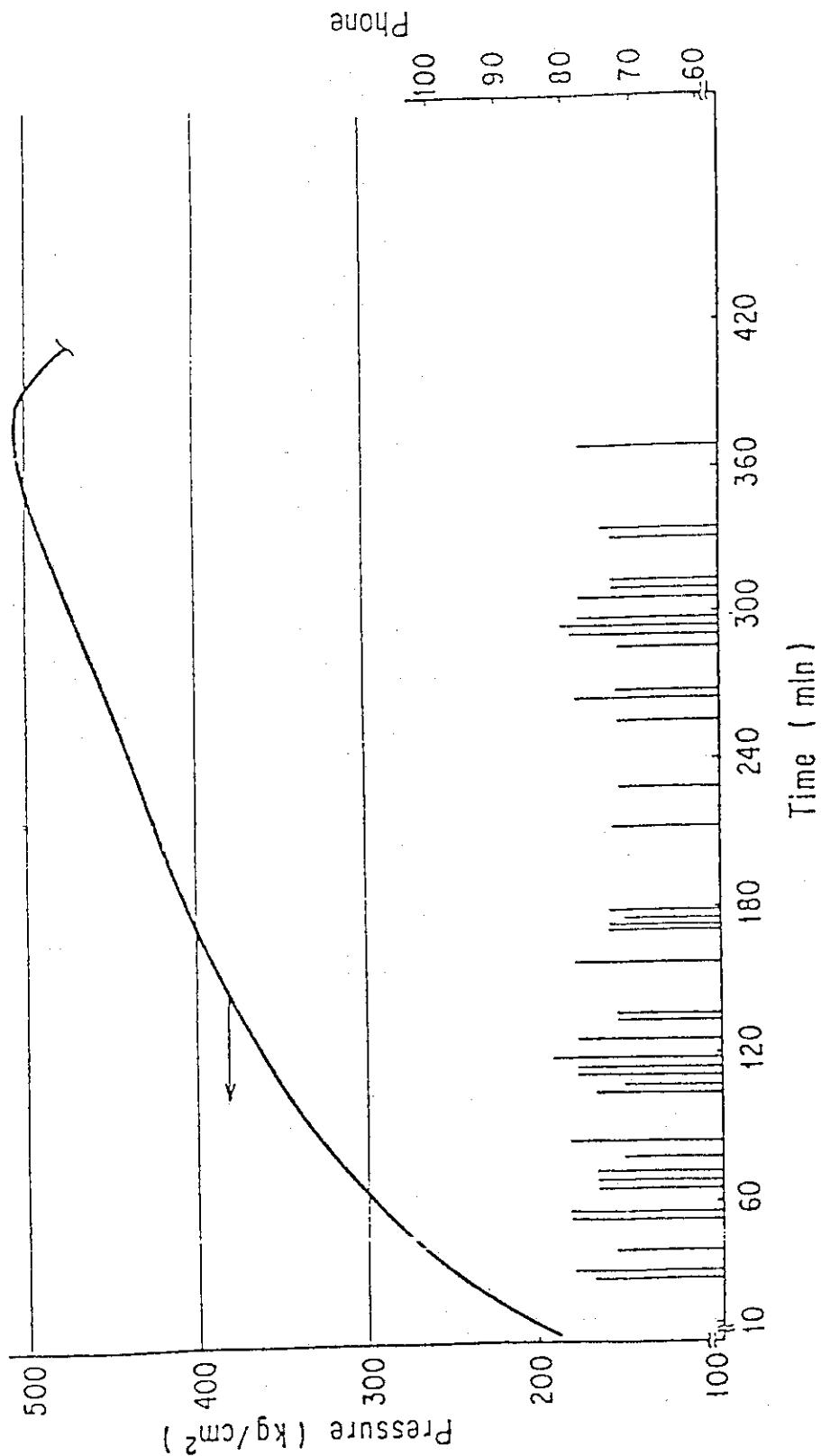


Fig. 2.7 Relationship between hydrostatic pressure and crack sound (2).  
Period to attain 500 kg/cm<sup>2</sup>, 360 min.; specimen, slag cement  
solidified product of simulated evaporator concentrate from  
BWR packaged in a drum without lid.

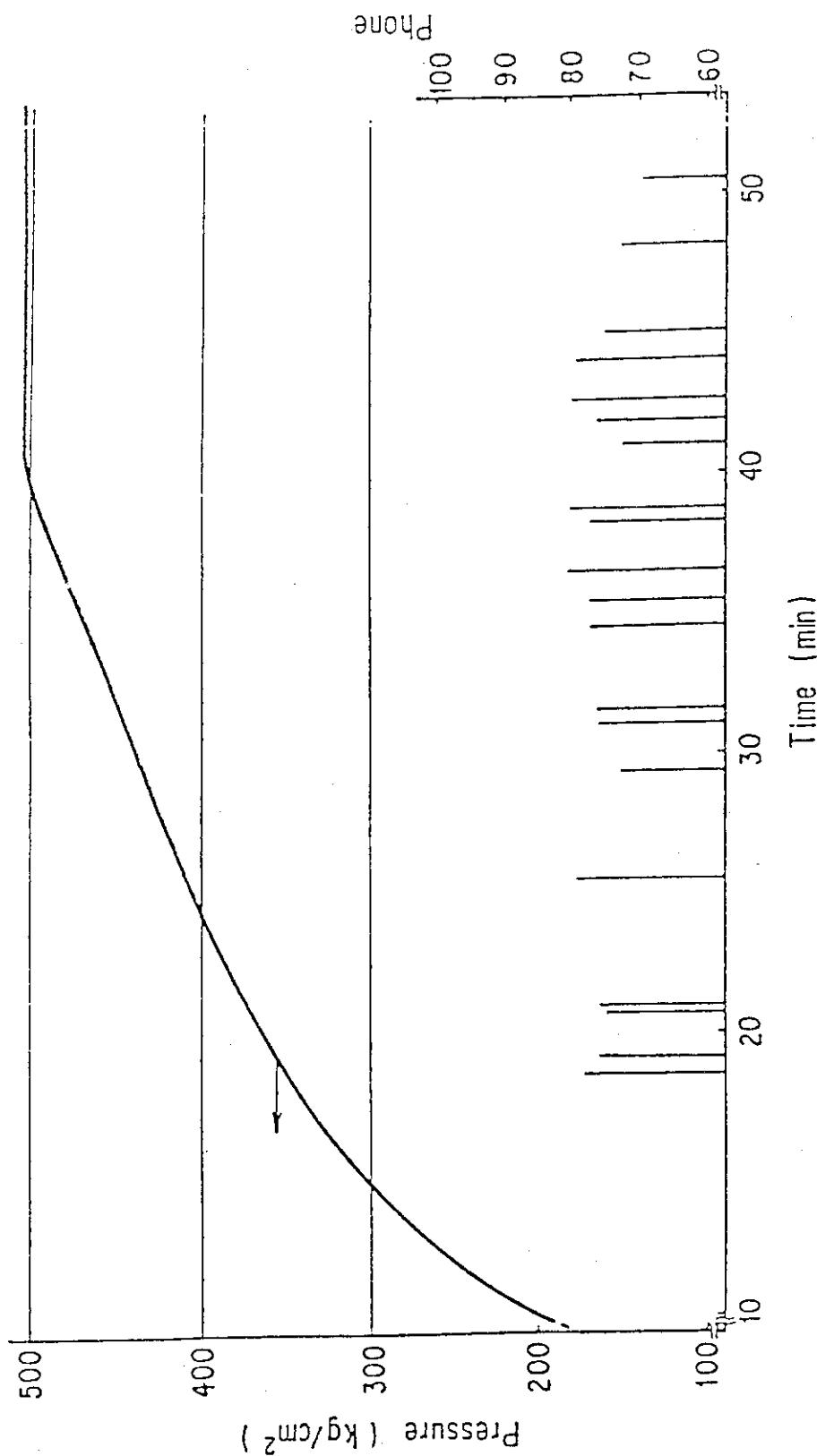


Fig. 2.8 Relationship between hydrostatic pressure and crack sound (3).  
Period to attain 500 kg/cm<sup>2</sup>G, 40 min.; specimen, slag cement  
solidified product of simulated evaporator concentrate from  
BWR without drum but coated with waterproof paint.

## 2.4 放射性廃棄物セメント均一固化体の圧縮強度試験

原子力発電所から排出する低レベル放射性廃棄物のドラム缶詰めセメント均一固化体は、わが国で近い将来、実施が予定されている試験的海洋処分に用いられる処分体の主体となるものである。これら処分体が海洋投棄時の水圧、海面および海底での衝突に対して、放射性物質が漏洩するような破損を生じないためには、セメント固化体の強度が一軸圧縮強度で  $150 \text{ kg/cm}^2$  以上確保されなければならないことが定められている。<sup>2)</sup>

本研究は、海洋処分の場合に、 $150 \text{ kg/cm}^2$  以上の一軸圧縮強度をもつ、すなわち健全であるセメント固化体を得るため、JIS 規格にのっとり、固化体の配合、模擬廃液の種類および固化体の作製条件等を大きさが  $10 \text{ cm} \phi \times 20 \text{ cm}$  の試験体を使って、検討したものである。

### 2.4.1 試験の概要

#### 2.4.1.1 試薬および使用器具

BWR 系模擬廃液の作成には、硫酸ナトリウム（工業用芒硝）を、PWR 系模擬廃液には、ホウ酸（一級）と水酸化ナトリウム（一級）を使用した。セメントには普通ポルトランドセメントおよび C 種高炉スラグセメントを使用した。これらセメントの物理的性質および化学的成分を Table 2.2 に示した。骨材には、乾燥状態の人工軽量砂（粒径  $5 \text{ mm} \phi$  以下）とゼオライト（北海道長万部産、粒度  $177 \sim 254 \mu$ ）を使用した。ゼオライトの化学成分を Table 2.6 に示す。

Table 2.6 Chemical composition of zeolite used

Composition	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	CaO	TiO <sub>2</sub>	MnO
Weight - %	76.50	7.05	3.77	2.98	2.40	2.28	2.66	1.92	0.12	0.11

試験体の製作器具としてはミキサー（攪拌速度  $106 \sim 563 \text{ rpm}$  可変型）、湿潤養生器（設定温度  $20^\circ\text{C}$ 、湿度 90%）および圧縮試験用型わく（ $10 \text{ cm} \phi \times 20 \text{ cm}$ ）などを使用した。圧縮試験機には、容量 100 トンのアムスラー型のものを用いた。

#### 2.4.1.2 試験体製作と試験方法

セメント、骨材および模擬廃液などをミキサーを用いて均一に混練し、セメントモルタルとした。

原材料のミキサーへの投入は、セメント、骨材および模擬廃液の順とし、ビータ型攪拌翼を使い、 $125 \text{ rpm}$  で 3 分間練り混ぜた。模擬廃液は  $50^\circ\text{C}$  に加熱した水道水に硫酸ナトリウム（BWR 系）またはホウ酸（PWR 系）を所定濃度となるよう溶解し、さらに pH を前者で  $8 \sim 9$ 、後者で  $12.5 \sim 13.0$  になるように水酸化ナトリウムで調整して使用した。練り上がったセメントモルタルは、同組成について 3 個づつ  $10 \text{ cm} \phi \times 20 \text{ cm}$  の圧縮試験用型わくに打設して、湿潤養生（温度  $20^\circ\text{C}$ 、湿度 90% 以上）および水中養生（水温  $20^\circ\text{C}$ ）を行い、材令 28 日における圧縮強度をアムスラー試

験機により求めた。圧縮試験は、3個づつ行い、圧縮強度（一軸）の値はその平均値を探った。

#### 2.4.2 結果と考察

セメント固化体の最終的な強度（強度の増加が頭打ちになる時点での強度）は、混練水の量によって決定され、セメントの粉末度や化学成分などによる影響は少ない。<sup>17)</sup>また、Table 2.7に示す実験値から高炉セメントの強度とポルトランドセメントの強度には、大きな差が見られなかつた。これらから、以下の(1)～(6)に示すセメント固化体についての大まかな概念<sup>18)</sup>を用いて本研究をまとめた。

Table 2.7 Comparison of compressive strength of solidified with different cement

Cement	A	Wa	Wa/C	A/C	Compressive strength (kg/cm <sup>2</sup> )
Normal portland cement			0.60	0.43	379
Blast furnace slag cement	Standard sand 15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		0.60	0.43	349

A : Aggregate

Wa : Simulated liquid waste

C : Cement

- (1) セメントと水が接触した直後は、セメント粒子の堆積状態を形成し、その粒子間の空隙は自由水（キャピラリー水）で満たされる。
  - (2) セメントは完全な水和に至るまでに一定重量（ポルトランドセメントではその重量の1/4）の水と化学的に結合し得る。
  - (3) 上記の結合によって、それに要した水の1/4（セメント重量の1/16）が失なわれる。
  - (4) セメントは化学的な結合水の他に一定量（ポルトランドセメントではその重量の15%）の水をゲル水としてルーズな形で結合する。このゲル水は未水和のセメントと反応することができないでその後蒸発してしまう。
  - (5) セメントの水和生成物は主としてセメントゲルから成り、ゲル水が乾燥蒸発したセメントゲルはその体積の1/4に達するゲル空隙を含む。
  - (6) セメント固化体の強度は、固化体の全ボロシティ（キャピラリー空隙とゲル空隙）で決まる。
- したがってセメントの水和反応を完全に行わせるためには、上記の(2)（水がセメントの1/4）と(4)（水がセメントの15%）より、セメントー水比は2.5（水ーセメント比40%）が適切となる。

## 2.4.2.1 BWR 系セメント固化体の一軸圧縮強度

Fig. 2.9 に模擬廃液（以下廃液と呼ぶ）の硫酸ナトリウム濃度が 10 % および 25 % のセメント固化体の一軸圧縮強度（この節では以下圧縮強度と呼ぶ）とセメント一廃液（C/Wa）との関係を示す。C/Wa が大きくなるほど圧縮強度は漸増傾向を示しているが、硫酸ナトリウム濃度が 25 % で、C/Wa が 3.0 の固化体では C/Wa が 2.5 の場合より低下する傾向が見られる。本試験の範囲内では、硫酸ナトリウム濃度が 10 % の廃液で、圧縮強度が最大 ( $475 \text{ kg/cm}^2$ ) を示す固化体のセメント一水比 (C/W) は 3.3 であり、25 % 濃度の最大圧縮強度 ( $570 \text{ kg/cm}^2$ ) をもつ固化体の C/W も 3.3 であった。この値はセメントの水和度 100 % における C/W の値 2.5 より大きく、固化体の強度に貢献しない未反応セメントの存在が予想される。ここではある範囲で C/W が 2.5 より大きくなても強度増加が見られた。（注、ポルトランドセメントの場合、C/W が 3.3 まで強度は増加した。）

ここで前述の前提条件を基礎にしてセメント固化体のポロシティーとの関係を概略考察してみる。

硫酸ナトリウム濃度が 25 % または 10 % でも最大の圧縮強度を示す固化体の C/W はいずれも 3.3 であった。

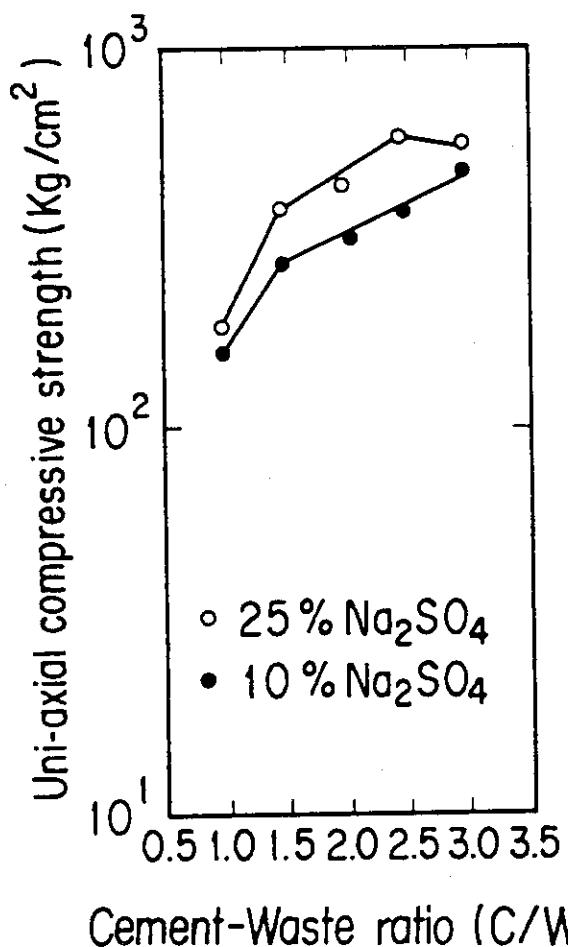


Fig. 2.9 Effect of cement-simulated liquid waste (C/Wa) on compressive strength

今、大きさが  $10 \text{ cm} \phi \times 20 \text{ cm}$  の固化体 1 個をつくるのに要するセメントの量を約 2.5 kg (セメントの比重を 3.1 とすると、体積は 806 cc) として、できる固化体 (セメントゲル) の体積を計算すると、 $C/W = 3.3$  の関係から混練に要した水は、758 g である。

ここで、その内水和したセメントの量を X とすると、

$$\text{水和による収縮体積} = 1/16 X$$

$$\text{水和による固相生成物の占める体積} = 1/3.1 X + 1/4 X - 1/16 X = 0.51 X$$

$$\text{ゲル水} = 0.15 X$$

$$\text{水の総量} = 0.25 X + 0.15 X = 0.4 X = 758 \text{ g}$$

$$\text{よって, } X = 1895 \text{ g} = 611 \text{ cc}$$

以上から

$$\text{固化体の体積} = (0.51 + 0.15) \times 1895 = 1250 \text{ cc}$$

が得られる。また、

$$\text{固化体の未水和セメント} = 806 - 611 = 195 \text{ cc}$$

$$\text{固化体の空隙} = (806 + 758) - (1250 + 195) = 119 \text{ cc}$$

水中養生時にこの 119 cc の空隙部分に水が供給されて、未水和のセメント 195 cc の水和反応が進むため、空隙の体積はさらに小さくなっている。C/W = 3.3 の固化体は、2.5 のそれより強度が増加するものと考えられる。

Fig. 2.10 は、縦軸に圧縮強度をとり、横軸にセメントと硫酸ナトリウムの和を固化体に対する重量比で表わしたものである。ほぼ直線的に強度が増加している。

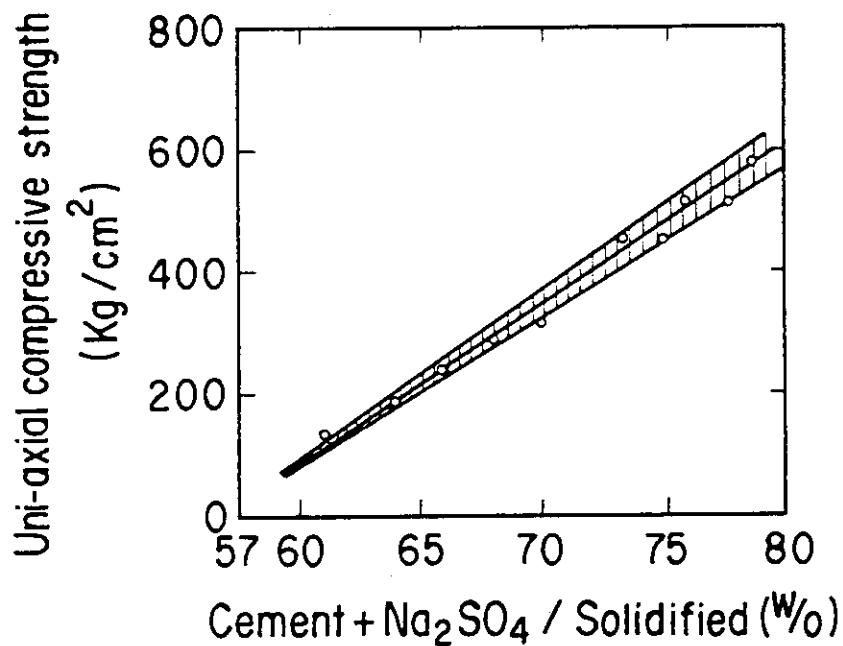


Fig. 2.10 Relationship between (cement+Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/solidified, w/o) and compressive strength

Fig. 2.11 は、骨材として人工軽量砂を用いた圧縮強度と骨材比  $(C+M)/Wa$  との関係を示した。ここでは  $C/Wa$  を一定にして人工軽量砂の添加量を変化させた配合とした。人工軽量砂の吸水量は比較的大きいので、実質的な  $C/W$  は、骨材比が増加するにつれて増加する。いずれの固化体も  $400 \text{ kg/cm}^2$  以上の圧縮強度を示した。

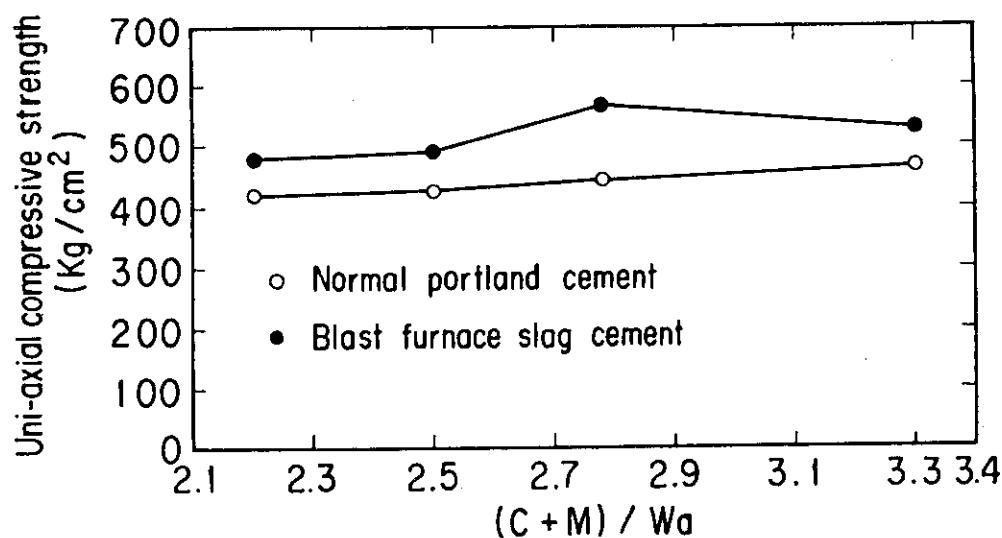


Fig. 2.11 Relationship between  $(C+A/Wa)$  and compressive strength  
C: Cement, Aggregate(Mesalite), Wa: Simulated liquid waste

骨材としてゼオライトを用いた場合の配合とその場合の圧縮強度を Table 2.8 に示す。セメントと水の割合がある程度の範囲で適正であるならば、含有するゼオライトの多少にかかわらず、十分に強度をもっていることがわかる。

Table 2.8 Composition and compressive strength of solidified used zeolite

Cement	Zeolite	Wa <sup>a</sup>	Flow value (mm)	Compressive strength ( $\text{kg}/\text{cm}^2$ )
25	25	50	251	125
47	11	42	239	320
54	6	40	256	355
58	3	39	263	470
66	1	33	261	325

a) Waste is 15%  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  ( $50^\circ\text{C}$ ).

以上、BWR系廃液のセメント固化体について配合その他種々検討したが、この実験で行った程度の配合のセメント固化体では、一軸圧縮強度  $150 \text{ kg/cm}^2$  以上は、十分確保できることがわかる。

#### 2.4.2.2 PWR系セメント固化体の一軸圧縮強度

PWR型原子力発電所から排出する濃縮廃液の主成分は、ホウ酸溶液である。

そこでホウ酸濃度を2~12%の範囲にとり、C/Waを2.38~3.03として製作した固化体は、圧縮強度試験の結果、廃液のホウ酸濃度が2%のポルトランドセメント固化体を除いて、水酸化ナトリウムでpH調整を行わない限り強度の発現が認められなかった。

ホウ酸の存在はセメントの水和反応によって生成するケイ酸カルシウム( $3\text{CaO}\cdot 2\text{SiO}_2\cdot 3\text{H}_2\text{O}$ )やアルミン酸カルシウム( $3\text{CaO}\cdot \text{Al}_2\text{O}_3\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ )の水和物の形成を阻害する。<sup>10)</sup>そこで水和を進行させるものとして、水酸化ナトリウムの代りの添加材に水酸化カルシウム( $\text{Ca(OH)}_2$ )を用い、その添加効果をしらべた。

Table 2.9には水酸化カルシウムを一定にしたときのC/Waと圧縮強度との関係を示した。いずれも $150 \text{ kg/cm}^2$ 以上の一軸圧縮強度を有し、強度の発現が認められた。このことより水酸化カルシウムを添加することの効果が認められた。

Table 2.9 Composition and compressive strength of solidified used calcium hydroxide ( $\text{Ca(OH)}_2$ )

C/A	C/Wa	pH of Wa	Flow value (mm)	Compressive strength ( $\text{kg/cm}^2$ )
100	2.78	12.5	115	226
100	2.56	12.5	126	275
100	2.38	13.0	134	308
100	2.00	12.5	209	208
100	1.72	13.0	249	181
100	1.52	13.0	279	170

A : Aggregate

Wa : Simulated liquid waste

C : Cement

## 2.5 海洋における健全性実証試験

海洋処分の実施に際し、事前の安全評価の中で放射性廃棄物パッケージの深海高圧下における機械的性状は、重要な検討項目の一つである。

このため、実大セメント均一固化体について深海中健全性模擬試験を実大固化体高圧 RI 浸出試験装置を用いて実施した。その結果、安全上問題となるような変化は認められなかった。

しかし、上記装置で模擬した以外の深海条件は、パッケージに影響をほとんど与えないと思われるものの、今までのシミュレーション実験は、海洋における実証試験と比較して種々の点で異なっている。すなわち、深海中健全性模擬試験では海水を用いていないこと、高圧水槽ではパッケージ内部へ水が浸入する場合、一時的に加圧速度が減少し、加圧条件は海洋におけるパッケージの落下にともなう加圧速度と異なる場合があること、したがって水温の降下速度も実際とは必ずしも一致しないことなどが上げられる。

以上のように陸上では海中と全く同一条件での試験が困難と思われる所以、上述の試験で得られた結果が、実際の海洋投棄の場合に適合するかどうかを見るため、海洋において実証試験を行った。

この結果は、実大セメント均一固化体を試験体として、この試験体の吊下ろし一回収試験を海洋の水深 5,000 m の範囲で行い、同時に試験体上部に取付けた深海カメラの連続写真撮影により、昇降時における試験体表面の変化を観察し、試験体回収後さらに詳細な検査を行って得られたものである。

### 2.5.1 試験の概要

#### 2.5.1.1 使用試験体

試験のため準備した試験体は、JIS Z 1600 M級ドラム缶詰めセメント均一固化体である。その製作仕様を Table 2.10 に示す。まず模擬廃棄物セメントモルタルをドラム缶に充填し、固化後、普通ポルトランドセメントを後打ち（キャッピング）した。後打ち部の厚さは 6.5 cm であった。ドラム缶蓋と後打ち部との間の空隙は 3.5 cm であった。

Table 2.10 Composition and uniaxial compressive strength of packages used in sea demonstration test

	Normal Portland cement (kg/m <sup>3</sup> )	Rough aggregate (kg/m <sup>3</sup> )	Small aggregate (kg/m <sup>3</sup> )	Water (kg/m <sup>3</sup> )	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (kg/m <sup>3</sup> )	Compressive strength (kg/cm <sup>2</sup> )
Solidified	220	—	270	50	1.5	390
Capping	340	994	648	173	—	—

## 2.5.1.2 海洋実証試験

上記試験体を用いて、水深 5,000 mまでの海洋実証試験を行った。水深 5,000 mまでパッケージを吊り下ろす際の機械的变化の追跡、記録は深海カメラによった。深海カメラは、カメラとストロボのそれぞれを耐圧ガラス球内に収容し、鋼製フレームで固定したものである。深海カメラの水中における絞り値および試験体との撮影距離（2 m）に対応する距離目盛は、あらかじめ陸上における予備試験で決定した。

深海中での試験体表面の写真撮影を実施するため、固化体の安定した落下姿勢が横吊りであること、ワイヤがねじれによる支障を起こさないこと（回転自在であること）、試験体の重量（480 kg）、フレームの重量（70 kg）、固化体とカメラの距離（2 m）などを考慮にして、Fig. 2.12 に示す吊り下ろし回収用吊り具を製作した。寸法は Fig. 2.12 に示すとおりである。

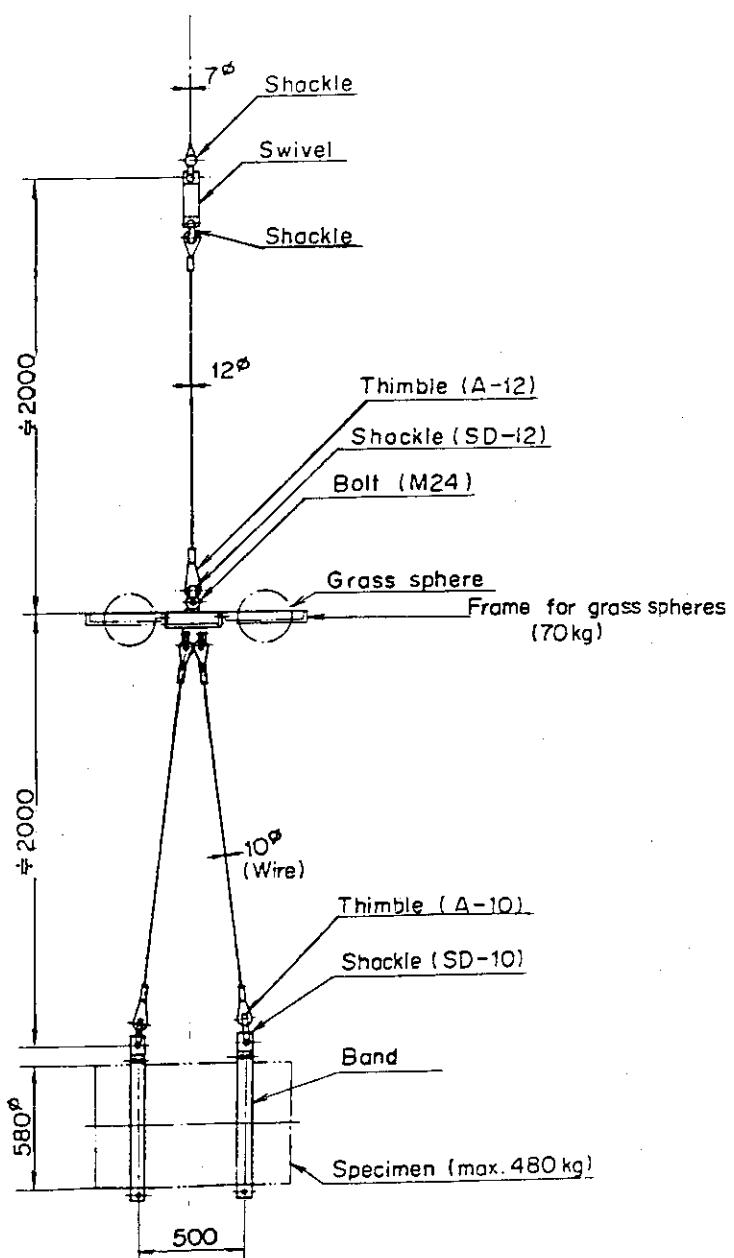


Fig. 2.12 Hanging tool.

水深 5,000 mまでのパッケージの降下速度は、試験船に取付けてあるウィンチの繰り出し速度に従って決めた。水深 5,000 mまでのパッケージの降下速度を決めるウィンチの繰り出し可能速度は 0.6～1.5 m/sec であるが、ワイヤロープを繰り出すにつれて最高速度が減少するので、本試験では 1 m/sec の繰り出し速度とした。水深 5,000 mに到達後は 10 分間保持した。その後の回収は、降下速度と同等で上昇させることとした。フィルムは最大 250 枚撮りのものを使用した。写真撮影は船上で 25 枚、降下時に 200 枚、水深 5,000 m 保持時に 25 枚できるようにした。このため、25.7 秒に 1 枚写真撮影をできるようにした。

海洋での試験は、海上保安庁水路部所属の「昭洋」を使用して行った。

本船のクレーンは、巻上荷重が 8 トン、揚程は角度 45° の位置で高さ 10 m である。ウィンチ（油圧式電動巻上機）は、馬力が 34 HP であり、ワイヤーの太さは端末部で 7 mm φ が 2,000 m、根本部で 9 mm φ が 4,000 m、全長 6,000 m である。

ワイヤー繰り出しおよび巻きとり速度は 0.6～1.5 m/sec で、変速可能である。

試験は、千葉県野島崎沖 90 海里 (160 km)、東経 143° 10'、北緯 33° 50' で行った。Fig. 2.13 に試験海域を示す。深海カメラおよび試験体（以下ユニットと呼ぶ）は海流、風による影響で流されるので船中央に設けてある BOW-THRUSTER により適宜船を操縦してワイヤを常に垂直状態に保持するようにした。そのため船は Fig. 2.14 に示す船跡をたどった。その間の水深は、5,140～5,180 m であった。

Fig. 2.15 に試験体の深さが時間の関数として示される。作業は深海カメラの点検から始めた。まず、焦点距離および絞り値が所定値であることを確認した。インターバルタイマーは 25.7 秒に設定した。カメラおよびストロボが正常に作動することを確認してから次いで耐圧ガラス球を開じ、鋼製フレームに固定した。

以下ユニット（前述）の着水までの手順を説明する。ユニット吊下げ用のシャックルにウィンチのワイヤの先端シングルをつなぎ、クレーンでユニットを吊り上げて船尾の舷側に振り出し、海面に降ろす。ユニットが着水すると同時にワイヤを少し卷いてワイヤのたるみを無くすると、円滑にユニットの荷重はクレーンからウィンチのワイヤに移る。この時、クレーンのフックは遊ぶことになるので、フックをユニットから外すし、ウィンチのワイヤを前述した速度で繰り出す。

## 2.5.2 結果と考察

### 2.5.2.1 パッケージ表面の写真撮影

試験はドラム缶の蓋を付けた状態で行った。試験開始および着水状況を Photo. 2.1 および Photo. 2.2 に示す。

パッケージ表面の写真撮影は、海が荒れていたため、船が大きく揺れ、深海カメラユニットが舷側に衝突した。そのためフィルムの巻上装置が止まり、成功しなかった。

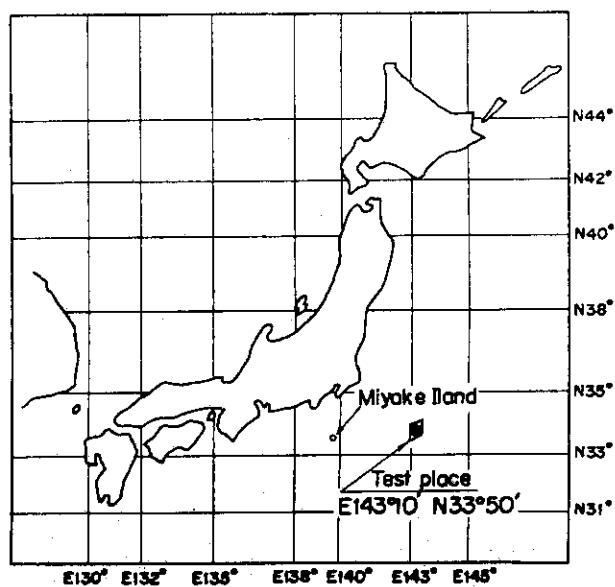


Fig. 2.13 Location of test

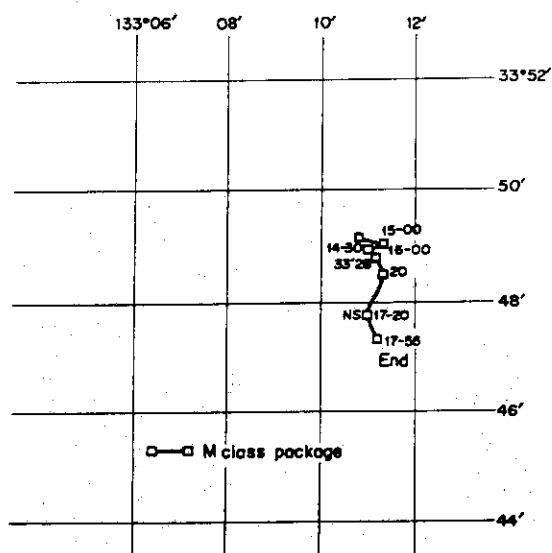


Fig. 2.14 Wake of Shōyō during test.

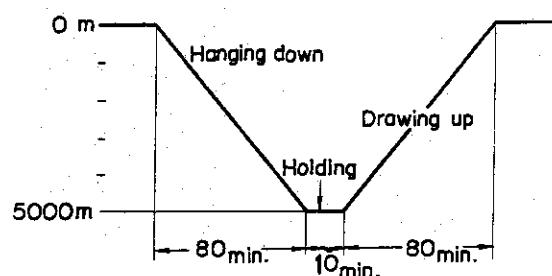


Fig. 2.15 Depth of specimen vs. time.

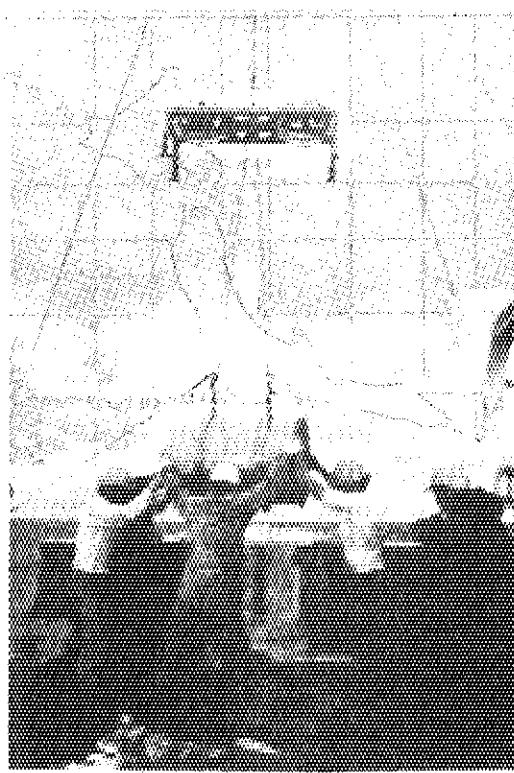


Photo. 2.1 Integrity demonstration test in ocean.

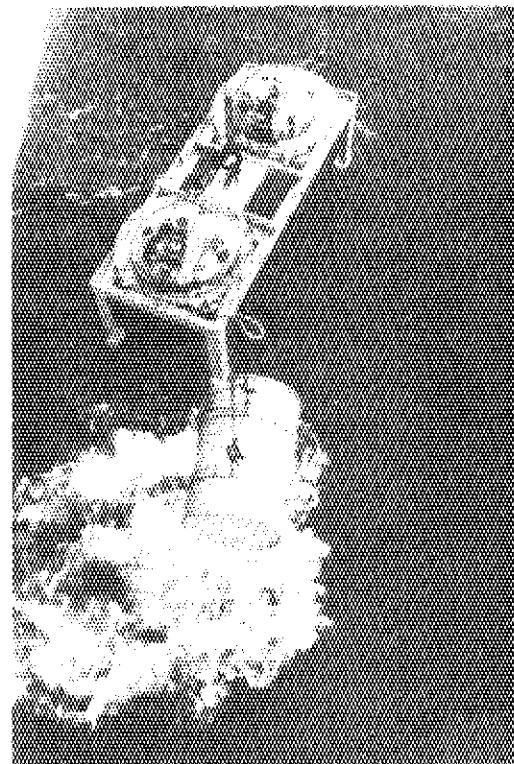


Photo. 2.2 Alighting of package on water.

### 2.5.2.2 回収パッケージの検査

試験体（試験前は Photo. 2.3 参照）は水深 5,000 m 到達後 10 分間保持し、これを回収した。ドラム缶蓋とドラム缶内の固化体との間にある間隙部は、蓋が凹んでほとんど消滅した。わずかに残った間隙には海水が浸入していた。Photo. 2.4 に見られるように、上記に述べた間隙がある部分のドラム缶外周部は、一様に巾 2 cm 程度の凹みを生じた。固化体とキャッピング部の境界にあたるドラム缶外周部もわずかに溝状に凹んでいた。さらにドラム缶を外すした後の裸の固化体についても外観検査を行った。クラックのような破損現象は全く見られず、健全なものであることが認められた。（Photo. 2.5 参照）

このような結果は、陸上における深海中健全性模擬試験の結果と同様であった。

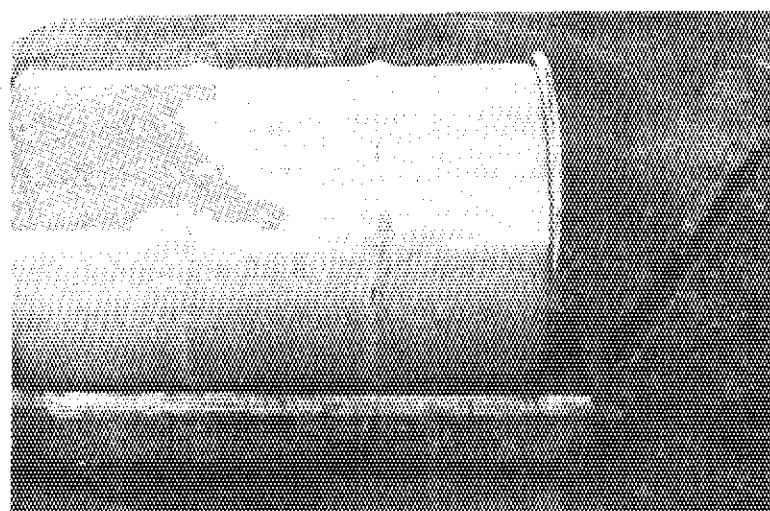


Photo. 2.3 Appearance of package before demonstration test.

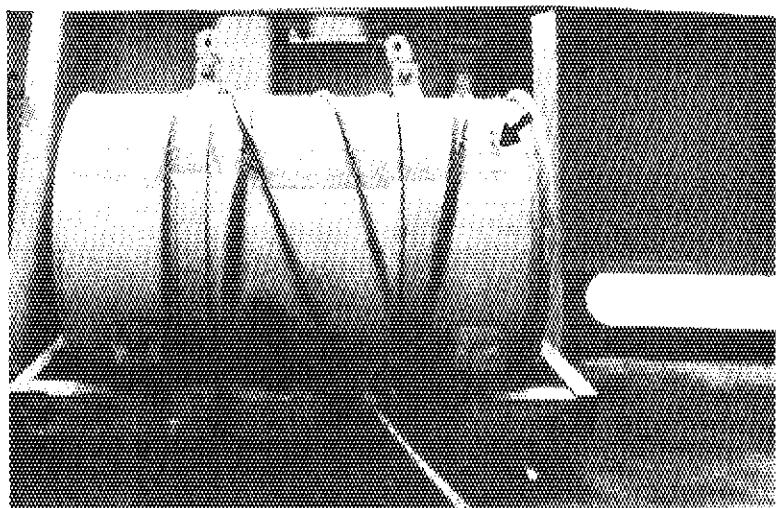


Photo. 2.4 Appearance of package after demonstration test. A hollow caused by high hydrostatic pressure can be seen.

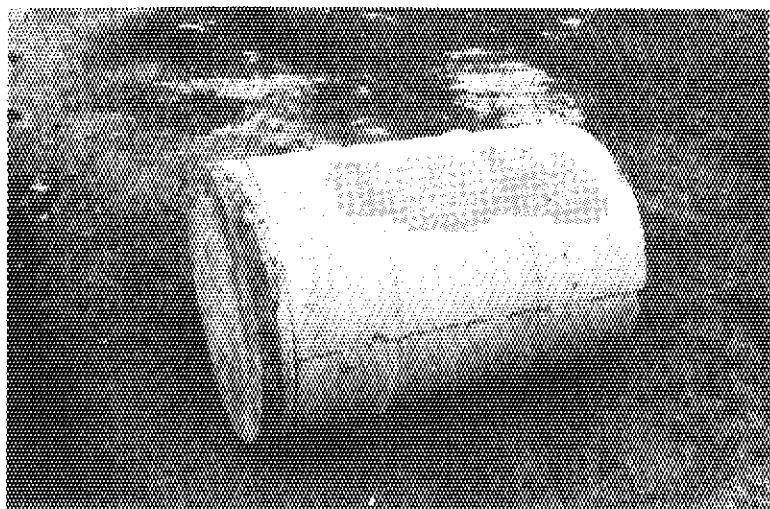


Photo. 2.5 Bare solidified product after demonstration test.

## 2.6 結 言

(1) 低レベル放射性廃棄物の海洋処分にあたって、実規模（200 ℥大）の廃棄物パッケージが収容でき、かつ深海5,000mと同等の条件（水圧500kg/cm<sup>2</sup>、水温2°C、水平流速1~2cm/sec）をつくり出し、同条件下でパッケージの健全性試験ならびに放射性核種の浸出試験を行うことのできる実大固化体高圧RI浸出試験装置を製作した。

同装置を使って、深海5,000mの条件において実大セメント均一固化体の深海中健全性模擬試験を行った。得られた主な結果をまとめると次のとおりである。

(2) セメントパッケージの海中落下速度に相当する速度、すなわち500kg/cm<sup>2</sup>まで40分間で昇圧した場合、

(i) ドラム缶容器付きのセメント固化体（露出面のない）では、クラックなどの発生によるセメント固化体の破壊は認められない。

(ii) ドラム缶容器の一部または全部を外すした露出面のある固化体では、固化体内部への水の浸入により露出面およびその内部にクラックの発生が認められる。

(iii) ドラム缶容器を具備しない固化体でも、耐水性の被膜で被覆したものには、クラック等の変化は認められない。

(3) 昇圧速度を遅くし、500kg/cm<sup>2</sup>まで6時間とした場合には、ドラム缶で覆われていない露出面のある固化体でも、クラック等の変化は認められない。

(4) 以上の結果からセメント固化体のクラックの原因は、固化体への高圧水の急激な浸入に基づくものであると結論した。

(5) 小規模（10cmφ×20cm）固化体の圧縮強度試験により、原子力発電所から発生する放射性廃液を含むセメント均一固化体（但し、固化体の配合は本実験で行った程度のもの）は、150kg/cm<sup>2</sup>以上の一軸圧縮強度を有することを確認した。

深海中健全性模擬試験と同様パッケージを用い、海洋の健全性実証試験として、水深5,000mまでの吊下ろし一回収試験を行った。

(6) ドラム缶詰めセメント均一固化体の吊下ろし一回収試験は、深海中の連続写真撮影を除いては所期の目的を達成した。

(7) 固収パッケージのドラム缶の外面、ドラム缶を取り除いた固化体の外面の目視検査の結果、安全上問題となる変化はないと結論した。

以上の結果から、ドラム缶詰めセメント均一固化体を約5,000mの深海に投棄した場合、

(1) 規定の一軸圧縮強度を有する固化体の健全性は、容器が完全（露出面のない固化体）であれば着底まで保持しうる。

(2) 容器に破損がある等の原因で固化体に露出面が存在する場合は固化体にクラックが発生し、その結果、固化体からの放射性核種の浸出は、増加することになる。したがって容器は安全上、重要な役割を果していると結論しうる。

(3) 容器は、水の急激な浸入を緩和できるものであればよく、完全に防止するものである必要はない。水の急激な浸入を緩和するために、防水塗膜を用いてもクラック発生は防止できる。

## 参考文献

- 1) OECD/NEA: "Guidelines for Sea Dumping Packages of Radioactive Waste", (1979).
- 2) 原子力委員会・放射性廃棄物対策技術専門部会: "低レベル放射性廃棄物の試験的海洋処分に関する環境安全評価について", (1979).
- 3) 満木, 永倉, 阿部: 電力中央研究所報告—70006, (1970).
- 4) 阿部, 永倉, 村野, 岡沢, 服部, 満木: 電力中央研究所報告—71005, (1971).
- 5) Pearce K.W. and Vincent J.D.; AEREM. 1254. Harwell, (1963).
- 6) USAEC: TID 13226 (ASD 4652-F), (1961).
- 7) King W.H. and Hill S.S.: AERER. 7977, Harwell, (1975).
- 8) Dyer R.S.: IAEA-SM-207/65, Vienna, (1976).
- 9) 原子力委員会・放射性廃棄物対策技術専門部会: "放射性廃棄物の廃棄に関する技術的基準", (1978).
- 10) 原子力委員会・環境安全専門部会: "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", (1973).
- 11) IAEA: Proposed Revisions to the Provisional Definition and Recommendations Concerning High-Level Radioactive Waste Unsuitable for Dumping at Sea, (1978).
- 12) 増沢: 海洋科学, 別刷4, 25 (1975).
- 13) Stommel H.: Deep-Sea Res., 5, 80 (1958).
- 14) 南日: 海洋科学, 別刷4, 25 (1975).
- 15) 海洋科学技術センター: "放射性固体廃棄物の海洋処分モニタリング技術に関する対策研究", (1978).
- 16) 馬場: "機械工学必携" 三省堂 (1971).
- 17) 軽量骨材コンクリートハンドブック編集委員会: "軽量骨材コンクリートハンドブック", 日刊工業新聞社 (1966).
- 18) W. チェルニン: "建設技術者のためのセメント・コンクリート化学", 技報堂 (1975).

### 3. ドラム缶詰めセメント均一固化体の非破壊試験法の開発

#### 3.1 緒 言

前章では、セメント均一固化体の高圧試験ならびに海洋実証試験を行い、その結果、規定以上の圧縮強度をもつ完全なドラム缶付き固化体ならば安全上問題となる変化はないとの結論を得た。

原子力委員会が定めた「放射性廃棄物の廃棄に関する技術的基準」<sup>1)</sup>では、海洋処分の実施に際して、セメント固化体が規定の比重および圧縮強度をもっているかどうか検査するため、パッケージの品質検査を重量測定および非破壊検査で行うことを義務づけている。この基準では、セメント均一固化体の一軸圧縮強度を  $150\text{kg/cm}^2$  以上必要であるとしている。

一般に、セメント固化体の強度を確認するには破壊試験法によることが多いが、放射性廃棄物を含んだドラム缶詰めセメント固化体の場合には、その試験体からコアを打抜いて破壊試験法を実施するとしても、数が多くまた汚染の拡大および廃棄物の増加など不適条件が加わるのでその実施は、容易でない。

非破壊検査によりコンクリートの強度を調べる方法として、一般に超音波伝播速度測定法、弾性波速度測定法、反発硬度測定法などいろいろあるが、原子力委員会から出された「試験的海洋投棄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」<sup>2)</sup>では、超音波伝播速度測定法が放射性廃棄物セメント固化体には適していると述べている。しかし、反発硬度法も簡便で、魅力のある方法である。

本研究では、反発硬度法および超音波試験法が非破壊検査法として、簡便かつ放射性物質に直接触れることがないということから安全であると考え、容器に封入されているままの試料への両方法の適用性について検討した。

材料の硬度を測定することにより、その強度を推定する方法は一般に行われている。例えば、鋼のピッカース硬度を測定すれば、概略の引張強度を推定することができる。

しかし、硬度と強度との間に存在する理論的関係は、明らかにされていない。もともと硬度は試験体の表面における性質であるのに反して、強度は試験体全体に関与する性質である。このため、最も単純均一な応力分布状態においても圧縮強度を硬度と直接関係づけることは、理論的には難しい。<sup>3)</sup>

しかし、実用範囲において硬度と強度との間に一定の簡単な関係が得られれば便利なので、コンクリートにおいても標準円柱体の圧縮強度と硬度との関係が反発硬度法によって調べられてきた。<sup>4)~9)</sup>

本研究において検討の対象としたセメント固化体は、多量の塩類を含有する放射性廃液が添加してあること、水セメント比も一般のコンクリートの場合にくらべて小さいこと、ドラム缶の外側から測定する必要があることなどの問題がある。以上の観点から放射性廃液セメント固化体の非破壊検査法における圧縮強度推定法として反発硬度法が使用できるかどうかをしらべた。しか

し、反発硬度法で得られる反発係数は、試験体の表面硬度に関する値であるため、圧縮強度を直接測定する場合にくらべ精度の高い値が得にくいくことなどの欠点が挙げられる。したがって、より一層性能の向上した非破壊検査法の開発が望まれる。

セメント固化体の強度は一般に、配合のいかんに関係なく、水セメント比（水とセメントの重量比）に依存する。<sup>9) 10)</sup> すなわち、セメントに対する水の割合が増加すると強度は低下する。これはコンクリートが締め固められた後、水和に不必要的水分が蒸発し、残された空隙は、強度に寄与しないためである。<sup>10)</sup> したがってコンクリートの空隙の大きさおよび多さ、すなわちその密度を測定することは、セメント固化体の強度を知る手掛りになる。以上の理由から、著者は超音波が固体から空気中へは伝播しにくいこと<sup>12)</sup>を利用して、ドラム缶詰めセメント固化体の圧縮強度の測定を超音波により行うことの可否を検討した。すなわち、超音波はセメント固化体中に大きな空隙がある場合、そこでは減衰が大となるために伝播しない。したがって空隙が超音波の通路にある場合は、超音波は固化体中の最短距離を通過しないことになり、それに要する伝播時間は遅れを生ずることが考えられる。

セメント固化体の強度測定および欠陥の探傷に超音波を用いた例は、いろいろ報告されている。<sup>13) ~ 20)</sup> しかし、外部が異質のドラム缶で覆われていて、ドラム缶の外側から内容物であるセメント均一固化体の強度測定については、まだ検討が行われていない。

本章では、セメント均一固化体の非破壊検査を反発硬度法および超音波試験法により試みた。すなわち、ドラム缶詰めセメント均一固化体の外側から反発硬度および超音波伝播速度を測定することにより、これらセメント固化体の圧縮強度との関係を明らかにし、また反発硬度法と超音波試験法によって得られた値を比較検討した。さらに超音波試験法により固化体内の欠陥の存在ならびにその長手方向における位置についても測定の可能性を検討した。

### 3.2 反発硬度法による非破壊検査

ドラム缶詰めセメント均一固化体は、わが国で近い将来、実施が予定されている試験的海洋処分に用いられる処分体の主体になるものと思われる。そのため、ドラム缶詰めセメント均一固化体の品質検査を非破壊試験により行うことが前述の暫定指針<sup>2)</sup>により義務づけられている。暫定指針には、セメント均一固化体の一軸圧縮強度を  $150 \text{ kg/cm}^2$  以上にするのが望ましいという項がある。しかし、その試験方法を規定してはいない。

本節では、反発硬度法が非破壊検査法の一つとして、簡便で、かつ放射性物質に直接触れることがないというようなことから安全であると考え、同方法の適用性について検討した。すなわち、ドラム缶外側から反発硬度を測定することにより、セメント固化体の圧縮強度を推測することを試みた。

#### 3.2.1 試験の概要

##### 3.2.1.1 反発硬度測定器

反発硬度測定には、スイスの PROCEQ 製シュミットテストハンマー NR 型を使用した。ただし、圧縮強度が  $200 \text{ kg/cm}^2$  以下の固化体については、P型（振子式）を用いた。反発硬度測定

手順について簡単に説明する。Fig. 3.1にシュミットハンマーNR型の構造を示す。主要部分は、プランジャー(1)とインパクトスプリング(16)によって動くハンマー(14)である。打撃が起こるまでハンマーは、シリンドラ上部のはどめ(掛金)(13)で保持されている。プランジャーを試料面に当て、それをゆっくり押しつけていくと抵抗が上昇し、やがてはどめがはずれてスプリングがハンマーをプランジャーに打ちつける。打撃後に固化体の強度に応じて、一定の高さだけはね上り、外側の指針面の指針(4)に反発する高さが示される。反発硬度は、ハンマーの反発行程の打撃行程に対する100分率で表わされる。

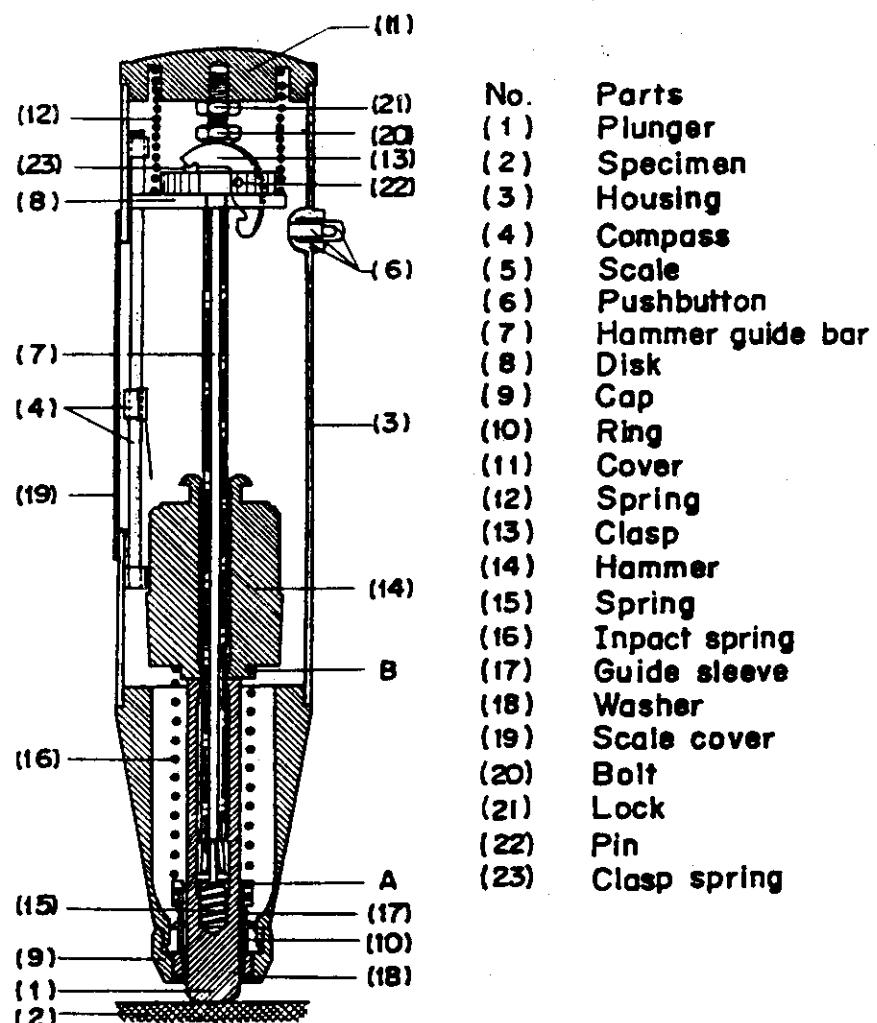


Fig. 3.1 Cross section of Schmidt hammer.

### 3.2.1.2 試験体

模擬廃液にはB WR およびP WR から発生する廃液を模擬したものを用いた。混合法は模擬廃液とセメントおよび骨材を 500 ℥の容器中で均一に混練し、混練したモルタルを 200 ℥ドラム缶に充填する、いわゆるアウトドラムミキシング法を採用した。混練する攪拌翼の回転数は、138 rpmを行った。Table 3.1に試験体の配合を示す。模擬廃液には水のみの場合、あるいはBWR

系模擬廃液として、50 °Cに加熱した硫酸ナトリウム（Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>）水溶液を、PWR系としてはホウ酸（H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>）水溶液に水酸化ナトリウム（NaOH）を加えた水溶液を用いた。セメントはBWR系固化体としてはC種高炉スラグセメントを、PWR系としては普通ポルトランドセメントを、また骨材にはいずれの場合にも人工軽量砂（三井金属KK製メサライト）を用いた。廃液・セメント比、あるいは骨材の割合はTable 3.1に示すとおりである。以上のようにして混練したモルタルは200 ℥ドラム缶に充填し、約1ヶ月の養生を行って固化した。ドラム缶はJIS Z 1600M級ドラム缶（板厚1.2mm）を使用した。同時に同試験体の圧縮強度を知るため、まだ固まらないセメントモルタルを各々の試験体について3個づつ10cmφ×20cmの型わくにとった。各々の型わく内のモルタルを充分に締め固めるため、突き棒で10回ずつ突いた。モルタルを打設しおわってから1週間後、上面を平面に仕上げるため、セメントペーストを用いてキャッピングを施した。約24時間後に型わくをはずしたセメント固化体を約1ヶ月間水中で養生した。養生後、アムスラー圧縮試験機により圧縮強度を測定した。圧縮試験は、試験Noあたり3個ずつ行い、その平均値を探った。試験体Noと同一組成固化体の一軸圧縮強度をTable 3.1に示した。

### 3.2.1.3 反発硬度試験

ドラム缶外被と最も密着していると思われる固化体の底部について反発硬度を測定した。まずドラム缶付きのまま行い、次に同個所のドラム缶をディスクグラインダで切り取って裸にして行った。Fig. 3.2に反発硬度測定点の位置を示す。間隔8cm毎に縦方向5点、横方向5点計25の異なる点を測定し、その値を算術平均して反発硬度を求めた。しかし、表面から見えない欠陥部を打撃した場合など明らかに異常と認められる値が得られることがあるので、このような値は切り捨てた。捨てた値に代るものささらに求め、常に25個の値から平均値を求めるようにした。Photo. 3.1はシュミットハンマーを用いて測定を行っている写真である。ドラム缶外被の上から測定を行っている。Photo. 3.2にドラム缶底部の一部をはがした裸の部分の測定を行っているところを示してある。シュミットハンマーは、いずれも固化体面に直角に当て、水平に使用した。

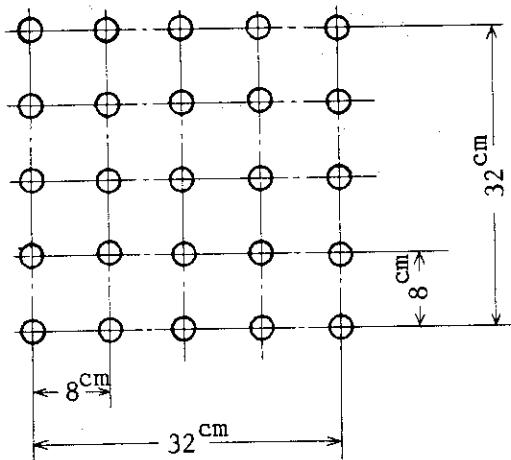


Fig. 3.2 Measuring points of rebound hammer test.

Table 3.1 Compounding of specimens

Specimen No.	Cement	Simulated liquid waste	Wa/C (%)	W/C (%)	A/A+C (%)	Uni-axial compressive strength (kg/cm <sup>2</sup> )
T- 1	S	20% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	50	33	348
T- 2	S	20% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	42	33	0	454
T- 3	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	39	33	0	530
T- 4	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	64	53	33	294
T- 5	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	399
T- 6	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	398
T- 7	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	312
T- 8	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	372
T- 9	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	377
T-10	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	325
T-11	S	Water		63	22	211
T-12	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22	312
T-13	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	74	63	33	266
T-14	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	74	63	33	254
T-15	S	11% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	113	100	45	190
T-16	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	83	70	45	217
T-17	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 11% NaOH	84	66	38	129
T-18	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 11% NaOH	84	66	38	133
T-19	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 7% NaOH	80	66	38	223
T-20	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 9% NaOH	75	60	38	200
T-21	P	10% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 8% NaOH	80	66	38	227
T-22	P	10% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 8% NaOH	80	66	38	200

S : Blast furnace slag cement, P : Normal Portland cement,

A : Aggregate, C : Cement, Wa : Simulated waste, W : Water

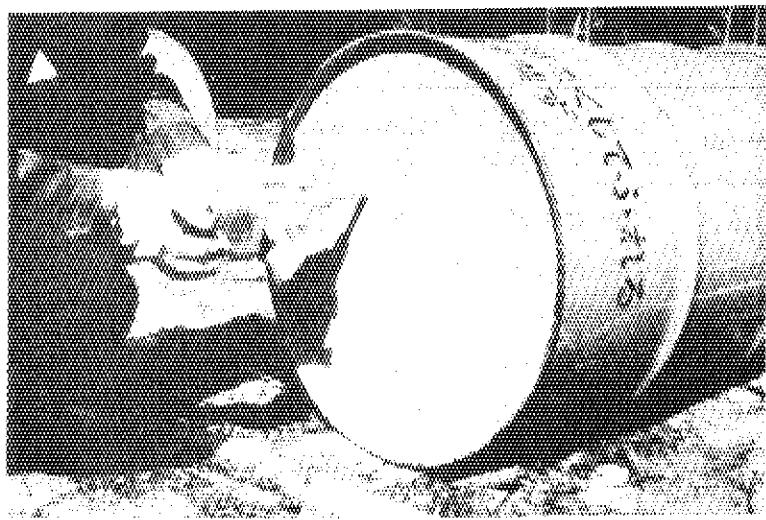


Photo.3.1 Rebound hammer test of cement solidified product with drum

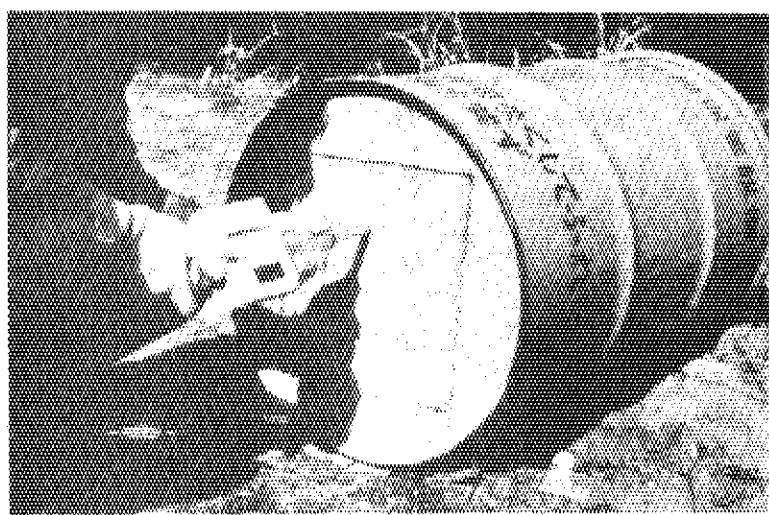


Photo.3.2 Rebound hammer test at bare surface of cement solidified product.

### 3.2.2 結果と考察

#### 3.2.2.1 一軸圧縮強度

一軸圧縮強度測定用試験体を水中養生後、アムスラー式圧縮試験機にかけ、一軸圧縮強度を測定した。圧縮試験は同種固化体のもの3個ずつ行い、実測値はその平均値を探っている。Table 3.1に試験No.T-1からT-22までの試験体の一軸圧縮強度を示す。

一般にセメント固化体の圧縮強度は、水・セメント比によって支配される。すなわち、水・セメント比が大きくなれば、圧縮強度は低下する。<sup>10)</sup> Fig.3.3に、本研究に用いた固化体の水・セメント比と圧縮強度の関係をプロットした。図から本研究に用いた放射性廃液セメント固化体においても水・セメント比が増大するにしたがって圧縮強度は減少する傾向が認められる。

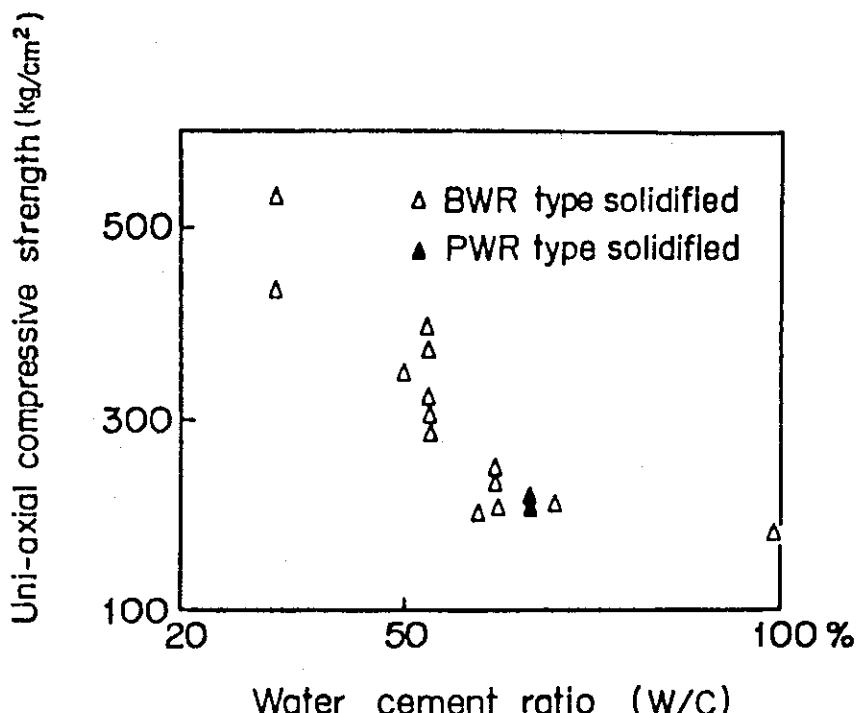


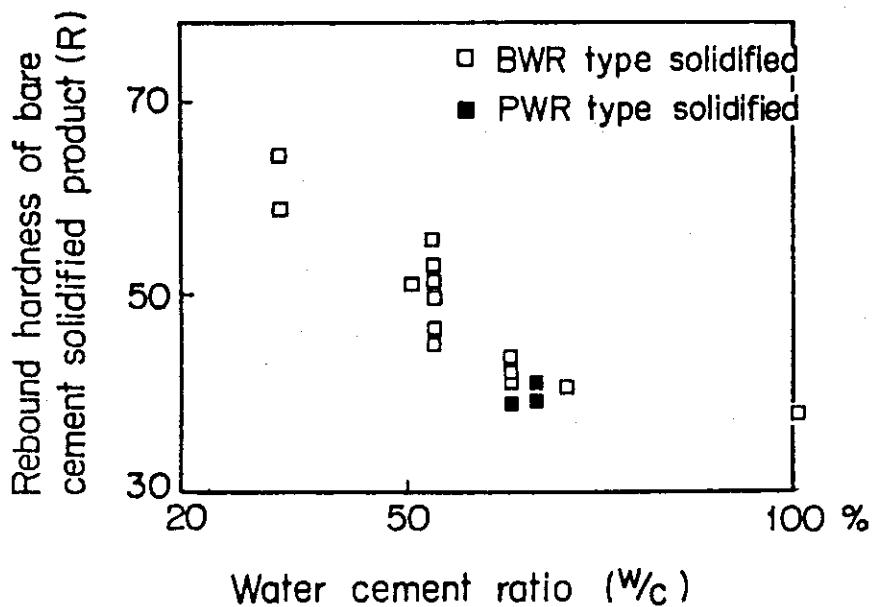
Fig. 3.3 Relationship between water/cement ratio and uni-axial compressive strength.

T-17およびT-18は、他のPWR系廃液固化体にくらべ強度が低い。これはホウ酸に添加した水酸化ナトリウム量が多く、pHが適正值12~13より高く、13.5となつたため、セメントの水和反応が十分進まず、強度が低くなったものと思われる。

#### 3.2.2.2 反発硬度と一軸圧縮強度との対応

ドラム缶底部の一部をはずした試験体の反発硬度と水セメント比の関係をFig.3.4に示す。Fig.3.3とはほぼ同じ傾向を示しており、反発硬度と圧縮強度とが相関していることを示唆している。Fig.3.5にドラム缶底部の一部をはずした試験体の反発硬度と同種固化体の圧縮強度との関係を示す。縦軸に圧縮強度、横軸に試験体の反発硬度をとった。最小自乗法によって直線式を算出し、反発硬度と圧縮強度との関係式を求める

$$\sigma = 11.7 R - 237 \quad (1)$$



が得られる。ここで  $R'$  は反発硬度を、  $\sigma'$  は圧縮強度を表わす。(1)式に対し、圧縮強度の実測値の標準偏差は  $17.7 \text{ kg/cm}^2$  であり、反発硬度については 1.6 である。

次にドラム缶上から打撃した反発硬度と同種固化体の圧縮強度との関係を Fig. 3.6 に示す。この図から反発硬度と圧縮強度との関係は、ばらつきは裸の固化体を測定する場合にくらべ、やや大になるが、直線関係をあてはめることができる。両者の関係式を最小自乗法によって求めると、

$$\sigma' = 12.9 R' - 338 \quad (2)$$

が得られる。圧縮強度の標準偏差は、  $24.1 \text{ kg/cm}^2$  であり、反発硬度のそれは である。(2)式から、前述した圧縮強度  $150 \text{ kg/cm}^2$  以上という値を満足させるには、本試験の測定値においては反発硬度が 38 以上、誤差を見込んで 41 以上あればよいことがわかる。

反発硬度測定に際して、ドラム缶による影響を Fig. 3.7 に示す。ここで、縦軸は試験体のドラム缶をはずした場合の反発硬度であり、横軸はドラム缶上からの反発硬度である。これからドラム缶により反発硬度が 2 ~ 5 高くなることがわかる。また、反発硬度が低い場合はドラム缶の影響は大きく、反発硬度値が高い場合は、ドラム缶の影響は小さい傾向がある。鉄筋コンクリートの反発硬度を測定した報告<sup>4)</sup>では、鉄筋に近い箇所の反発硬度が高くなっている、放射性廃液セメント固化体をドラム缶上から測定した場合、裸の固化体の硬度より見かけ上高い硬度値が得られることと一致した傾向を示している。

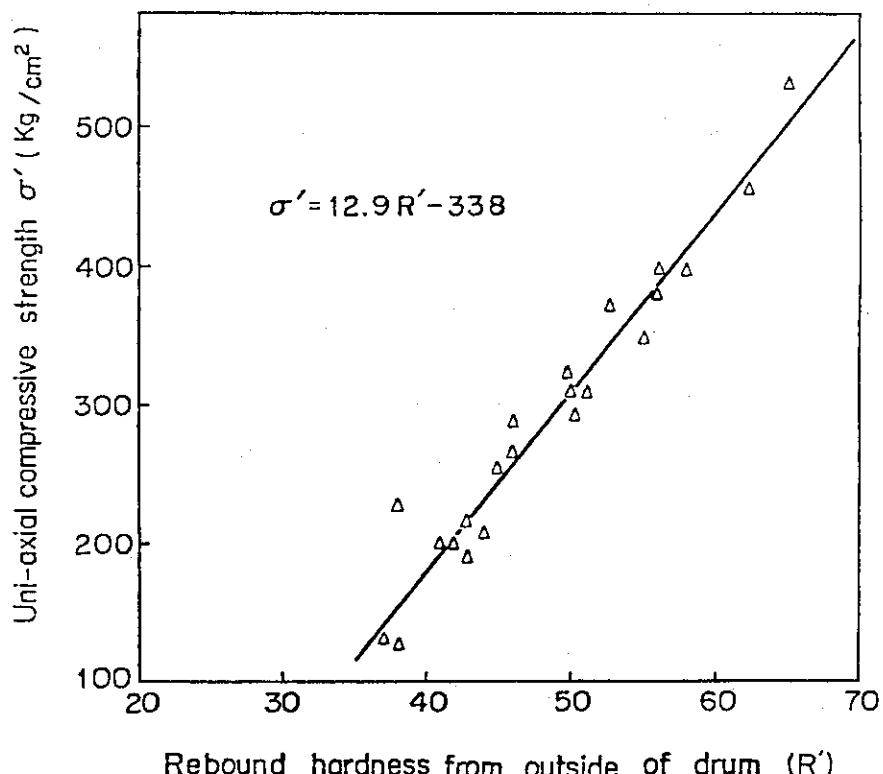


Fig. 3.6 Relationship between rebound hardness determined from outside of drum and uniaxial compressive strength.

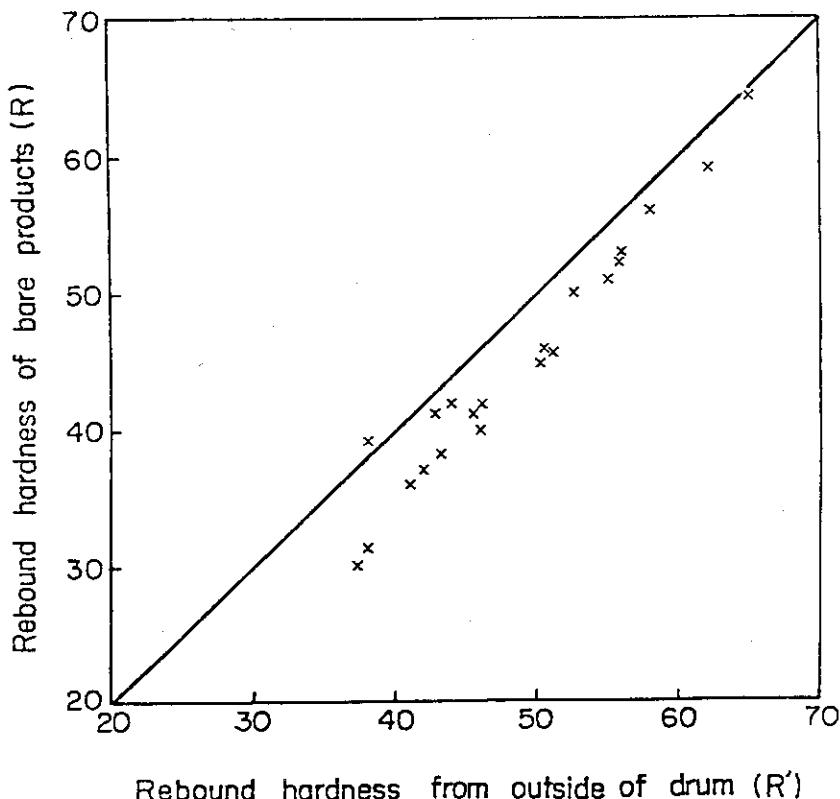


Fig. 3.7 Comparison of rebound hardness of cement solidified products determined indirectly from outside of drum and directly at bare surface.

### 3.3 超音波試験法による非破壊検査

前節でドラム缶詰めセメント均一固化体のドラム缶をはずした固化体およびドラム缶付き固化体の反発硬度と同一組成固化体の一軸圧縮強度との間には直線関係があり、実大セメント均一固化体の品質検査に反発硬度法による非破壊検査が適用できることを述べた。しかし反発硬度法による反発係数は、試験体の表面硬度に関する値であるため固化体内部の強度については推定にとどまること、ドラム缶外被を介して測定するため、直接固化体を測定する場合にくらべ精度の高い値が得にくいくことなどの欠点が挙げられる。そのため、より一層性能が良い非破壊検査法の開発が望まれる。

本節で検討の対象にした固化体は、多量の塩類を含む放射性廃液が添加されていること、水・セメント比も一般のコンクリートの場合にくらべ小さいこと、ドラム缶を介して測定しなければならないことなど一般のコンクリートと大きく異なる性質をもっている。このような特質をもつ放射性廃液セメント固化体においても圧縮強度測定法として超音波が使用できるかどうかを検討した。

本節では、ドラム缶外側からその内容物であるセメント均一固化体の超音波速度を測定する試作装置について述べ、その装置を使用してセメント固化体の一軸圧縮強度の推定を行い、前節の反発硬度法による値と比較検討した。さらに、本法による固化体内の欠陥の存在ならびにドラム缶長手方向における欠陥位置の探査の可能性についても検討した。

## 3.3.1 試験の概要

## 3.3.1.1 超音波試験装置

## a) 装置の構成

使用した装置の構造を説明するために装置構成図を Fig. 3.8 に示す。装置は基本的に 5 つの要素、すなわち超音波伝播速度測定器(U), パワーユニット(P), 探触子(T), シンクロスコープ(S), および探触子の上下移動とドラム缶詰め固化体に振動子をあてがうことを目的とした油圧駆動部(O)から構成されている。装置の外観写真を Photo. 3.3 に示す。

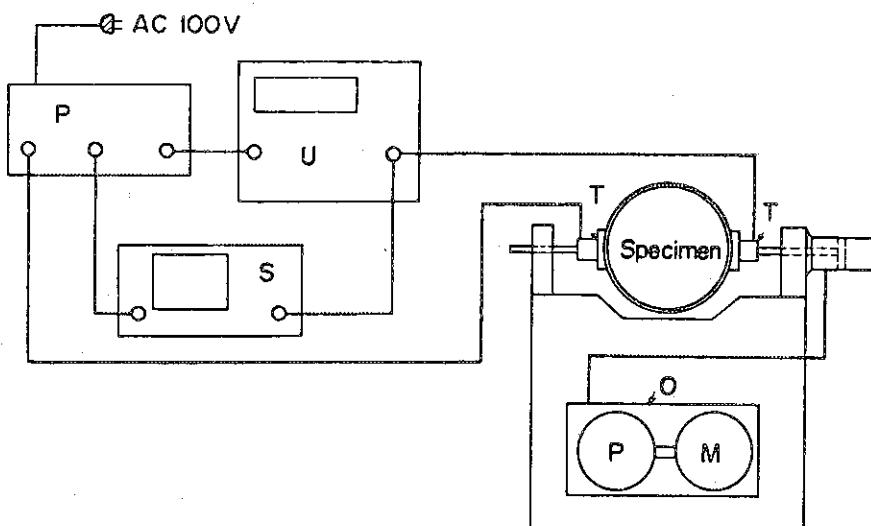


Fig. 3.8 Construction of ultrasonic wave test apparatus for full size drum-filled cement solidified product.

U: Main part for measuring wave velocity with digital reading,  
 P: Power unit, T: Transducer, S: Synchroscope, O: Oil pressure  
 driving part, M: Motor

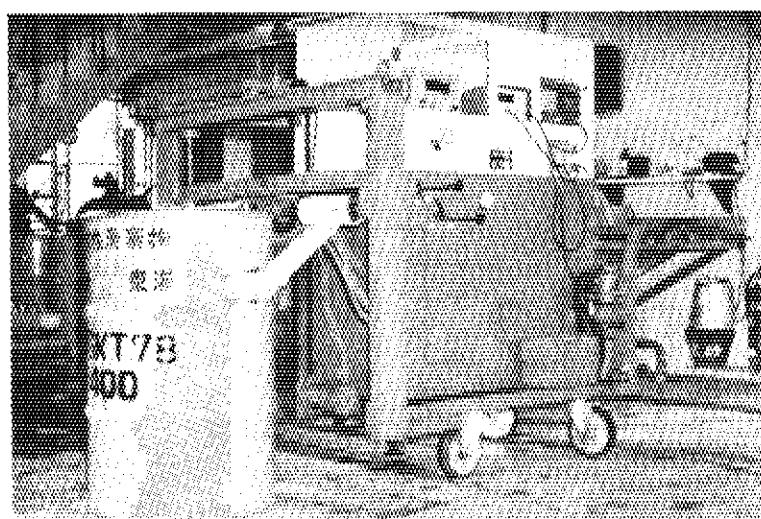


Photo. 3.3 Ultrasonic wave test apparatus

超音波伝播速度測定器は、英國C.N.S ELECTRONICS, LTD製のものである。ピーク電圧800Vを $1\text{ }\mu\text{sec}$ の持続時間で印加することによりパルスを発生させ、10回/secの繰返し周波数でパルスを発生させるようにしてある。セメント固化体を通過するパルスの伝達時間は3桁の数字でデジタル表示されるようになっている。すなわち、 $0.1\text{ }\mu\text{sec}$ の単位で0.1~99 $\mu\text{sec}$ および $1\text{ }\mu\text{sec}$ の単位で1~999 $\mu\text{sec}$ の時間の範囲で測定が可能になっている。受信増幅器は20~200KHzの周波数範囲で使用できる。

探触子の振動子材料はジルコン酸・チタン酸鉛セラミック(PZT4)であり、本研究では、50KHzの周波数を有する探触子を使用した。

測定値は前述したように伝播時間を超音波伝播速度測定器上にデジタル表示し、同時にシンクロスコープを用いてアナログ的に観測し得るようにした。さらに、欠陥がある場合、到来波形の異常を観測することによって探査の可能性を期待した。

ドラム缶詰めセメント固化体を測定する場合には、ドラム鋼板上から超音波パルスを発信せざるを得ない。ドラム鋼板とセメント固化体との間には、セメントが固化する段階で乾燥収縮によると思われる間隙が生じる<sup>21)</sup>。その場合、パルスは鋼板上を迂回して伝播し、セメント固化体内部を通過しないことになる。その対策として、本装置の特長である油圧駆動方式で超音波の入出力点すなわち探触子に荷重( $18\text{ kg/cm}^2$ )を加え、ドラム缶鋼板と内容物のセメント固化体とを密着させるようにした。また、試験体の各箇所を測定するためのセンサー(探触子)の上下方向の駆動も油圧によった。それらの油圧駆動回路図をFig. 3.9に示す。

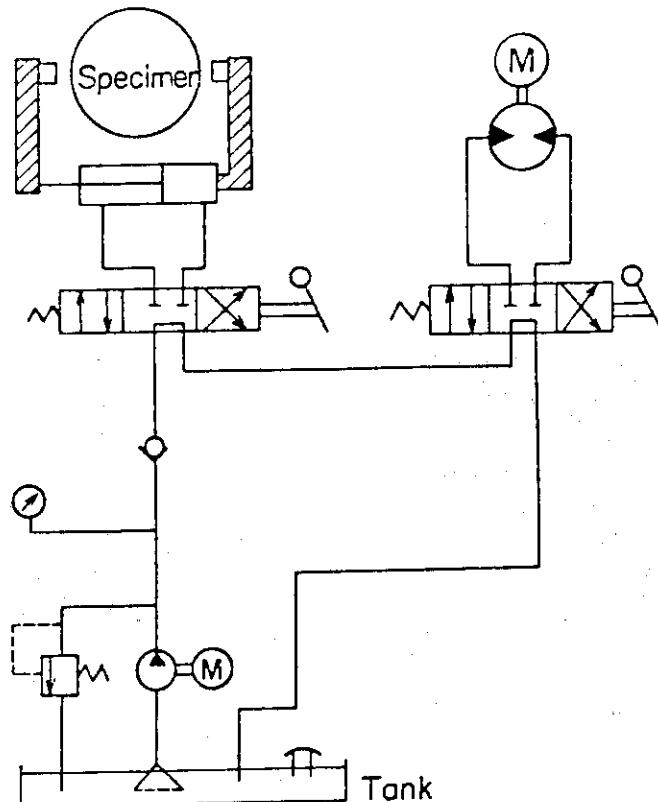


Fig. 3.9 Oil pressure circuit for driving transducers

## b) 試験装置の電気系統

Fig. 3.10に本装置の電気系統図を示す。本系統は同期信号発生器 (Pulse recurrence frequency generator), セットリファレンス遅延装置 (0点調整) (Set reference delay), 受信用増幅器 (Receiver amplifier) およびクロックパルス発振器 (Timing pulse oscillator), ゲート (Gate), 表示装置 (Decades units) の4つの部分から構成されている。

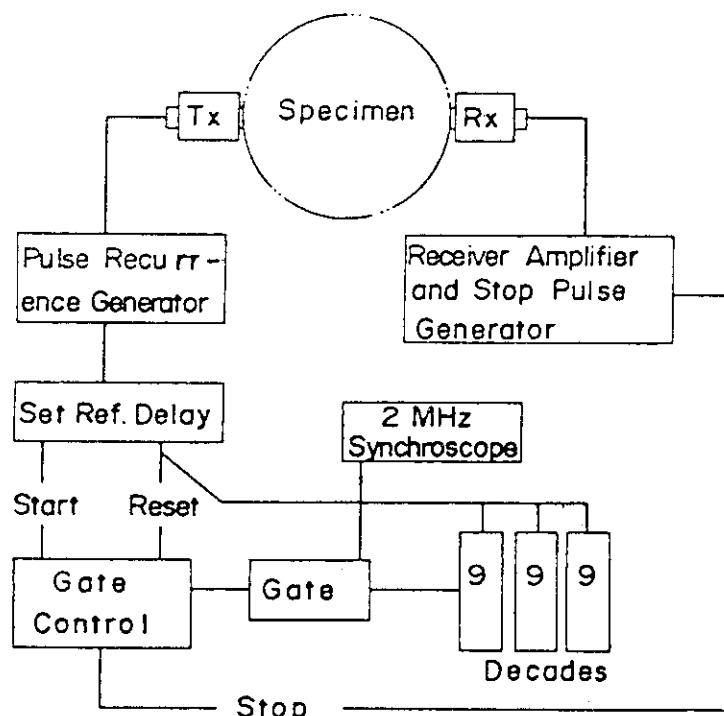


Fig. 3.10 Simplified electric system of main part for measuring ultrasonic wave velocity with digital reading.

## 3.3.1.2 試験体

圧縮強度推定用セメント均一固化体には、前節の反発硬度法による非破壊検査のときに用いた試験体と同じものを用いた。ただし、以後の試験結果と対応させるため、試験体の配合および試験体と同一組成固化体の一軸圧縮強度をTable 3.2に指す。Table 3.2中の試験体No.23は、固化体内部の欠陥を探査するためのものである。欠陥としては、セメント固化体にボイド(空隙)が生じていることを想定し、底面から45cmおよび75cmの固化体の中心線上の位置にそれぞれ直径8cmの球状の発泡スチロール片と布のかたまりを入れた。発泡スチロールおよび布片は、モルタル充填の段階で比重が小さいことから浮き上ってしまうために、所定距離をとった糸でしばりつけ、他端に重さ約10kgの鉄塊をしばり、その鉄塊を沈めてモルタル内の所定の位置に固定するようにした。試験体に設けた欠陥の詳細をFig.3.11に示す。

Table 3.2 Compounding of specimens

Specimen No.	Cement	Simulated liquid waste	Wa/C (%)	W/C (%)	A/A+C (%)	Uni-axial compressive Strength	compressive strength (kg/cm <sup>2</sup> )
T- 1	S	20% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	50	33		348
T- 2	S	20% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	42	33	0		454
T- 3	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	39	33	0		530
T- 4	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	33		294
T- 5	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		399
T- 6	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		398
T- 7	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		312
T- 8	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		372
T- 9	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		377
T-10	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		325
T-11	S	Water		63	22		211
T-12	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	63	53	22		312
T-13	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	74	63	33		266
T-14	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	74	63	33		254
T-15	S	11% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	113	100	45		190
T-16	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	83	70	45		217
T-17	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 11% NaOH	84	66	38		129
T-18	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 11% NaOH	84	66	38		133
T-19	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 7% NaOH	80	66	38		223
T-20	P	11% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 9% NaOH	75	60	38		200
T-21	P	10% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 8% NaOH	80	66	38		227
T-22	P	10% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 8% NaOH	80	66	38		200
T-23	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	83	72	33		202

S : Blast furnace slag cement, P : Normal Portland cement,

A : Aggregate, C : Cement, Wa : Simulated waste, W : Water

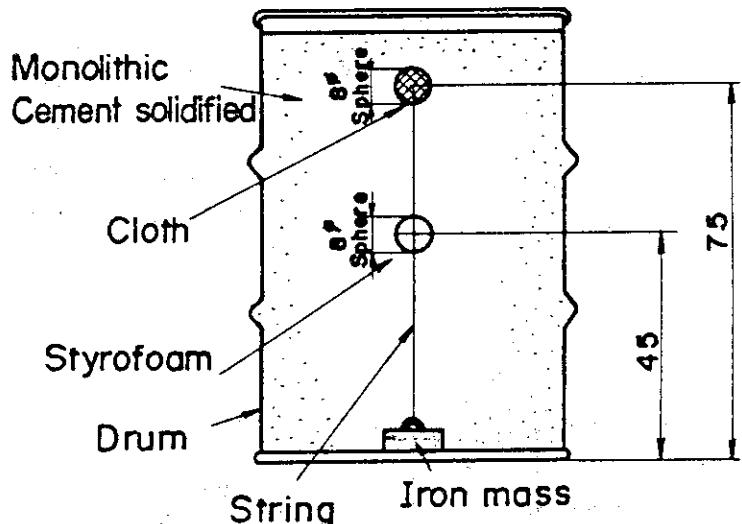


Fig. 3.11 Cross section of T-23 specimen (Unit : cm).

### 3.3.1.3 超音波伝播速度試験

超音波伝播速度測定には、前述した試験装置を使用した。送受探触子は、セメント固化体内での減衰を考慮し、ジルコニア・チタン酸鉛セラミック（PZT 4）50KHzであって、直径 50mm  $\phi$  × 42mm のステンレス製ケースに取り付けられているものを用いた。

本試験前に探触子にテストピースを密着させ、基準値（26.3  $\mu$ sec）がデジタル表示されるとおよびシンクロスコープにデジタル表示と同等の波形が現われることを確認した。Photo. 3.4 にその時の波形を示す。

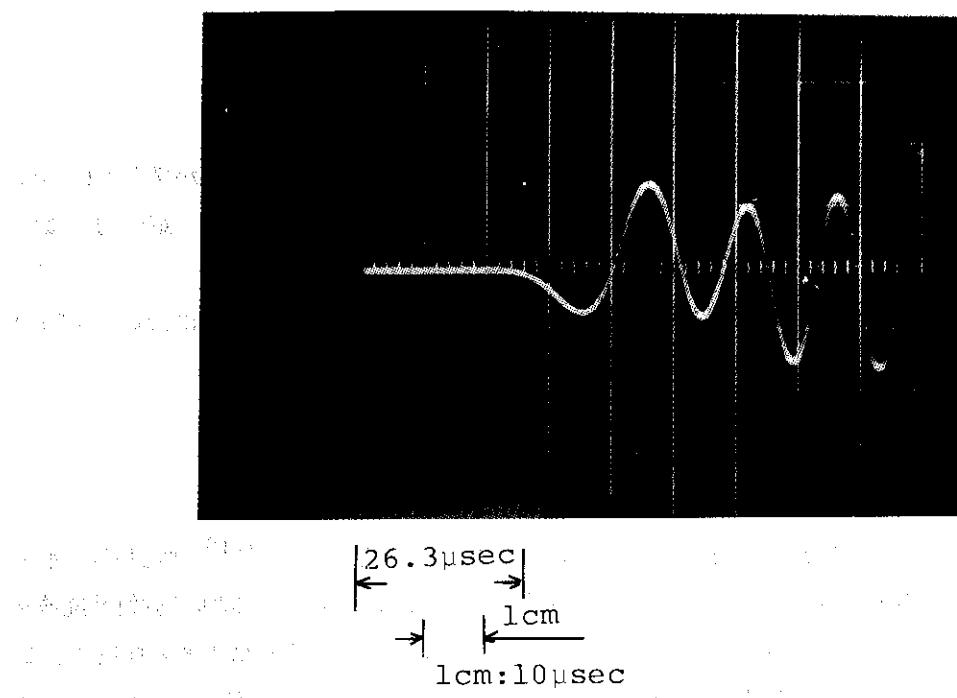


Photo. 3.4 Wave form of the test-piece

本試験では、探触子は試験体の直径方向、すなわち左右対称に配置した。ドラム缶内のセメント固化体圧縮強度推定のための測定は、Fig.3.12に示したようにドラム缶底面から20cm、45cmおよび75cmの高さのところでX-X方向およびその直角のY-Y方向をとり、計6点の超音波伝播時間を測定して、その値を算術平均した。しかし、ドラム缶の腐食部あるいは表面から見えない欠陥部に探触子を当てた場合など、明らかに異常と認められる値が得られることがあるので、このような値は切り捨てた。

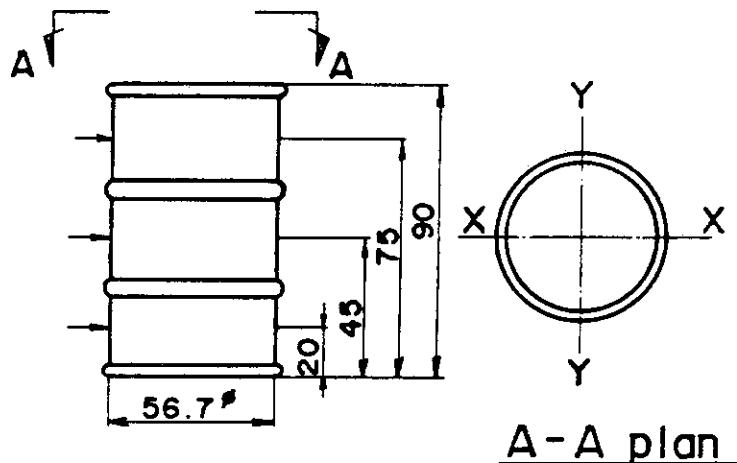


Fig. 3.12 Measuring position of ultrasonic wave velocity (Unit : cm).

伝播速度への換算は次の(3)式によった。

$$S = L / T \quad (3)$$

ここで、

S : 超音波伝播速度

T : 超音波伝播時間

L : 両探触子間の距離、すなわちドラム缶径 (56.7 cm $\phi$ )

測定値の読み取時は、油圧モータから発生する振動の影響によりデジタル表示が激しくばらつくため、センサー圧着後は油圧モータを停止させた。探触子が試験体の両側面に一定の力で接するように、ウレタンゴムを介して定着させるようにした。

試料No.T-23を使用した欠陥探査のための測定は、試験体底面から2.5 cmごとに行い、欠陥の位置および大きさ等を知ることを試みた。

### 3.3.2 結果と考察

#### 3.3.2.1 超音波伝播速度と一軸圧縮強度との対応

一般にセメント固化体の圧縮強度は、水・セメント比によって支配される。<sup>10) 11)</sup> すなわち、水・セメント比が大きくなれば圧縮強度は低下する。前節では、本研究に用いたと同等の放射性廃液セメント固化体においても水・セメント比が増大するにしたがって圧縮強度が低下する傾向にあることを報告した。このことは、圧縮強度がセメント固化体内に残された空隙率に依存し、空隙率が高いほど（密度が低いほど）圧縮強度が低下するからである。そのような固化体に超音波をあ

てた場合、超音波は固化体内部の空隙の周囲を回折して廻るため、<sup>15)</sup> 空隙率が高いほどそれに伴って固化体を通過する超音波伝播速度も低下することになる。すなわち、超音波伝播速度と圧縮強度とは相関がある。

そこで本節で検討の対象にした多量の塩類を含有する放射性廃液のセメント固化体で、その上ドラム缶外側から測定しなければならない場合においても、上述の相関があるかどうかを確めた。

水・セメント比と超音波伝播速度との測定結果を Fig. 3.13に示す。水・セメント比が増大するにしたがって、超音波伝播速度はほぼ直線的に減少する傾向を示しており、超音波伝播速度と圧縮強度とは相関があることを明らかに示唆している。

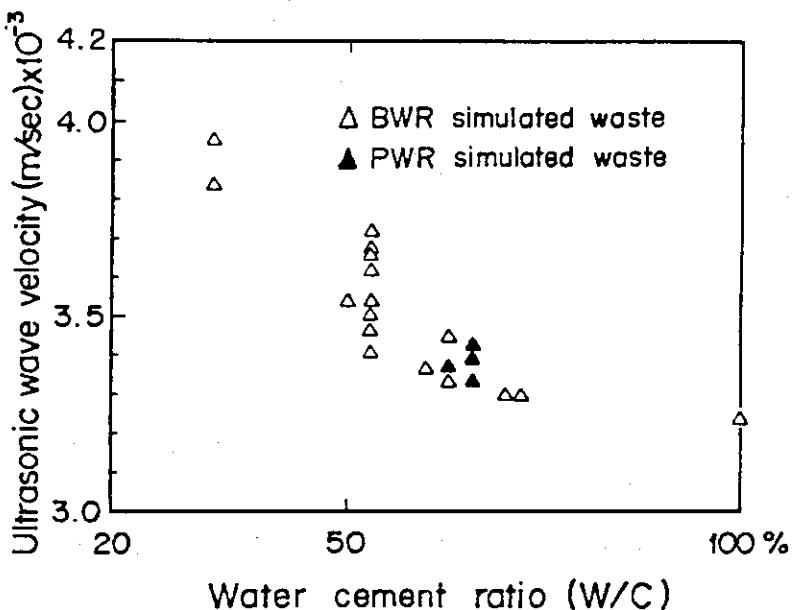


Fig. 3.13 Relationship between water/cement ratio and ultrasonic wave velocity.

Fig. 3.14に超音波伝播速度と同一組成固化体の圧縮強度との関係を示す。ここで、最小自乗法によって直線式を算出し、超音波伝播速度との関係を求める(4)式が得られる。

$$\sigma = 0.48 \text{ S} - 1380 \quad (4)$$

ここで、 $S$  は超音波伝播速度 (m/sec),  $\sigma$  は圧縮強度 (kg/cm<sup>2</sup>) を表わす。 (4)式に対し、圧縮強度の実測値の標準偏差は 26.3 kg/cm<sup>2</sup> であり、超音波伝播速度のそれは 53.5 m/sec であった。この(4)式から前述した圧縮強度 150 kg/cm<sup>2</sup> 以上という値を満足させるには、本試験の測定値においては固化体の超音波速度が 3,200 m/sec 以上、誤差を見込んでも 3,300 m/sec 以上あればよいことがわかった。

前節において、ドラム缶の上方から打撃した場合の反発硬度と圧縮強度間の直線式は、

$$\sigma' = 12.9 R' - 338 \quad (2)$$

ここで、 $R'$ は反発硬度を表わす。このときの圧縮強度の標準偏差は  $24.1 \text{ kg/cm}^2$  であった。本節の超音波試験法による標準偏差は  $26.3 \text{ kg/cm}^2$  であり、反発硬度法による測定値  $24.1 \text{ kg/cm}^2$  よりわずかに高い値を示している。このところは、超音波が反発硬度に比べて破壊強度との結びつき

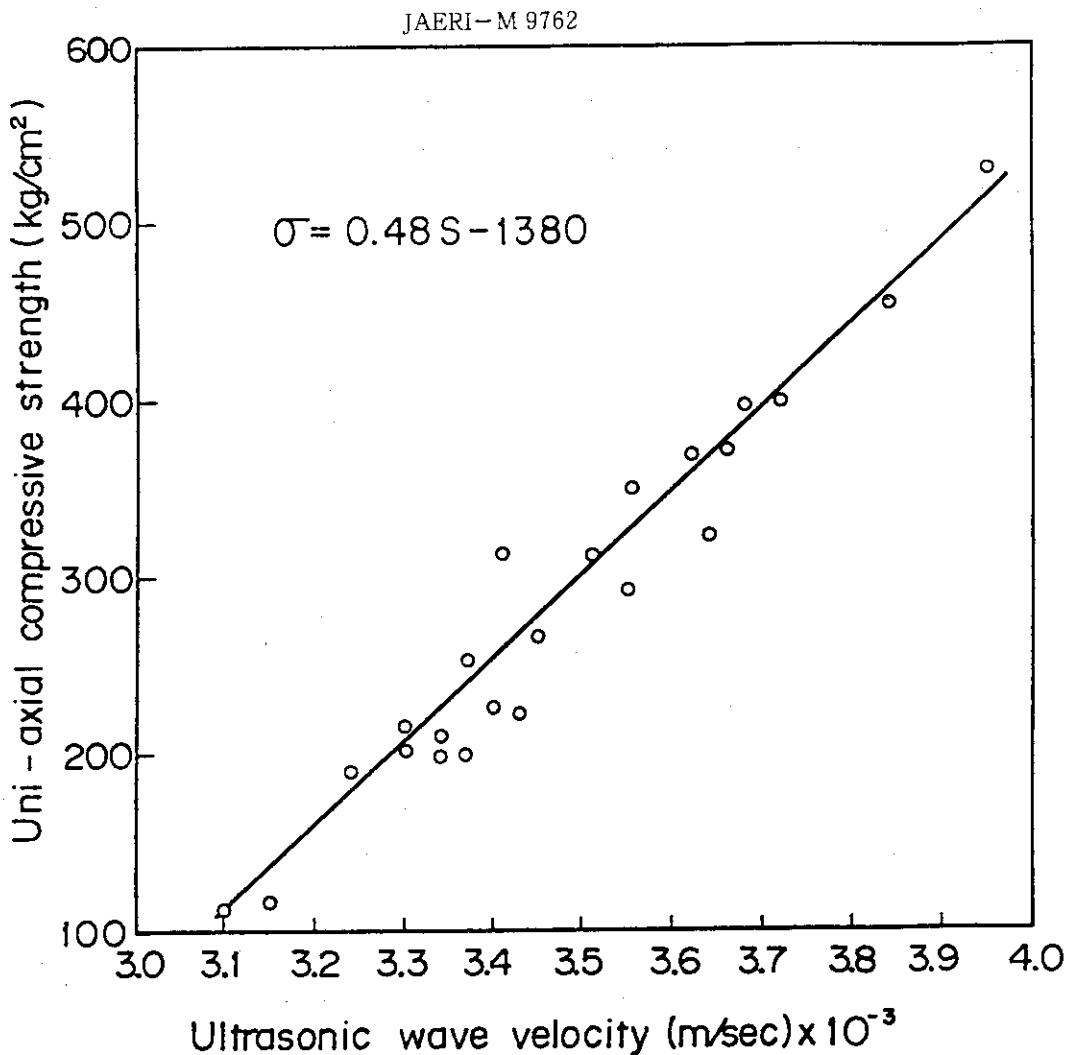


Fig. 3.14 Relationship between ultrasonic wave velocity and uni-axial compressive strength.

が良くない結果が得られるという報告<sup>16)</sup>と一致している。これについて原ら<sup>18)</sup>は、超音波の測定の場合、水セメント比以外の原因による固化体内部の変化も観測されるためとしている。

ドラム缶詰めセメント均一固化体の品質検査に超音波あるいは反発硬度いずれの検査法を用うるにしても、得られる測定値に多少の正確さがおとることが生じることは避けられない。小阪ら<sup>20)</sup>によるとその原因の一つは、コンクリート内部にマイクロクラックの発生していない無載荷のコンクリートの非破壊試験値と無数のマイクロクラックや母材モルタル圧壊などが内在する、いわば全く別品質のコンクリートの力学特性値とを比較しているところにあるとしている。

以上の試験の結果、超音波と反発硬度との間の測定結果の誤差に大きな差はないことがわかった。しかし、放射性廃液セメント固化体の非破壊検査においては、確実性の観点から前述の(2)および(4)の両式によって、150kg/cm<sup>2</sup>以上の一軸圧縮強度を保つ固化体であることを確認することが望ましい。

### 3.3.2.2 欠陥の探査

Fig. 3.15 に試料No.23の試験体底面からセメント固化体が充填されている上面まで 2.5 cm 間隔ごとに測定した伝播速度の結果を示す。それによると X-X 方向および Y-Y 方向ともほぼ同様

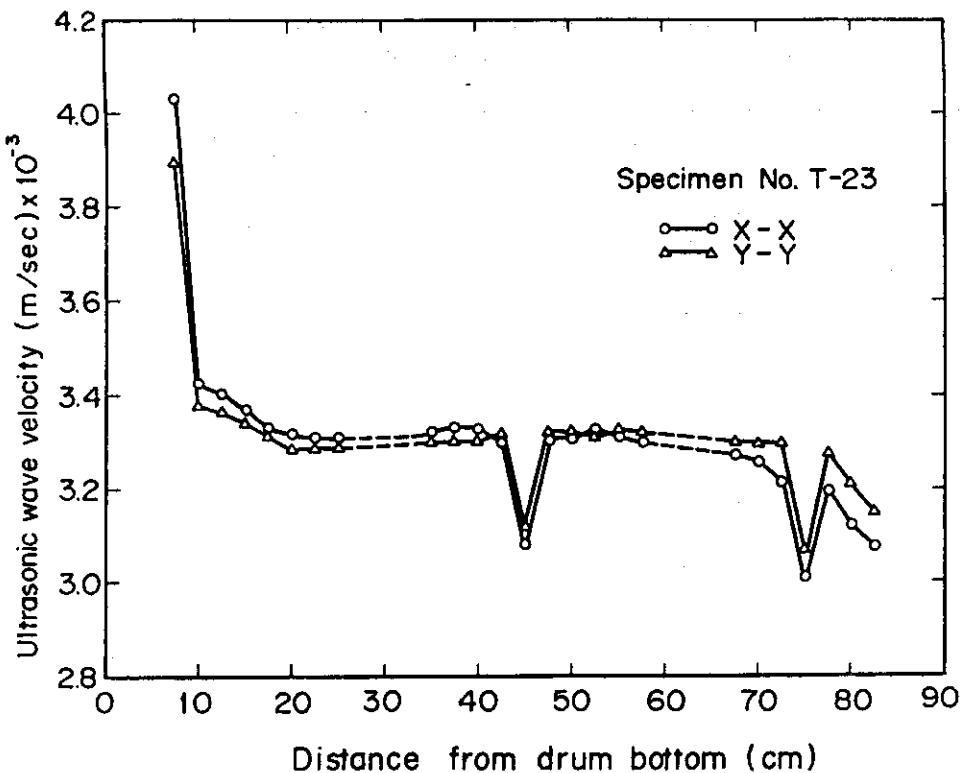


Fig. 3.15 Variation of ultrasonic wave velocity (Specimen No.T-23)

な結果を示した。測定に際して、探触子の密着性をはかるため、ドラム缶側面を一周している凸部へ押し当ては避けている。Fig. 3.15 から、固化体上面に行くにしたがって伝播速度が低下していく傾向にあることがわかる。これは、セメントモルタルが固化するまでの間に塩類等が沈降し、空泡部分が上方に浮上するためと考えられる。さらに、これを確かめるため、反発硬度法（シュミットハンマー）により、固化体の底面と固化体の測面（固化体の上部から  $1/3$  の部分）の硬度を比較した。測定した試験体は、試料No. T-13, 14, 16, 18, 19の5個についてである。結果をTable 3.3 に示す。これからも固化体上部が底部よりわずかながら硬度が低下しているのがわかる。

試験体底面から 7.5 cm の位置に伝播速度の著しい増加を見せているのは、ここに重しとして置いた鉄塊があるためと思われる。底面から 45cm および 75cm のところでは、伝播速度の落込みを見せてている。これは、これらの位置に故意に設けた欠陥すなわち発泡スチロール片および布片のためである。これらの欠陥の大きさは、直径 8cm $\phi$  の球状のものであるが、この分だけ超音波は遅れて受信されるものと思われる。このことは、超音波は内部欠陥の周囲を回折して廻る<sup>15)</sup>ことを証明していると思われる。すなわち、欠陥のある固化体の伝播時間は、無欠陥の同類固化体よりも長くなる。このようにドラム缶の長手方向における欠陥の存在およびその位置について探査は可能である。しかし、欠陥の大きさ、種類およびドラム缶の径方向の欠陥などの探査には、実用化上まだ、解決しなければならない問題が数多くある。シンクロスコープに現れる波形からも探査を試みたが、セメント固化体は減衰が甚しいため、微妙な差を読みとるのは不可能であった。

Table 3.3 Rebound hardness of different positions of bare full size cement solidified products

Specimen No.	Bottom		Side <sup>a)</sup>	
	Observed value	Mean	Observed value	Mean
T-13	43.0		42.7	
	42.5		42.1	
	42.6	42.0	42.0	41.9
	42.0		40.6	
	41.0		42.0	
T-14	43.3		41.0	
	41.5		42.7	
	42.2	42.4	40.5	41.2
	42.6		40.0	
	42.5		41.5	
T-16	40.0		39.9	
	42.0		42.0	
	43.7	42.3	43.7	41.3
	43.4		37.6	
	42.3		43.6	
T-18	31.6		30.0	
	31.2		29.5	
	31.4	31.0	30.2	29.7
	31.5		29.0	
	31.2		30.0	
T-19	40.5		38.1	
	40.0		38.5	
	41.0	40.5	38.0	38.6
	40.7		39.4	
	40.5		39.0	

a) Upper one third of the specimen

### 3.4 結 言

- (1) 放射性廃液実大セメント均一固化体の品質検査の一環として、超音波および反発硬度による非破壊検査法を試み、両方法が適用できることがわかった。
- (2) ドラム缶をはずした裸の固化体およびドラム缶付き固化体の反発硬度と同一組成固化体の一軸圧縮強度とは直線関係にあった。
- (3) 海洋処分用セメント固化体に必要な一軸圧縮強度  $150\text{kg/cm}^2$  以上に対応する反発硬度は、38 以上であることを認めた。
- (4) 実大(200ℓ)セメント均一固化体用超音波試験装置を使用した試験では、上記固化体について超音波伝播速度と同一組成固化体の一軸圧縮強度との間には直線関係があり、海洋処分用セメント均一固化体に必要な一軸圧縮強度  $150\text{kg/cm}^2$  以上に対応する超音波伝播速度は、 $3,200\text{m/sec}$  以上であった。
- (5) 一軸圧縮強度測定について、反発硬度法と超音波試験法の比較を行い、確実性の観点から両方法を併用することを提案した。
- (6) 超音波試験度により、ドラム缶詰めセメント固化体内部に存在する欠陥の探査についても検討を行い、ドラム缶の長手方向における欠陥の存在とその位置を知ることができた。

## 参考文献

- 1) 原子力委員会・放射性廃棄物対策技術専門部会：“放射性廃棄物の廃棄に関する技術的基準”(1978).
- 2) 原子力委員会・環境安全専門部会：“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”，(1973).
- 3) 山田：“材料試験” 内田老鶴園新社 (1969).
- 4) 木村：材料試験，5，38 (1956).
- 5) 坂，松井：セメント技術年報，9 (1955).
- 6) JSTM実施コンクリートの強度判定法委員会：材料試験，7，59，8 (1958).
- 7) 坂，六車，安井：セメント技術年報，5 (1961).
- 8) Greene G.W. : Journ. of Amer. Conc. Insti., Vol. 26, No. 3, (1954).
- 9) Artelt P. : Ber. Dtsch. Keram. Ges. 6, 43 (1966).
- 10) 軽量骨材コンクリートハンドブック編集委員会：“軽量骨材コンクリートハンドブック”，日刊工業新聞社 (1966).
- 11) W. チエルニン：“建設技術者のためのセメント・コンクリート化学”，技報堂 (1975).
- 12) 明石：“コンクリートの非破壊試験法”，日本セメント技術協会 (1957).
- 13) Elreery R.H. et al : "Ultrasonic wave velocities in concrete strength at early ages ", Magazine of Concrete Research England (1976).
- 14) Reynolds W.N., Wilkinson S.J. : AERE-R 8973 (1977).
- 15) British Standard Institution : BS 4408, Part 5 (1974).
- 16) コンクリート品質管理試験に関するシンポジウム発表報文および討議の概要，コンクリートジャーナル，12，9 (1974).
- 17) 原：セメント技術年報，31 (1974).
- 18) 原，大塚：セメント技術年報，40 (1975).
- 19) 笠井：日本建築学会論文報告集，141 (1967).
- 20) 小阪，谷川，太田：セメント技術年報，105 (1977).
- 21) 関，大内，比佐：JAERI-M 6364 (1976).

## 4. 放射性核種の浸出試験

### 4.1 緒 言

放射性廃棄物パッケージの海洋処分を実施するため、安全性を評価する上で重要な項目として、深海中での健全性と放射性核種の浸出性がある。

前章までは、前者について検討した。

後者の浸出性に関して、国際原子力機関（IAEA）は、試験法ならびに結果の評価法の暫定指針<sup>1)</sup>を提案した。

この指針にもとづき、大きさが 4.5cm $\phi$ ×4.4cm (IAEA サイズ) の小規模セメント均一固化体を用いて <sup>137</sup>Cs の常圧下の浸出試験を行い、浸出性に及ぼす各種要因について検討した。<sup>2)</sup>

放射性核種のセメント固化体からの浸出に関しては、多くの報告<sup>2)～11)</sup>があり、高水圧条件下の <sup>137</sup>Cs の浸出挙動についても報告<sup>3), 4)</sup>されている。このことについては 4.3 の高水圧浸出試験の項で後述する。

しかしながら、これらの結果が実際の海洋処分時に用いられる実物大投棄体に適合しうるかいかなかを実験的に確認する必要がある。なぜならば、海洋処分に供される固化体はドラム缶で覆われており、また実大固化体の寸法と従来の報告で用いられている小規模試料との間には大きな差がある。また、海洋処分においてパッケージが置かれる条件としては、水圧、温度、海流等を考慮すべきであるが、従来はこれらの条件の一部のみが模擬されているにすぎない。

このようなことから、深海 5,000 m の条件（水圧 500kg/cm<sup>2</sup>、水温 2°C、流速 1～2 cm/sec）を模擬できる実大固化体高圧 RI 浸出試験装置<sup>12)</sup>を使用して実大セメント均一固化体の高水圧浸出試験<sup>13)</sup>を行った。

浸出試験を行うためには、固化体に既知の露出面を設けなければならないが、高水圧試験<sup>13), 14)</sup>の結果、セメント固化体の健全性は、それを被覆しているドラム缶および加圧速度に大きく影響されることがわかった。これらの知見を参考にして、浸出試験法を確立した。

得られた浸出試験の結果を解析して、海洋処分により水相へ移行する放射能量の長期予測を行った。

### 4.2 小規模固化体の常圧浸出試験

放射性廃棄物を固化体に変換する基本目的は、人間生活環境への汚染の可能性を少くすることである。汚染拡大のメカニズムは、固化体または包装した放射性廃棄物処分体と接触する環境水へ放射能が漏れることにある。したがって放射性廃棄物固化体の安全評価には、放射能レベルを問わず、得られた 化体生成物からの浸出性評価を含んでいる。

このため、著者は、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」<sup>1)</sup>にしたがい、軽水炉から生ずる再生濃縮廃液を模擬廃液とし、セメントペーストならびに

モルタルについて、大きさが  $4.5\text{cm}\phi \times 4.4\text{cm}$  の小規模試料の常圧浸出試験を実施した。放射性核種には、半減期が長く、浸出し易い1価の金属、 $^{137}\text{Cs}$  を選んだ。

本節は、後述する実大固化体高圧R I 浸出試験装置を用いた実規模固化体の浸出試験を数多く実施することはできないので、浸出性に影響をおよぼすさまざまな要因を小規模の試料であらかじめしらべておくために行った検討の結果を述べる。

#### 4.2.1 試験の概要

##### 4.2.1.1 試料の製作

セメント、骨材などの使用材料は、前章までのものと同じものを使用した。

模擬廃液はBWR（沸騰水型原子炉）から発生する廃液の主成分となる硫酸ナトリウム( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ )の水溶液に $^{137}\text{Cs}$ を適量加えて調製した。骨材には、骨材添加の効果を比較するため、人工軽量砂（三井金属KK製）、標準砂（山口県豊浦町産、粒度105~297 $\mu$ ）およびゼオライト（北海道長万部産、粒度177~254 $\mu$ ）を使用した。

これらの模擬廃液と固化材を均一に練り混ぜ、直径 $4.5\text{cm}\phi$ 、高さ4.4cmのアクリル製円筒型わくに流し込み、20°Cの恒温槽内で1週間以上の養生を行って固化体とした。Table 4.1に試験試料の配合と製作条件を示す。

Table 4.1 Composition of specimens and leaching conditions

Samp. No.	Cement (a)	Waste (w/o)	W/C (w/o)	Aggregate(b)		Leachant	Leachant temp. (°C)	Setting period (day)	
				Kinds	A/(C+A)				
1	P	$\text{Na}_2\text{SO}_4$	10	33	-	-	Deionized water	25	7
2	P	"	36	-	-	"	"	"	
3	P	"	39	-	-	"	"	"	
4	P	"	42	-	-	"	"	"	
5	S	"	36	-	-	"	"	"	
6	S	"	39	-	-	"	"	"	
7	S	"	42	-	-	"	"	"	
8	S	"	45	-	-	"	"	"	
9	P	"	15	33	-	-	"	"	50
10	P	"	"	-	-	"	2	"	
11	P	"	"	-	-	"	25	7	
12	P	"	"	-	-	Sea water	"	28	
13	P	"	"	-	-	Deionized water	2	7	
14	P	"	"	-	-	"	"	28	
15	P	"	"	60	S	50	"	25	
16	P	"	"	"	M	"	"	"	
17	P	"	"	"	Z	25	"	"	
18	S	"	"	"	S	50	"	"	
19	S	"	"	"	M	"	"	"	
20	S	"	"	"	Z	25	"	"	
21	P	"	"	"	"	"	"	"	
22	P	"	"	"	"	"	"	"	

(a) P : Portland, S : Slag cement

(b) A : Aggregate, S : River sand, M : Mesalite, Z : Zeolite

## 4.2.1.2 常圧浸出試験

型わくをはずしたセメント固化体をメタクリル製容器に入れたイオン交換脱塩水または人工海水 750mℓ に浸漬し、この容器を恒温水槽に入れ、2 ℃または25 ℃に保持した。使用した人工海水の組成をTable 4.2 に示した。浸出液のサンプリング頻度は、次のとおりである。

- (1) 最初の1週間：毎日定時に1回
- (2) 第2～第9週までの8週間：毎週1回
- (3) それ以降：半月に1回

浸出液の交換は、(1)および(2)ではサンプリング時に、(3)では毎月1回行った。浸出液の交換時には、交換用の浸出液は前もって2 ℃または25 ℃に保持したもの用い、固化体におよぼす温度変化の影響をなくした。サンプリング液量は、浸出液の放射能濃度によって定めた。サンプルの放射能測定には、低バックグラウンドガスフローカウンタを用いた。試験条件はTable 4.1 に示す。

Table 4.2 Composition of synthetic sea water

Component	Concentration (%)
NaCl	27.217
MgCl <sub>2</sub>	3.807
MgSO <sub>4</sub>	1.658
CaSO <sub>4</sub>	1.260
K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	0.863
CaCO <sub>3</sub>	0.123
MgBr <sub>2</sub>	0.076

## 4.2.2 試験結果の整理

浸漬した固化体からの浸出結果の整理方法としてIAEAは、拡散係数を用いることを提案している。<sup>1)</sup>

拡散係数による整理方法では、浸出に関与する部分は固化体表面からごく浅い距離までの薄層部分であると仮定して、平面拡散源モデルを用いている。浸出を拡散として取扱うと、1次元のFick の拡散式は次のとおりである。すなわち、単位表面積で、固化体と浸漬液との界面からの距離x からx + dxまでの長さdx の領域における単位時間当たりの濃度増加は次の式である。

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} \quad (1)$$

ここで、D は拡散係数である。

濃度θを時間t の関数T(t)と界面からの距離x の関数X(x)に分けて(1)式を解くとすると、

$$\theta = T(t) \cdot X(x) \quad (2)$$

(2)を(1)に代入すれば

$$\frac{1}{Dt} \frac{dT}{dt} = \frac{1}{X} \frac{d^2 X}{dx^2} \quad (3)$$

(3)を  $-\alpha^2$  とおけば、次の2つの式が得られる。

$$\frac{d^2 X}{dx^2} + \alpha^2 X = 0 \quad (4)$$

$$\frac{dT}{dt} + D\alpha^2 T = 0 \quad (5)$$

(4)の一般解は、A, B を定数とすれば

$$X = A \cos \alpha x + B \sin \alpha x \quad (6)$$

となり、また(5)式の一般解は、C を定数とすれば

$$T = C e^{-D\alpha^2 t} \quad (7)$$

となる。したがって、 $A = f_2(\alpha)$ ,  $B = f_1(\alpha)$ とすれば、 $\alpha$ の値の連続性から  $\theta$  は次の積分で表わすことができる。

$$\theta = T(t)X(x) = \int_0^\infty e^{-D\alpha^2 t} \{ f_1(\alpha) \sin \alpha x + f_2(\alpha) \cos \alpha x \} d\alpha \quad (8)$$

$f_1(\alpha)$  および  $f_2(\alpha)$  は初期条件

$$\theta_{t=0} = f(x) \quad (9)$$

から決定すればよい。よって(9)から

$$f(x) = \int_0^\infty \{ f_1(\alpha) \sin \alpha x + f_2(\alpha) \cos \alpha x \} d\alpha \quad (10)$$

つぎに、 $+\infty > x > -\infty$ において、 $f(x)$  を Fourier 積分で表わせば

$$\begin{aligned} f(x) &= \frac{1}{\pi} \int_0^\infty d\alpha \int_{-\infty}^\infty f(\lambda) \cos \alpha(x - \lambda) d\lambda \\ &= \frac{1}{\pi} \int_0^\infty d\alpha \int_{-\infty}^\infty f(\lambda) \{ \cos \alpha x \cos \alpha \lambda + \sin \alpha x \sin \alpha \lambda \} d\lambda \end{aligned} \quad (11)$$

ここで  $\lambda$  は積分定数である。よって、

$$f_1(\alpha) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^\infty f(\lambda) \sin \alpha \lambda d\lambda \quad (12)$$

$$f_2(\alpha) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} f(\lambda) \cos \alpha \lambda d\lambda \quad (13)$$

ゆえに求める解は

$$\theta = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} d\alpha \int_{-\infty}^{\infty} f(\lambda) e^{-D\alpha^2 t} \cos \alpha(x - \lambda) d\lambda \quad (14)$$

つぎに、(14)の二重積分を一重積分に変形して一般解を求めてみると

$$\theta = \frac{1}{2\sqrt{\pi Dt}} \int_{-\infty}^{\infty} f(\lambda) e^{-\frac{(x-\lambda)^2}{4Dt}} d\lambda \quad (15)$$

ここで次の境界条件から特解を求める (ただし、 $f(\lambda) = \text{const}$ )

$$t=0 \text{ のとき}, \quad 0 < x < \infty \text{ で } \theta = \theta_0$$

$$t > 0 \text{ のとき}, \quad x = 0 \text{ で } \theta = 0$$

$$\therefore \theta = \theta_0 \operatorname{erfc} \left( \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \quad (16)$$

$$x = 0 \text{ で } \left. \frac{d\theta}{dx} \right|_{x=0} = \frac{-\theta_0}{\sqrt{\pi Dt}} \quad (17)$$

したがって単位表面積あたり単位時間に拡散する放射性物質量を $q$  とすると

$$q = -D \frac{d\theta}{dx} \quad (18)$$

(18) より時間  $t=0$  から  $t=t$  までに拡散する放射性物質  $Q$  は次のようになる。

$$Q = \int_0^t ds = \frac{2\theta_0 \sqrt{D}}{\pi} \cdot \sqrt{t} \quad (19)$$

よって拡散係数  $D$  は

$$D = \frac{\pi}{4\theta_0^2} \left( \frac{Q}{\sqrt{t}} \right)^2 \quad (20)$$

で与えられる。

ここで固化体の表面積を  $S$ 、体積を  $V$ 、時間  $t$  における積算浸出量を  $a$ 、初期含有量を  $A$  とおくと

$$\theta_0 = \frac{A}{V}, \quad Q = \frac{a}{S} \text{ とおける。}$$

$$\therefore D = \frac{\pi}{4} \left( \frac{V}{S} \right)^2 \left( \frac{a}{A} \right)^2 \frac{1}{t} \quad (21)$$

が求まる。

固化体からの浸出結果の整理方法として、IAEAでは1次元平面拡散モデルから導いた(21)式を用いることを提案している。<sup>1)</sup> (21)を変形すると(22)になる。

$$f = \frac{a}{A} = 2 \left( \frac{S}{V} \right) \sqrt{\frac{Dt}{\pi}} \quad (22)$$

ここで、

$f$  : 浸出比

$A$  : 固化体の初期放射能

$a$  : 固化体から $t$  時間後までに浸出した放射能

$V$  : 固化体の体積

$S$  : 固化体の露出面積

$D$  : 拡散係数

(22)式は、浸出比と時間の平方根の関係は直線とならなければならないことを示している。浸出比を時間の平方根の関数として整理すると、セメント固化体についての浸出比-(時間)<sup>1/2</sup>の関係は勾配の異なる前期と後期の2つの直線から成っている。<sup>2)</sup> 前期の直線(23)式で、後期の直線は(24)式で表わすことができる。

$$f_i = m_i \sqrt{t} \quad (23)$$

$$f_\ell = m_\ell \sqrt{t} + \beta \quad (24)$$

ここで、

$m$  : 直線の勾配を表わす定数

サフィックス  $i$ ,  $\ell$  : 前期および後期を意味する。

$\beta$  :  $t = 0$  における $f$  軸の切片

拡散係数に相当する経験的な係数を浸出係数(見掛けの拡散係数) $F$  とすれば、 $m$  は(25)式または(26)式で表わすことができる。

$$F_i = \pi m_i^2 V^2 / 4 S^2 \quad (25)$$

$$F_\ell = \pi m_\ell^2 V^2 / 4 S^2 \quad (26)$$

本報告では、 $F_i$ ,  $F_\ell$  および $\beta$  を用いて浸出比を評価する。

#### 4.2.3 結果と考察

##### 4.2.3.1 浸出に与える廃液・セメント比(Wa/C)の影響

模擬廃液に $\text{Na}_2\text{SO}_4$ を用いたポルトランドセメント固化体の廃液添加量の影響をしらべ、Fig. 4.1にその浸出比と(時間)<sup>1/2</sup>の関係を示した。Table 4.3にポルトランドおよび高炉スラグセメント固化体の廃液・セメント比に対する $F_i$ ,  $F_\ell$  および $\beta$ を示してある。ポルトランドセメント固化体およびスラグセメント固化体いずれの場合も<sup>137</sup>Cs の浸出性は固化体の廃液・セメント比によって異なり、廃液・セメント比が小さいものほど浸出係数 $F_i$ ,  $F_\ell$  は小さい。寺島ら<sup>8)</sup>も述べているように水・セメント比はセメントベーストの空隙性を支配するものであるから、

<sup>137</sup>Cs の浸出は固化体の空隙率によって支配されると考えられる。すなわち、<sup>137</sup>Cs の浸出は固化体中の拡散によって起こり、それは固化体の空隙性に影響される。

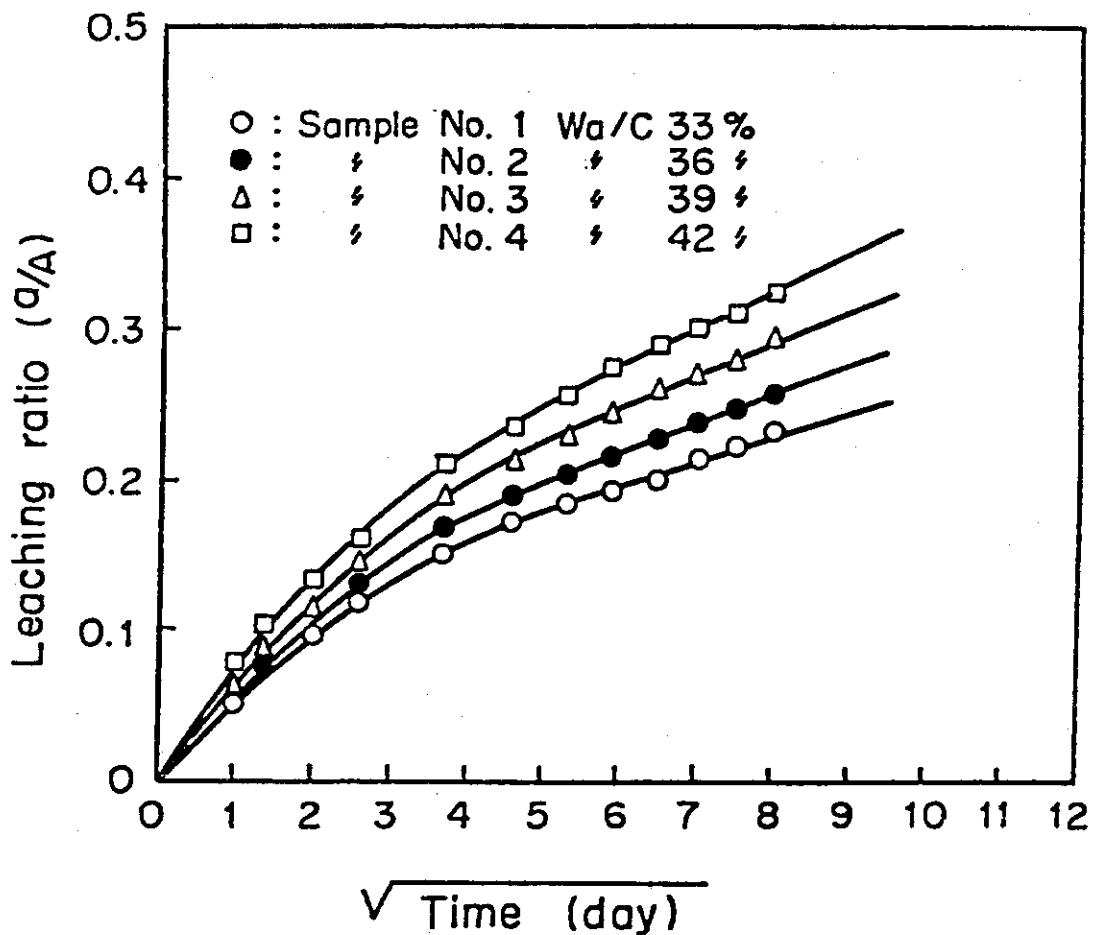


Fig. 4.1 Effect of Waste/cement ratio on leachability of  $^{137}\text{Cs}$ .

Table 4.3 Relationship between Wa/C and leaching coefficient  
(waste :  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  10%, leachant temp. :  $25^\circ\text{C}$ )

Samp. No.	Cement	Wa/C (w/o)	$F_i$ ( $\text{cm}^2/\text{day}$ )	$F_\ell$ ( $\text{cm}^2/\text{day}$ )	$\beta$
1	P	36	$1.37 \times 10^{-3}$	$1.97 \times 10^{-4}$	0.105
2	P	36	$1.71 \times 10^{-3}$	$2.38 \times 10^{-4}$	0.141
3	P	39	$2.09 \times 10^{-3}$	$2.83 \times 10^{-4}$	0.148
4	P	42	$2.83 \times 10^{-3}$	$3.60 \times 10^{-4}$	0.171
5	S	36	$8.11 \times 10^{-4}$	$4.37 \times 10^{-6}$	0.0702
6	S	39	$8.41 \times 10^{-4}$	$7.45 \times 10^{-6}$	0.0699
7	S	42	$1.02 \times 10^{-3}$	$1.04 \times 10^{-5}$	0.0788
8	S	45	$1.32 \times 10^{-3}$	$1.15 \times 10^{-5}$	0.0834

## 4.2.3.2 浸出に与えるセメントの種類の影響

セメントの種類の相違によるBWR廃液固化体からの<sup>137</sup>Csの浸出への影響は、Table 4.3からW/Cが同一のもの、すなわち39%および42%のものについて比較してみると、 $F_i$ 、 $F_l$ ともスラグセメントを用いた固化体の方がポルトランドセメントのそれより低い値を示した。硬化したスラグセメントには、フリーの状態にあるCa(OH)<sub>2</sub>(固化に必要なもの)が多く含まれているために、耐水性がポルトランドセメント固化体より高いとみなされている。<sup>15)</sup>このような結果は、固化体マトリックスの耐水性の面からのみ説明することができる。

## 4.2.3.3 浸出に与える浸出水の温度の影響

ポルトランドセメント固化体の浸出水の温度の影響について検討した。その結果をFig. 4.2に示す。また、(23)、(24)、(25)および(26)式から計算した $F_i$ 、 $F_l$ および $\beta$ をTable 4に示す。Fig. 4.2の浸出速度の温度依存性をしらべ、活性化エネルギーを計算するとほぼ3.5 kcal/molとなつた。

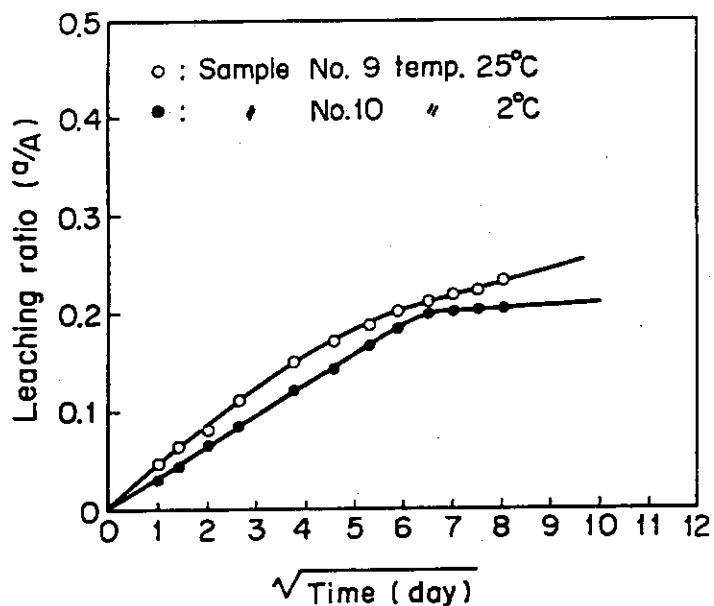


Fig. 4.2 Effect of temperature of leachant on the leaching ratio.

Table 4.4 Effect of the temperature of leachant on the leaching coefficient (Waste : Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 15 %, W/C : 33 %)

Samp. No.	Temp. (°C)	Setting period (day)	$F_i$ (cm <sup>2</sup> /day)	$F_l$ (cm <sup>2</sup> /day)	$\beta$
9	25	50	$1.20 \times 10^{-4}$	$2.11 \times 10^{-4}$	0.113
10	2	50	$5.45 \times 10^{-4}$	$2.03 \times 10^{-4}$	0.0631

#### 4.2.3.4 浸出に与える浸出水の種類の影響

本試験では浸出水としてイオン交換水または人工海水を用いた。その相違による<sup>137</sup>Csの浸出挙動についてFig.4.3に示す。この図から初期を除き、浸出比はイオン交換水の方が人工海水よりも高い値を示していることがわかる。

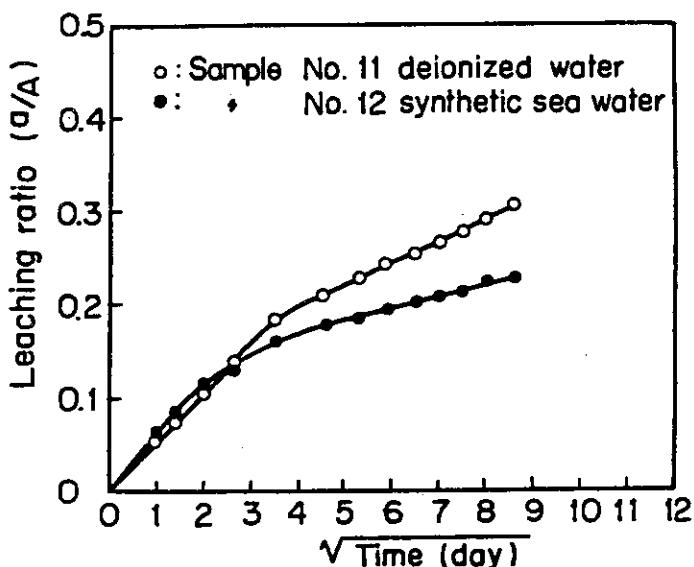


Fig. 4.3 Effect of type of leachant on leachability of <sup>137</sup>Cs.

この原因として、寺島ら<sup>8)</sup>が述べているように、海水の溶存塩の濃度が高いために、固化体から液側への濃度勾配に基づく溶出が抑制されるためと推定される。また、後に述べるように、養生期間の相違はほとんど認められない。

#### 4.2.3.5 <sup>60</sup>Co の浸出挙動

本節では、<sup>137</sup>Csの浸出性のみ検討し、<sup>60</sup>Coの浸出性については検討しなかった。寺島ら<sup>8)</sup>が求めた<sup>60</sup>Coの浸出挙動を<sup>137</sup>Csの挙動と比較してFig.4.4に示す。図から<sup>137</sup>Csの浸出比が<sup>60</sup>Coのそれよりはるかに高い値を示していることがわかる。

これについて寺島ら<sup>8)</sup>が述べているように、<sup>137</sup>Csの浸出比が高いのはCsにはセメント水和物への交換・吸着性がないためであり、<sup>60</sup>Coが低い値を示すのは、<sup>60</sup>Coがセメントミルク中で水酸化物コロイドを形成し、セメント水和物結晶に強固に結びつきうる核種であり、セメント固化体中では移動性に乏しいからであると考えられる。

#### 4.2.3.6 浸出に与える養生期間の影響

IAEAの暫定指針では、固化体の養生期間は7日間となっているが、放射性核種の浸出性は養生期間の影響を受けることが知られている。ポルトランドセメント固化体について、浸出性に与える養生期間の影響をしらべた。その結果をTable 4.5に示す。この表に見られるように、浸出温度25°Cの場合、浸出係数は養生期間によらずほぼ一定である。一方、浸出温度2°Cの場合、浸出係数は養生期間が長くなるにしたがって減少する傾向にある。また、浸出温度2°CにおけるF<sub>i</sub>はいず

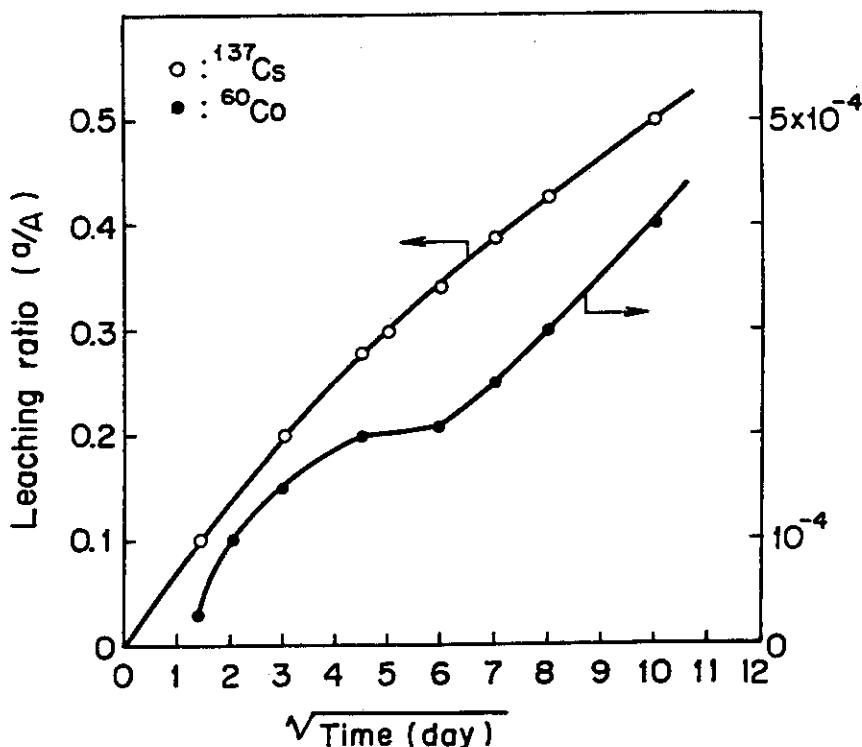
Fig. 4.4 Comparison of leachability of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$ .

Table 4.5 Effect of setting periods of specimens on the diffusion coefficient

( $^{137}\text{Cs}$  : 116 Ci/sample,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  : 15 %,  
Wa/C : 33 % Portland cement)

Sample No.	Setting period (day)	Temp. ( $^{\circ}\text{C}$ )	$F_i (\text{cm}^2/\text{day})$	$F_d (\text{cm}^2/\text{day})$	$\beta$
11	7	25	$1.19 \times 10^{-3}$	$2.06 \times 10^{-4}$	0.118
12	28	25	$1.15 \times 10^{-3}$	$2.07 \times 10^{-4}$	0.117
9	50	25	$1.20 \times 10^{-3}$	$2.11 \times 10^{-4}$	0.113
13	7	2	$7.08 \times 10^{-4}$	$2.52 \times 10^{-4}$	0.0731
14	28	2	$5.53 \times 10^{-4}$	$2.38 \times 10^{-4}$	0.0642
10	50	2	$5.45 \times 10^{-4}$	$2.03 \times 10^{-4}$	0.0631

れの養生期間の場合も、浸出温度25°Cにおける値より低くなっている。

このことは、初期浸出過程においては、イオンの拡散に対する温度効果が主たるものであると考えられる。これは4.2.3.3の結果からも理解できる。また、養生期間が長くなるにしたがって、浸出係数が減少するのは、養生期間が長くなると、この間にセメントの水和が進み、セメントの水和度が固化体マトリックスの耐浸出性に対する影響を少なくするためと考える。

## 4.2.3.7 浸出に対する骨材の効果

「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」<sup>16)</sup>の配合例では、骨材として人工軽量砂（メサライト）の使用も含まれていることからメサライトの<sup>137</sup>Csの浸出におよぼす効果をしらべた。また、比較のために標準砂、ならびに浸出性改善の目的にゼオライトの使用もあわせて検討した。

## a) 骨材のイオン交換容量

人工軽量砂、標準砂およびゼオライトについて、セシウムのイオン交換容量を求めた。なお、セメント固化のさい、骨材は前処理することなく添加しているので、イオン交換容量を決定する場合も骨材をそのまま用いた。

実験は、骨材試料2gを250mℓ三角フラスコに精秤し、これに<sup>137</sup>Csでラベルした0.2M塩化セシウム溶液100mℓを加え、24時間ふり混ぜ、吸着平衡にいたらしめた。上澄液を遠心分離し、その放射能計数率をガスフローカウンターで計測し、次式からイオン交換容量を求めた。

$$E = \frac{n (1 - A/B) \times 10^2}{W}$$

ここで、

E : イオン交換容量 ( meq/100g )

B : 原液の放射能計数率 ( cpm/mℓ )

A : 吸着平衡後の検液の放射能計数率 ( cpm/mℓ )

W : 試料の使用量(g)

n : 原液中のセシウムのミリグラム当量数 ( meq )

得られたイオン交換容量の値をTable 4.6に示す。

Table 4.6 Ion exchange capacities of River sand, Mesalite and Zeolite

Aggregate	E (meq/100g)
River sand	13.9
Mesalite	13.9
Zeolite	148

## b) 浸出に与える骨材添加の影響

添加した骨材の種類と浸出比との関係をBWR型セメント固化体についてしらべ、ポルトランドセメントの結果をFig.4.5に、また高炉スラグセメントの結果をFig.4.6に示す。

両図からわかるように、浸出比はポルトランドセメント固化体では、標準砂≈人工軽量砂>ゼオライト、また、スラグセメント固化体では、人工軽量砂>標準砂>ゼオライトの順でそれぞれ減少している。とくにゼオライトでは、浸出比は著しく小さい値となっている。これら

の傾向は骨材のイオン交換容量とほぼ一致している。

ゼオライトのイオン交換容量は大きい上に、セシウムに対して高い選択性を示すことが知ら  
れています。<sup>17)</sup>

Fig.4.5, 4.6 に示したように、骨材を添加した場合においてもセメントの種類によって浸出性は若干異なる。いずれの骨材の場合もポルトランドセメント固化体にくらべて高炉スラグセメント固化体における浸出比は小さくなっている。特に標準砂の場合にこの影響は著しく、約  $1/10$  に減少している。この値はメサライトでは約  $1/2$ , ゼオライトでは  $1/4$ , 骨材を添加しない場合では  $1/3$  になっている。このように骨材によってセメントの種類の影響が異なるのは、セメントと骨材の親和性の相違によるものと考えられる。

以上のことから、 $^{137}\text{Cs}$  の耐浸出性を向上させるためには、ゼオライトの添加がセメントの種類にかかわらず、きわめて効果的であることがわかった。

ゼオライト添加固化体からの  $^{137}\text{Cs}$  の浸出におよぼす浸出液の影響を Table 4.7 に示す。この表から浸出時間 30 日における浸出比は浸出液の種類によらずほぼ同じような値となっていることから、ゼオライトに固定された  $^{137}\text{Cs}$  は、人工海水中のイオンと交換し、脱離しないことが明らかとなった。すなわち、ゼオライトーセメント系固化体が海水に浸漬されても淡水と同程度の低い浸出性を示すことを意味している。

Table 4.7 Leachant dependence of leachability

Sample No.	Leachant	Cement	Leaching ratio (at 30 days)
17	Deionized water	Portland	$1.14 \times 10^{-2}$
21	Sea water	"	$1.09 \times 10^{-2}$
20	Deionized water	Slag	$2.75 \times 10^{-3}$
22	Sea water	"	$2.81 \times 10^{-3}$

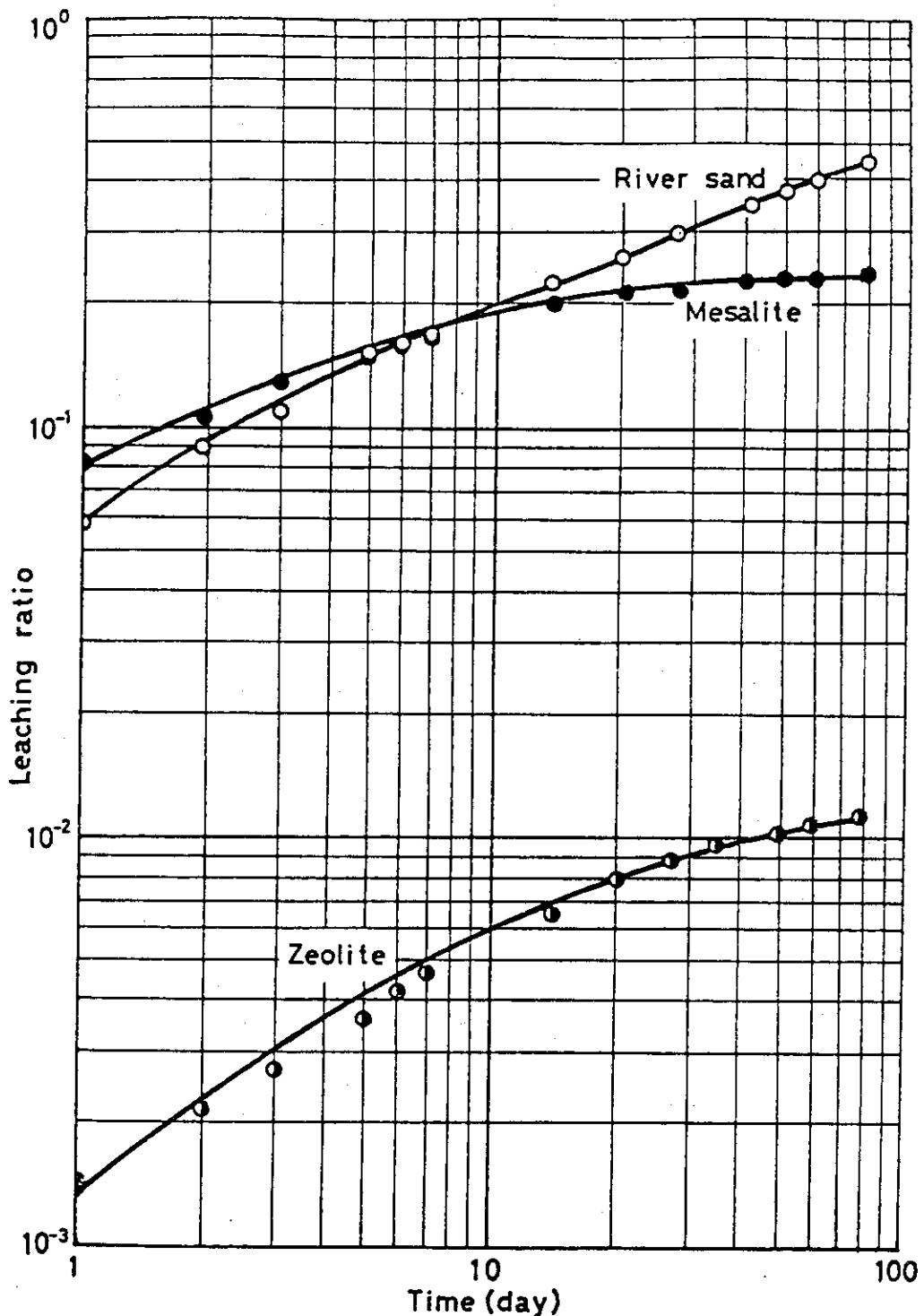


Fig. 4.5 Effect of various types aggregates added to specimens on the leachability (Portland cement)  
Sample No. O :15, ● :16, ○ :17

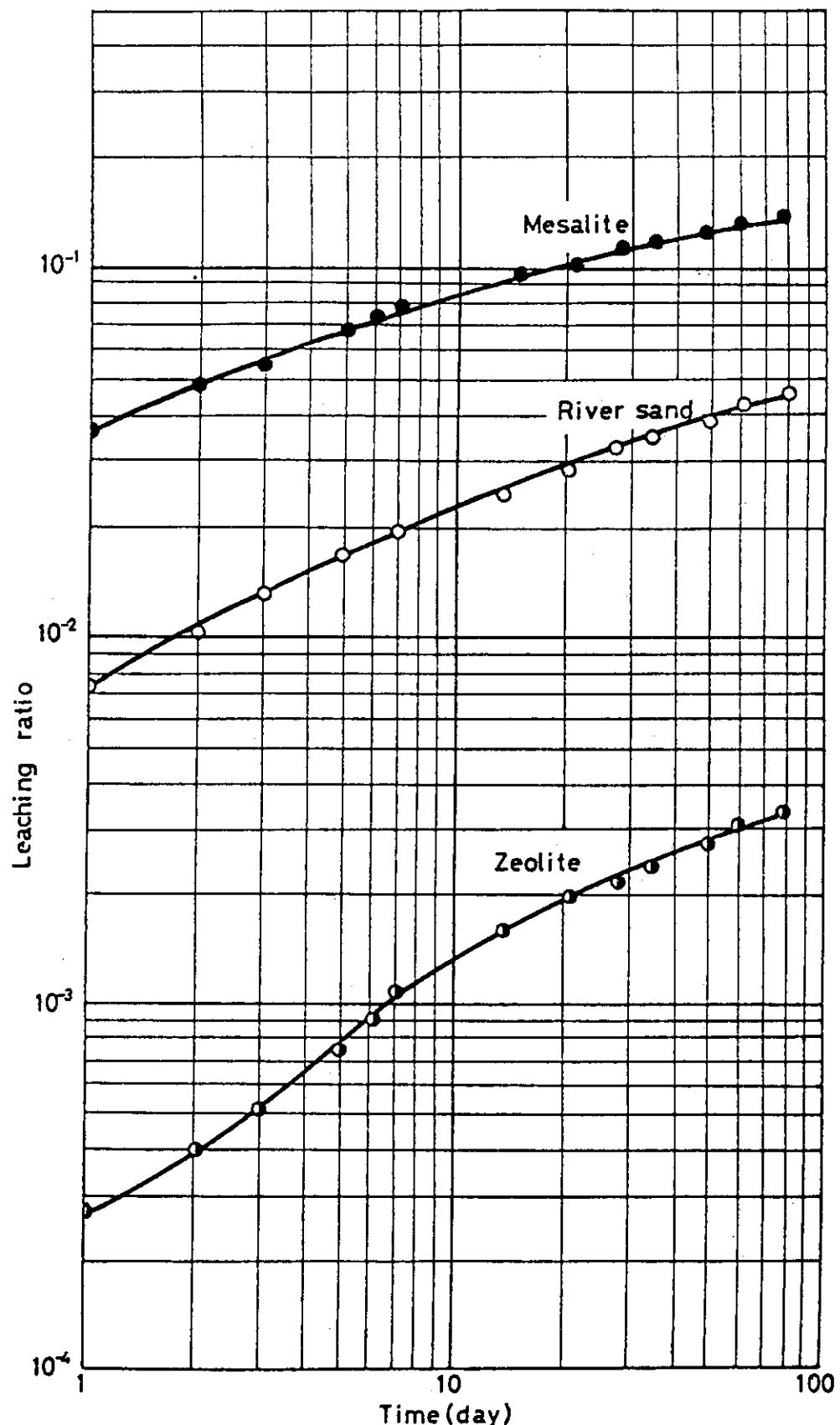


Fig. 4.6 Effect of various types of aggregates added of specimens on the leachability (Slag cement)  
Sample No. O :18, ● :19, ○ :20

#### 4.3 実大固化体の高水圧浸出試験

本節では、放射性廃棄物海洋処分の安全評価の一環として、BWR および PWR から発生する濃縮廃液の実大（200 ℥）セメント均一固化体について、海洋処分条件下の放射性核種の浸出性を述べる。

著者は、IAEAにより提案された浸出試験法にしたがって、BWR 系模擬濃縮廃液の小規模セメント固化体について、<sup>137</sup>Cs による浸出性の検討を前節で行った。

しかしながら、実大固化体と小規模固化体との間、あるいは実際の海洋処分条件と常圧の浸出条件との間には、さまざまな点で大きな相違があると考えられる。

このため深海 5,000 m の条件を模擬できる実大固化体高圧 RI 浸出試験装置を製作した。この装置を使用して、深海中健全性試験の知見を参考として、実大セメント 均一固化体の高水圧下での浸出試験法を定めて浸出試験を実施した。得られた結果を解析して、海洋処分により水相へ長期にわたって移行する放射能の推定を行った。

##### 4.3.1 試験の概要

###### 4.3.1.1 試験体の製作

500 ℥ ドラム缶中でセメント、骨材および模擬廃液などを攪拌翼（138rpm）を用いて均一に混練し、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、その後 28 日以上空気中養生して試験体を製作した。

BWR から発生する濃縮廃液の模擬廃液には、50 °Cに加熱した 15 % の硫酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) 水溶液を、PWR の模擬廃液としてはホウ酸 (H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>) および水酸化ナトリウム (NaOH, pHを調整するため) をそれぞれ 10.2 % および 8.2 % 加えた水溶液を使用した。硫酸ナトリウムを主成分とする BWR 廃液では、普通ポルトランドセメントを用いた場合には、硫酸ナトリウムが<sup>16)</sup>セメントの水和生成物に作用して、セメント固化体の強度低下や崩壊をまねくおそれがある。この作用を抑制するためケイ酸分の多い高炉スラグセメントを使用した。またホウ酸を主成分とする PWR 廃液では、高炉スラグセメントを用いた場合には、セメント中に多量に存在するケイ酸にホウ酸が作用し、セメントの水和を妨げて強度低下をまねくため、<sup>16)</sup>普通ポルトランドセメントを使用した。

また、骨材には、人工軽量砂（三井金属製メサライト）を用いた。放射性核種としては<sup>137</sup>Cs または<sup>60</sup>Co を用い、混練の段階で 5 mCi 添加した。

Table 4.8 に製作固化体の試料Noとその配合を示す。Fig.4.7 に使用材料の混合手順を示す。試料No.H-3, 6 では固化体に生ずるクラックを防止するため膨張材（商品名デンカ CSA）を添加した。使用した膨張材の化学的成分、物理的性質をTable 4.9 に示す。また、試料No.H-3 では試験的海洋処分の際に必要とされる廃棄物固化体の仕様<sup>14)</sup>にしたがって、固化体上部に 8 cm 厚のストレートアスファルト（針入度 60~80）を施した。アスファルトの物理的性質をTable 4.10に示す。

Table 4.8 Mix proportion of specimens

Specimen No.	Cement	Simulated liquid waste	Wa/C (%)	A/A+C (%)	Radionuclide	Remarks
H-1	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	68	25	<sup>137</sup> Cs	
H-2	S	"	62	22	"	
H-3	P	10.2% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 8.2% NaOH	81	38	"	expansion material added
H-4	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	83	45	"	
H-5	P	10.2% H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 8.2% NaOH	81	38	"	
H-6	P	"	81	38	"	expansion material added
H-7	S	15% Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	83	45	<sup>60</sup> Co	

S : Blast furnace slag cement, P : Normal portland cement

A : Aggregate, C : Cement, Wa : Simulated liquid waste

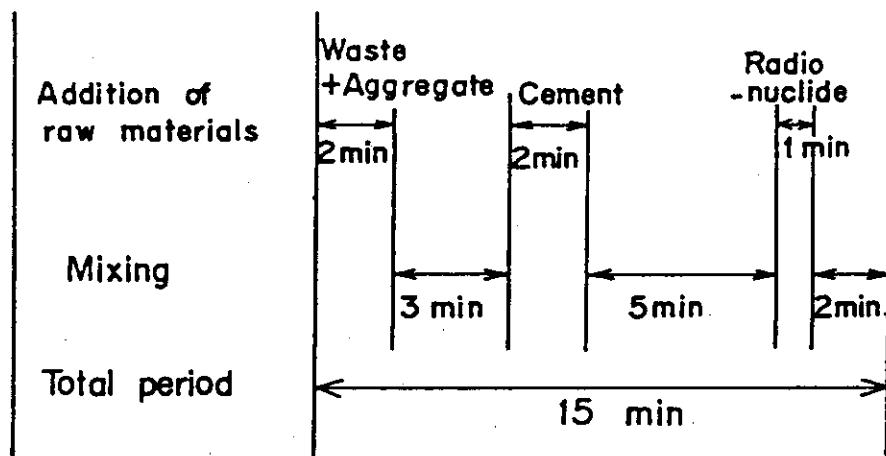


Fig.4.7 Mixing procedure for preparation of full size specimens containing radioactivity.

Table 4.9 Physical property and chemical composition  
of the expansion material

## a) Physical property

Specific gravity	Specific surface (cm <sup>2</sup> /g)	< 88 μ Residue (%)	Lengthen rate (%)
2.93	2280	41.8	0.6 ~ 0.8

## b) Chemical composition (%)

Loss on ignition	Insoluble residue	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>
1.0	1.4	4.0	10.0	1.2	52.5	0.6	28.3

Table 4.10 Physical property of straight Asphalt

Specific gravity	1.01 ~ 1.06
Softening point	46 ~ 56 °C
Penetration	60 ~ 80
Loss on heating	Max. 0.2 w/o
Solubility	99 w/o
Frash point	250 °C

## 4.3.1.2 高水圧浸出試験

海洋処分をした場合、固化体に含まれている放射能がどのように水相へ移行するかを明らかにするため高水圧浸出試験を行った。

試験に用いた各固化体の容器の形状ならびに加圧条件をTable 4.11に示す。

Table 4.11 Appearance of container and pressurized condition

Specimen No.	Appearance of container	Exposed surface (%)	Period to attain 500 kg/cm <sup>2</sup> (min.)
H-1	Drum without lid and bottom	25.6	40
H-2	Drum without lid	12.8	360
H-3	Drum with lid and asphalt capping	0	40
H-4	Drum with lid	0	40
H-5	Drum without lid	12.8	360
H-6	Drum with lid	0	40
H-7	Drum without lid	12.8	360

Hydrostatic pressure 500 kg/cm<sup>2</sup>

Temperature 2 °C, Flow velocity 1.2 cm/sec

固化体の試験は2.3の深海中健全性模擬試験と同時の条件で行った。

浸出水にはイオン交換脱塩水を用いた。これは実大固化体高圧RI 浸出試験装置の腐食を考慮したことと、前節の小規模試料による浸出試験からイオン交換脱塩水を用いた場合、海水にくらべてわずかに高い浸出比が得られ、安全側の評価となるためである。

浸出試験を行い、その結果を解析するためには、あらかじめ既知の固化体表面を露出させねばならない。このため必要な場合は、ディスクグラインダによりドラム缶詰めセメント固化体のドラム缶外被を一部切断撤去した。切断時に発生する鉄およびコンクリート粉塵は付属す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フィルタで捕集した。固化体表面の露出度は裸のものが100%，上蓋と底板をはずしたものが25.6%，上蓋のみはずしたものが12.8%および完全にドラム缶で覆われているものが0%となる。圧力500kg/cm<sup>2</sup>までの昇圧所要時間は、

露出度 0 % の固化体については海中落下所要時間に相当する時間すなわち約 40 分、試料 No.H-1 を除き、露出面のあるものは長時間（約 6 時間）かけた。

以上の浸出試験条件は 2.3 の深海中健全性模擬試験の結果に基づいて定めた。

浸出放射能は浸出水 1 ℥を一定時間ごとに採取し、Na I シンチレーションカウンタおよび波高分析器を使用して測定した。放射能濃度が低い場合は、浸出水 5 ℥を蒸発濃縮してから測定を行った。

#### 4.3.2 結果と考察

本節でも、前節同様、浸出係数  $F_i$ 、 $F_\ell$  および  $\beta$  を用いて浸出性を評価する。

第 1 節の緒言でも述べたように、セメント固化体からの  $^{137}\text{Cs}$  の浸出挙動についての報告は、数多く出されている。まず、水圧が浸出係数にどの程度の影響をおよぼすかを文献<sup>3), 11)</sup>について調べてみると Table 4.12 のとおりである。300~400 kg/cm<sup>2</sup> で常圧に比べて 50~55 % に低下している。本節では水圧 500 kg/cm<sup>2</sup> で試験を行ったが、上記の結果を外挿すれば常圧に比べて浸出係数が 40 % 程度、浸出速度に換算すると約 60 % に低下することが推定される。すなわち、拡散のプロセス自体におよぼす高圧の影響はそれほど大きいものではない。また、温度の影響については前節から活性化エネルギーが 3 ~ 4 kcal/mol であることが求まっている。したがって、2 °C では室温（25 °C）の約 1/2 の速度となる程度の影響である。

Table 4.12 Effect of hydrostatic pressure on leaching coefficient ( $^{137}\text{Cs}$ )

	Pressure (kg/cm <sup>2</sup> )	Temperature (°C)	$F_\ell$ (cm <sup>2</sup> /day)	Cement
Ref. (11)	1	20	$3.7 \times 10^{-3}$	Portland cement
	300	20	$2.0 \times 10^{-3}$	"
Ref. (3)	1	25	$2.2 \times 10^{-5}$	Blast furnace slag cement
	400	25	$1.1 \times 10^{-5}$	"

##### 4.3.2.1 昇圧速度の浸出に対する影響

2.3 の深海中健全性模擬試験で昇圧速度を固化体の海中落下速度に相当する速度にした場合、裸の固化体にクラックが生じ、表面積が変化することはすでに述べた。

昇圧速度を変えた場合の表面積の変化に伴う浸出の変化を、BWR 模擬廃液の高炉スラグセメント固化体について検討した。

海洋投棄の場合に、実際には行われない仮定的な条件として、なんらかの原因によりドラム缶に欠陥が生じて露出面のできた固化体を投棄の対象とすれば、クラックなどにより表面積が増大し、その結果として固化体から放射性核種の浸出は促進されることが考えられる。昇圧速度が異なるとどの程度浸出の促進速度が変わるか、Fig. 4.6 にその試験結果を示す。試料 No.H-1 は 500

$\text{kg}/\text{cm}^2$  までの昇圧時間を約40分とし、ドラム缶の形状としては上蓋および底板をはずしたものである。H-2は昇圧時間をH-1の約9倍の6時間かけて加圧を行い、ドラム缶の上蓋のみはずしたものである。Fig.4.8にプロットしたH-2の値は固化体の露出面積がH-1の場合 $1/2$ であるので、比較のために実際の浸出の2倍の値をプロットした。H-1の浸出比はH-2のその約30倍の値を示している。H-1の場合、昇圧速度が高いため固化体にクラックが入るなどの変化が認められた。このため固化体表面積が相当増大したものと推定される。すなわち、(22)式より浸出比が表面積に比例することを考慮すれば、H-1の浸出に関する表面積はH-2のその約30倍になっていると推定される。また、試験後の固化体表面の観察ではH-2は外観上変化は認められなかった。以上の知見により、この後露出面のある固化体について浸出試験を行う場合には、6時間かけて $500\text{ kg}/\text{cm}^2$ に昇圧することにした。

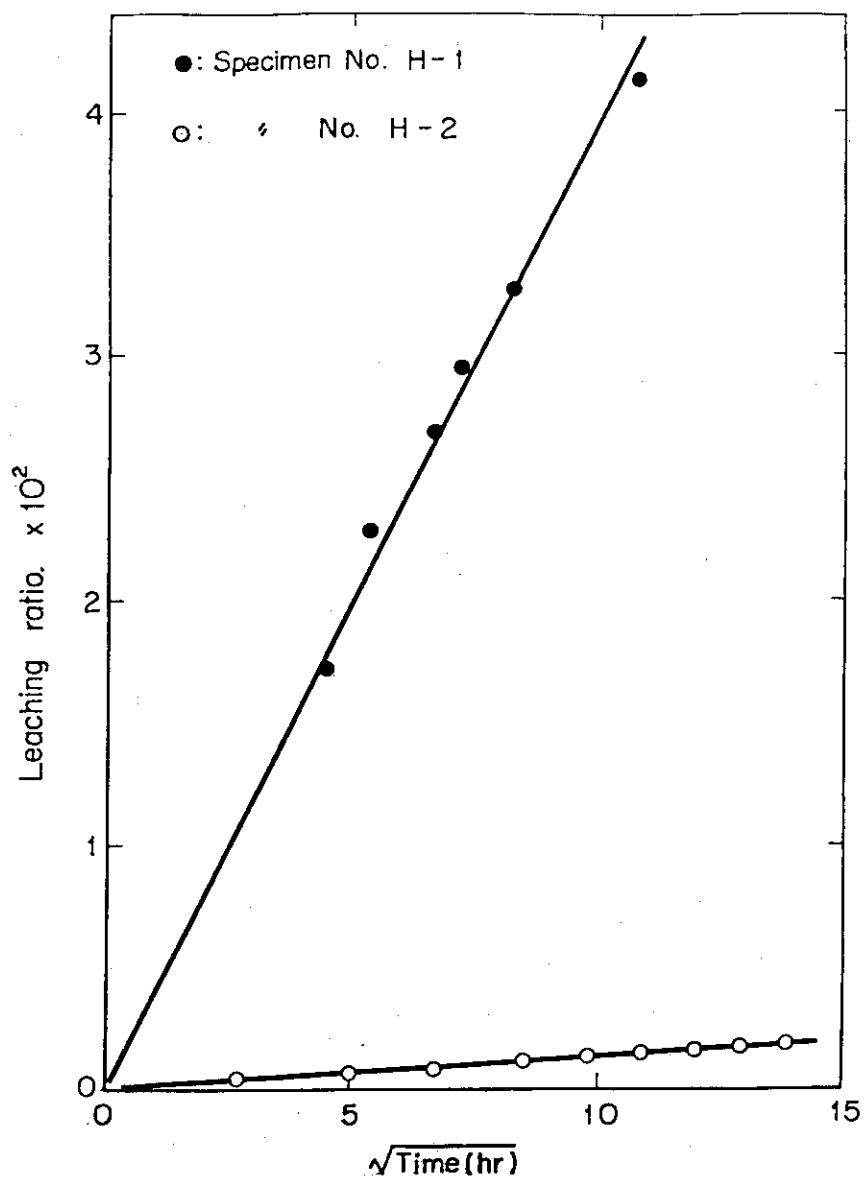


Fig.4.8 Effect of pressure increasing rate on apparent leachability of  $^{137}\text{Cs}$ . Period to attain  $500 \text{ kg}/\text{cm}^2$ , H-1:40 min., H-2:360 min.

#### 4.3.2.2 キャッピングの浸出に対する影響

実際に海洋処分されるセメント固化体パッケージは、セメントモルタルあるいはアスファルトでキャッピングを施したものとなる。<sup>16)</sup> H-3は、PWR模擬廃液普通ポルトランドセメント固化体(<sup>137</sup>Cs入り)の上部にアスファルトで8cm厚のキャッピングを施し、さらにドラム缶蓋を取り付けた試験体である。675時間の浸出試験の結果では、放射性核種(<sup>137</sup>Cs)の濃度は検出限界(浸出比に換算して $1.3 \times 10^{-6}$ )以下であった。また、試験体の重量測定では、試験前の重量399kgは試験後においても変化はなく、セメント固化体への水の浸入による增量は認められなかった。

#### 4.3.2.3 ドラム缶蓋の浸出に対する影響

セメント固化体にキャッピングを施し、さらにドラム缶蓋を閉じて高水圧浸出試験を行った場合、固化体に高圧水の浸入がなかったことは前項で述べた。したがって容器が腐食などの原因によって破損するまでは、内部に含まれている放射性核種はほとんど浸出しないことが予想される。一方、高圧水の急激な浸入によるセメント固化体の破損は、ドラム缶に蓋をすることにより認められなくなることはすでに報告した。次に、放射性核種の浸出にドラム缶蓋の有無がどの程度影響しているかについて知見を得るための試験を行った。

500kg/cm<sup>2</sup>までの昇圧時間はH-2およびH-5(蓋なし)については6時間、H-4およびH-6(蓋付き)については40分間とした。Fig.4.9およびFig.4.10にそれぞれの試験結果を

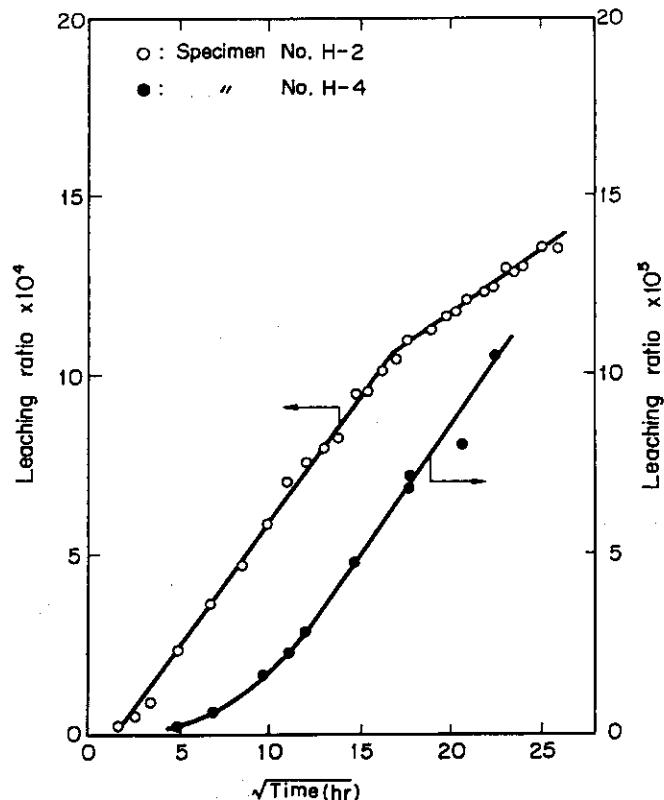


Fig.4.9 Effect of drum lid on leaching of <sup>137</sup>Cs from full size cement solidified waste (1); specimens, simulated evaporator concentrate from BWR solidified with slag cement.

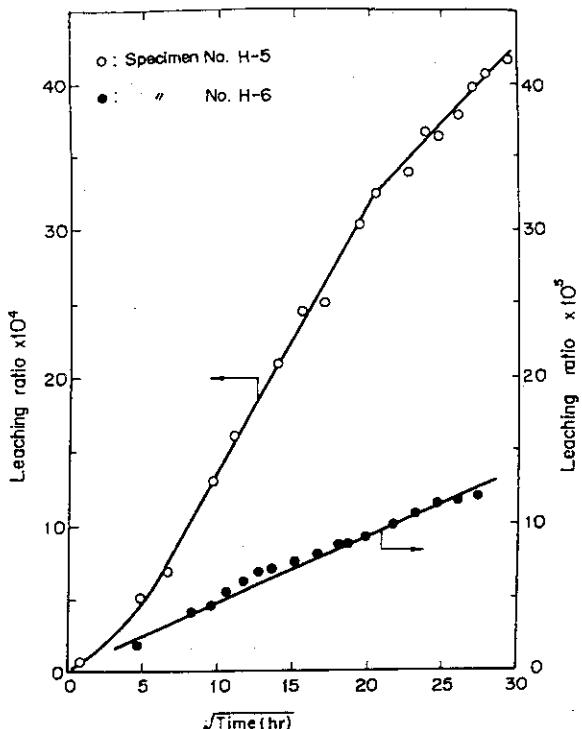


Fig. 4.10 Effect of drum lid on leaching of  $^{137}\text{Cs}$  from full size cement solidified waste (2); specimens, simulated evaporator concentrate from PWR solidified with Portland cement.

示す。いずれも蓋の抑制効果は認められるが、H-4では蓋がへこんだ際、ドラム缶との間に間隙の生じた部分があるため、多少効果が少なくなった。なお、蓋がへこんで中央部は固化体に密着したが、周辺部にはセメント固化体との間に多少の空間が残り、その部分に水が浸入していた。前項の結果を比較すると、浸出に対するキャッピングの効果は著しいことがわかる。

#### 4.3.2.4 浸出に対するセメントの種類の影響

BWR 濃縮廃液は硫酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) を主成分とし、高炉スラグセメントでの固化体が適しているが、PWR 濃縮廃液はホウ酸 ( $\text{H}_3\text{BO}_3$ ) が主成分であって、普通ポルトランドセメントが固化に適しているとされている。<sup>16)</sup> このように廃液成分および固化に用いるセメントの種類の異なる固化体について  $^{137}\text{Cs}$  の浸出をしらべるため、H-2 (BWR 模擬濃縮廃液高炉スラグセメント固化体) および H-5 (PWR 模擬濃縮廃液普通ポルトランドセメント固化体) との浸出試験の結果を比較して Fig. 4.11 に示す。

図から BWR 模擬濃縮廃液の高炉スラグセメント固化体の方が、PWR 模擬廃液の普通ポルトランドセメント固化体に比べて耐浸出性が優れていることがわかる。

(23), (24), (25) および (26) 式によって浸出係数を計算すると、前者は  $1.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{day}$ 、後者は  $1.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{day}$  であった。セメントの種類により浸出速度が異なることはよく知られており、高炉スラグセメント固化体は普通ポルトランドセメント固化体に比べて耐浸出性が優れている。<sup>2), 11)</sup>

一方、普通ポルトランドセメント固化体については塩の種類による浸出性の差はほとんど認められない<sup>2), 11)</sup>ので、上記の浸出係数の相違は主として使用したセメントの種類によると考える。

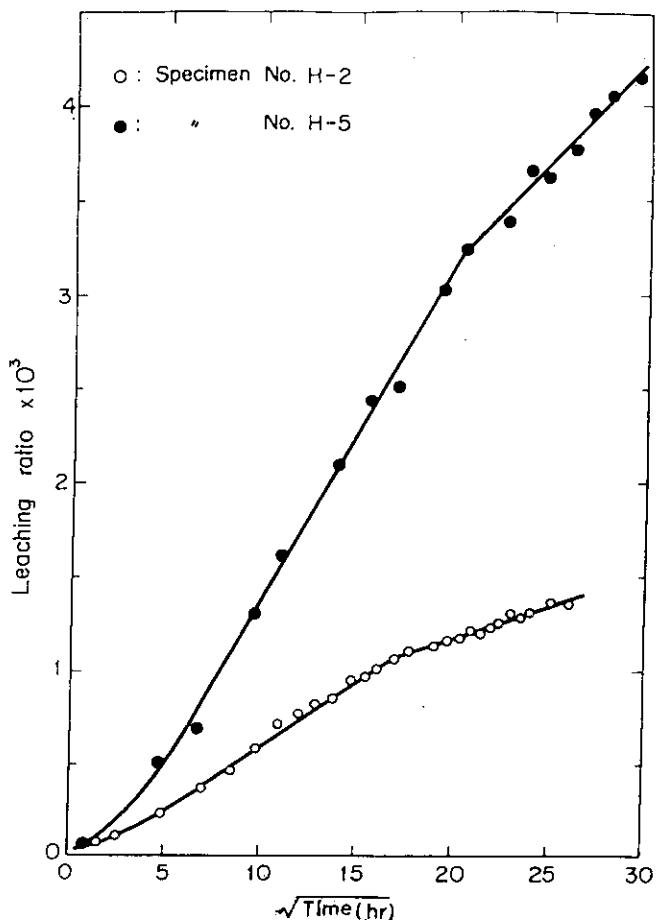


Fig. 4.11 Comparison of leachability of  $^{137}\text{Cs}$  from full size solidified waste with Portland cement and slag cement.

#### 4.3.2.5 $^{60}\text{Co}$ の浸出挙動

前項までは  $^{137}\text{Cs}$  の浸出挙動について検討を行った。

次に、原子炉材料の誘導放射能によって生ずる長寿命核種の  $^{60}\text{Co}$  について浸出試験を行った。セメント固化体中ではアルカリ性が強いため  $^{60}\text{Co}$  は水酸化物として存在し、その水に対する溶解性が低いため、 $^{60}\text{Co}$  の浸出速度は水に溶解してイオン化する  $^{137}\text{Cs}$  に比べて低いことを小規模固化体について前節で報告した。BWR 模擬濃縮廃液の高炉スラグセメント固化体から  $^{60}\text{Co}$  の高水圧浸出結果を  $^{137}\text{Cs}$  と比較して Fig. 4.12 に示す。

$^{60}\text{Co}$  の浸出係数は  $1.2 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{day}$  で、 $^{137}\text{Cs}$  に比べて  $10^{-4}$  以下である。その差異は前述のように溶解度の差によるものと考えられる。以上 4.3.2.4 および 4.3.2.5 をまとめて整理して Table 4.13 に示す。

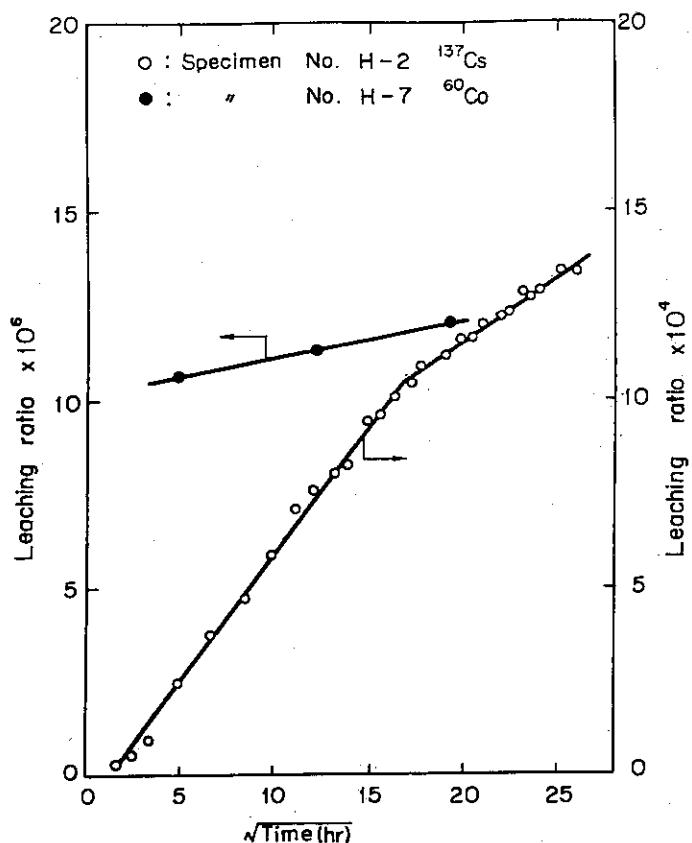


Fig. 4.12 Comparison of leachability of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  from full size cement solidified waste; specimens, simulated evaporator concentrate from BWR solidified with slag cement.

Table 4.13 Summary of experimental results

Specimen No.	Simulated liquid waste	Cement	Radionuclide	$F_i (\text{cm}^2/\text{day})$	$F_g (\text{cm}^2/\text{day})$	$\beta$	Exposed surface (%)
H-2	15% $\text{Na}_2\text{SO}_4$	S	$^{137}\text{Cs}$	$6.3 \times 10^{-4}$	$1.6 \times 10^{-4}$	$4.6 \times 10^{-4}$	12.8
H-5	10.2% $\text{H}_3\text{BO}_3$ 8.2% $\text{NaOH}$	P	$^{137}\text{Cs}$	$4.4 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^{-3}$	$1.1 \times 10^{-3}$	12.8
H-7	15% $\text{Na}_2\text{SO}_4$	S	$^{60}\text{Co}$			$1.2 \times 10^{-9}$	$1.0 \times 10^{-5}$

Experimental condition : Hydrostatic pressure 500  $\text{kg}/\text{cm}^2$ , Temperature 2  $^\circ\text{C}$ , Flow velocity 1.2  $\text{cm}/\text{sec}$ .

#### 4.3.2.6 浸出に関する長期予測

放射性廃液のセメント均一固化体を海洋処分した場合、固化体から放射性核種がどの程度水相中へ放出されるかを長期間にわたって予測することは、きわめて重要な事項である。一般に安全評価を行う場合、設定する条件は緩やかにならぬよう充分留意する必要がある。本節では、ドラム缶付き固化体を用いて高水圧浸出試験を行ったが、正確な浸出の長期予測を行うためにはドラム缶の耐久性を考慮する必要がある。しかし、ドラム缶の耐久性についてはまだ充分に検討されていない。

このことはいずれ早い時期に検討しなければならない問題である。海水中の廃棄物パッケージがどのように劣化するのか知ることは、放射性核種の浸出性評価にとって別な意味で重要な項目である。アメリカ環境庁は24年間以上海底に置いてあったドラム缶詰めセメント固化体の回収を行った。<sup>18)</sup> それによるとセメント固化体は外観上はっきりと認められるような変化はなかったと報告している。したがって上記の事実からセメント固化体の上部はじかに海水にさらされていたが、固化体は海水中においても10数年間あるいはそれ以上にわたって健全性を保持しうるものであるといえる。しかし、ここでは浸出性をさらに安全側に評価することとしセメント固化体の全表面が露出されていると仮定して、前項までのデータを使用して浸出性の検討を行う。

また、本節では純水を浸出水に用いているが、浸出水に海水を用いる場合よりも幾分高い浸出比を与えることが知られている。<sup>2), 11)</sup> したがって、純水を用いたデータによれば、海水中での浸出を予測する場合、安全側に評価することになる。固化体に初期に含まれている一定の放射能に対し、固化体から浸出により固化体外へ移行した放射能の比を崩壊を考慮して Fig. 4.13 および Fig. 4.14 に示す。計算式は(27)式<sup>10)</sup>を用いた。

$$f' = [ 2 ( S_2 / V ) \sqrt{F_\ell t / \pi} + \beta_2 ] e^{-\lambda t} \quad (27)$$

$$\beta_2 = \alpha_1 \cdot S_2 / S_1 \quad (28)$$

ここで、  $S_2$  : 固化体の全表面積

$\beta_2$  : 露出面積  $S_1$  で試験して得られた(24)式の  $\beta$  の値  $\beta_1$  から(28)式によって計算した値

$\lambda$  : 壊変定数

また、  $\beta_2$  は(29)式のように  $F_i$  の関数である。

$$\beta_2 = 2 ( S_2 / V ) \sqrt{ ( F_i - F_\ell ) t_1 / \pi } \quad (29)$$

ここで、

$t_1$  : 浸出開始から、浸出係数が  $F_i$  から  $F_\ell$  に変化するまでの時間

$F_\ell$  は Table 4.13 の値を用いた。Fig. 4.14 からわかるように  $^{60}\text{Co}$  の浸出比は添加した放射能の 0.01% 以下であった。なお、 $^{60}\text{Co}$  は普通ポルトランドセメント固化体の方が高炉スラグセメント固化体に比べ、  $F_\ell$  の値は小さいことが報告されている。<sup>8)</sup>  $^{137}\text{Cs}$  は Fig. 4.13 から高炉スラグセメント固化体であれば、最大でも浸出比は 10% 程度であることが推定される。

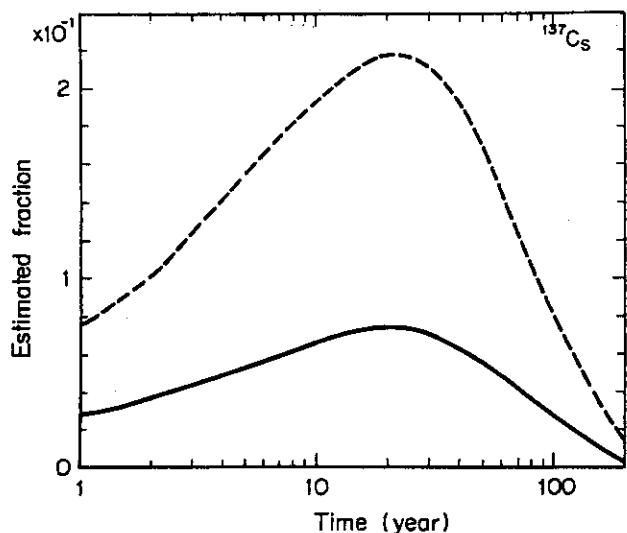


Fig. 4.13 Estimated fraction of  $^{137}\text{Cs}$  leached out of full size solidified waste; (—)  $F_\ell = 1.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{day}$ ,  $\alpha_2 = 3.6 \times 10^{-3}$  for evaporator concentrate from BWR solidified with slag cement, and (---)  $F_\ell = 1.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{day}$ ,  $\alpha_2 = 8.8 \times 10^{-3}$  for evaporator concentrate from PWR solidified with Portland cement;  $\lambda$ (decay constant) =  $0.0231 \text{ y}^{-1}$ .

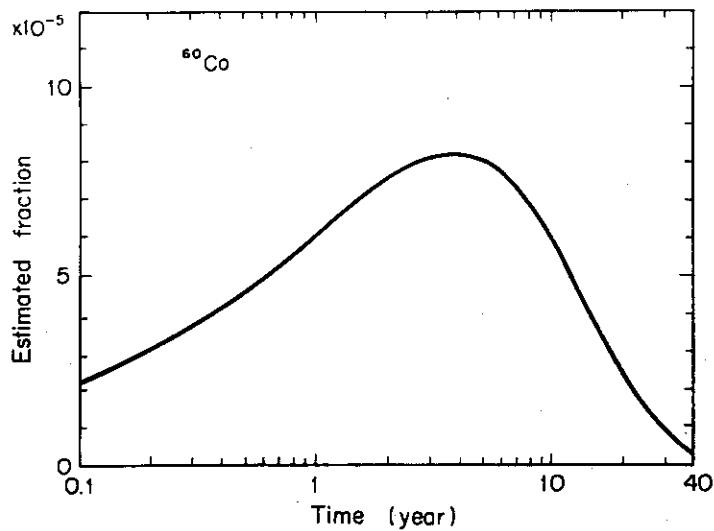


Fig. 4.14 Estimated fraction of  $^{60}\text{Co}$  leached out of full size solidified;  $F_\ell = 1.2 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{day}$ ,  $\alpha_2 = 8.1 \times 10^{-5}$  for evaporator concentrate from BWR solidified with slag cement;  $\lambda$ (decay constant) =  $0.132 \text{ y}^{-1}$ .

#### 4.4 結 言

IAEAが提案した浸出試験方法に基づき、模擬濃縮廃液小規模(4.5 cm $\phi$ ×4.4cm)セメント固化体からの<sup>137</sup>Csの常圧浸出試験の結果、次のことことが明らかになった。

- (1) 普通ポルトランドセメント固化体および高炉スラグセメント固化体とも廃液・セメント比(Wa/C)の増加にともなって浸出比も増加する。
- (2) BWR廃液の主成分である硫酸ナトリウム(Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)を含む高炉スラグセメント固化体は普通ポルトランドセメント固化体にくらべて耐浸出性が優れている。
- (3) 浸出速度の温度依存性は、活性化エネルギーとして約4 kcal/molであった。
- (4) 浸出水にイオン交換脱塩水を用いた場合、浸出比は人工海水を用いた場合にくらべて若干高くなる。
- (5) 浸出水温度が低い場合、固化体の養生期間が長いほど、耐浸出性は向上する。
- (6) ゼオライトを添加することによって、<sup>137</sup>Csの耐浸出性は著しく向上する。

実大の廃棄物固化体を水深5.000mを模擬した条件(水圧500kg/cm<sup>2</sup>、水温2°C、流速1.2cm/sec)でLWR模擬濃縮廃液のドラム缶詰めセメント均一固化体の浸出試験を行った。得られた結果は次のとおりである。

- (1) アスファルトキャッピングを施してさらにドラム缶の蓋をした固化体では、675時間の浸出試験中には放射性核種の浸出は検出されず、キャッピングを通して内部への水の浸入も認められなかった。
- (2) ドラム缶の蓋をした場合、蓋をはずした場合に比べて<sup>137</sup>Csの浸出速度は1/10以下であった。
- (3) 露出面を意図的に設けた固化体では、500kg/cm<sup>2</sup>まで40分間で昇圧した場合、クラックが生じて表面積の増大に起因する浸出量の増加が見られた。6時間で昇圧した場合および露出面のない固化体を40分間で昇圧した場合は、外観上クラック等の変化は認められなかった。
- (4) BWRの模擬廃液(硫酸ナトリウム水溶液)を高炉スラグセメントで固化したドラム缶詰め固化体のドラム缶蓋をはずし、500kg/cm<sup>2</sup>まで6時間をかけて昇圧し、浸出試験を行った。  
<sup>137</sup>Csの後期の浸出係数(見掛けの拡散係数)は $1.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{day}$ 、<sup>60</sup>Coでは $1.2 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{day}$ であった。また、PWRの模擬廃液(ホウ酸水溶液を水酸化ナトリウムでpH12以上に調整)を普通ポルトランドセメントで固化した固化体を同一条件で試験した。この場合、<sup>137</sup>Csの後期の浸出係数は $1.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{day}$ であった。
- (5) 固化体の全表面が露出しているものと仮定し、試験によって得られた浸出係数を用いて、放射性核種の減衰を考慮した水相中の浸出量の予測を行った。その結果、BWR廃液高炉スラグセメント固化体から<sup>137</sup>Csの浸出は最大でも10%を越えず、また同じ固化体からの<sup>60</sup>Coの浸出は0.01%を越えないことが推測された。これは安全側の評価であり、浸出に対する防壁(バリア)として実際にはドラム缶およびキャッピングが存在すると考えられるので、実際の浸出はこれらの値を下回ると考えられる。

以上、実際に海洋処分されるセメント固化体はドラム缶で覆われているものであり、さらにキャッピングが施されているため、放射性核種の浸出は起り難いこと、またドラム缶およびキャッピングの効果を除外したとしても、固化体が浸出に対するかなりの防壁効果を有することが海洋処分時の模擬条件下の浸出試験により明確になった。

## 参考文献

- 1) IAEA : Tech. Rep. Ser., No.82 (1968).
- 2) 江村, 松鶴, 比佐, 関 : JAERI-M 5779, (1974).
- 3) KODOYA S., et al. : Proc. 4 th Int. Conf., Geneva, UN/IAEA , Vol 11, A/CONF, 305 (1972).
- 4) 寺島 : 保健物理, 6, 123 (1971).
- 5) Kulichenko V. : IAEA, Vienna, 340/RB (1966).
- 6) Smith A. J. : AERE-M-2223, (1969).
- 7) 矢作他 : 電力中央研究所報告, 70015, (1970).
- 8) 寺島他 : 土木学会論文報告集, 201, 51 (1972).
- 9) Godbee H.W., et al : ORNL-TM-4333, (1974).
- 10) Moore J.O., et al : ORNL-4962, (1975).
- 11) 寺島 : 原子力誌, 15, 1, 52, (1973).
- 12) 関, 大内, 比佐, 江村 : JAERI-M 6382 (1976).
- 13) 関, 大内, 比佐 : JAERI-M 6364 (1976).
- 14) SEKI S., ITO A., AMANO H. : Nucl. and Chem. Waste Manag., Vol. 1, No.2, (1981).
- 15) W. チェルニン : "建設技術者のためのセメント・コンクリート化学", 技報堂 (1975).
- 16) 原子力委員会・環境安全専門部会 : "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", (1973).
- 17) 三村, 橋本, 菅野 : 原子力誌, Vol. 23, No. 2, (1981).
- 18) Colombo P. et al. : BNL-51102 (1979).

## 付記 放射性廃棄物パッケージの放射性核種浸出に対する 防壁（バリア）効果

科学技術庁、原子力安全局は「試験的海洋処分の環境安全評価に関する報告書」<sup>1)</sup>（以下「報告書」と呼ぶ）を出している。報告書では、放射性廃棄物パッケージの試験的および本格的海洋処分のそれについて、投棄の結果、一般公衆の受ける年間被曝線量を推定している。投棄する放射能量は、試験的海洋処分の場合、500Ci、本格的海洋処分の場合は、毎年 $10^5$  Ciと仮定している。この計算にあたっては、パッケージ中の放射性核種は海底着底後直ちに全量が海水中に溶出するものとする。という前提条件が用いられている。しかし、技術基準<sup>2)</sup>にしたがって作成し、非破壊検査（第3章）により所定の強度（ $150\text{kg/cm}^2$ 以上）を有すると確認した廃棄物パッケージは、深海に投棄した場合、放射性核種が直ちに放出されるような破損を生じることはない（第2章）。このため、パッケージ（セメント固化体およびドラム缶）のバリア効果を考慮に入れなければ、被曝評価は実状とかけ離れたものとならざるを得ない。

ここでは、第4章の浸出試験の結果およびドラム缶の耐久性をとり入れて評価を試みた。

### 付記1. 評価にあたって設定する条件

- 1) 着底までパッケージは健全であり（第2章）、着底までの間の放射性核種の漏洩は無視しうる（第4章）。
- 2) 健全な状態で海底に着底したパッケージは、ドラム缶が腐食してその健全性を失うまで放射性核種の漏洩はないものとする。

ドラム缶の腐食試験は現在進行中である。このため明確な結論は現段階で得られないのでドラム缶の健全性保持期間を廃棄後、①5年、②10年、③15年について考えた。健全性が損われた後は、ドラム缶の放射性核種浸出のバリア効果は全くないものとする。ただし、これと対比するため、④着底後ドラム缶がバリア効果を全く有しない裸の固化体の場合についても考察する。

なお、ドラム缶蓋とセメント固化体との間にある間隙をキャッピングしたパッケージからの漏洩は、主要な放射性核種のうち最も浸出しやすい<sup>3)</sup> $^{137}\text{Cs}$ であっても無視しうる（第4章）。

3) セメント固化体のバリア効果は浸出試験によって得られた結果を用いる。浸出性はIAEAの提案<sup>3)</sup>にしたがって拡散係数（見掛けの拡散係数なので以下浸出係数と呼ぶ）で示す。放射性核種の浸出性を浸出しやすいものから順に4つに分けた。各放射性核種の浸出係数を付記Table 1に示す。

減衰を考慮した積算浸出量は(1)式によって近似的に与えられる。

$$q = 2Q \left(\frac{S}{V}\right) \sqrt{\frac{Ft}{\pi}} \cdot e^{-\lambda t} \quad (1)$$

ここで、 S : 固化体の露出面積

V : 固化体の体積

F : 浸出係数

Q : 浸出開始時の固化体含有放射能

q : 時間 t までの積算浸出放射能

\lambda : 壊変定数

付記 Table 1 放射性核種の浸出係数

種類	放射性核種	浸出係数 ( $\text{cm}^2/\text{year}$ )
I	${}^3\text{H}$	1.1 <sup>4)</sup>
II	${}^{137}\text{Cs}$	$5.5 \times 10^{-2}$
III	${}^{90}\text{Sr}$	$9.1 \times 10^{-5}$ <sup>3)</sup>
IV	${}^{54}\text{Mn}$ , ${}^{226}\text{Ra}$ , ${}^{239}\text{Pu}$ , ${}^{238}\text{U}$ ${}^{60}\text{Co}$ , $\alpha$ ${}^{106}\text{Ru}$ ${}^{144}\text{Ce}$	$4.4 \times 10^{-7}$

## 付記 2. 環境安全評価方法

着底瞬時放出を仮定した環境安全評価では、核種別の線量寄与（一般成人の場合）が「報告書」にまとめられている（ここでは付記 Table 3 に示した）。この値は深さ 1,000m における各放射性核種の濃度を用いて求めたものである。ここでは「報告書」の値を使用し、付記 1 に述べた条件を入れて計算を行う。計算方法の根拠は次に示すが、結論として「報告書」第 8-4 表の線量に  $(\frac{S}{V} \sqrt{\frac{E}{\lambda}} e^{-\lambda t_2})$  を乗ずれば求める線量が得られる。ここでは  $t_2$  はドラム缶の健全性保持時間である。

## 付記 3. 計算方法

## 1) 試験的海洋処分の場合（投棄量 500Ci）

試験的投棄では「報告書」は 1 回投棄するものとし、投棄した固化体から浸出する放射性核種が水深 1,000m に達した時点およびそこにおける最大濃度を使って評価を行っている。ここでは線量予託的考え方から次式のような積分濃度を用いて、着底瞬時放出の場合および放射能拡散に対するセメント固化体またはドラム缶のバリア効果を考慮した場合、それぞれの積分濃度  $\bar{C}_1$ ,  $\bar{C}_2$  は(2)式および(3)式で表わされる。

$$\bar{C}_1 = \int_0^\infty Q e^{-\lambda t} E(t) dt \quad (2)$$

$$\bar{C}_2 = \int_0^\infty \int_0^t q' e^{-\lambda t} E(t - t_1) dt_1 dt \quad (3)$$

ここで、 $Q$ ：投棄されたパッケージが放射能を放出し始めた時のパッケージに含有される放射能。

$q'$ ： $t_1$ における浸出速度で実験により求められる。

$$q' = \frac{dq}{dt_1}, \quad q = 2Q \left(\frac{S}{V}\right) \sqrt{\frac{F t_1}{\pi}}$$

$$q' = Q \left(\frac{S}{V}\right) \sqrt{\frac{F}{\pi}} \cdot \frac{1}{\sqrt{t_1}}$$

記号は本文(1)式参照。

$t_1$ ：固化体中を放射能が拡散し、水中に移行する時間

$$E(t) = \frac{Q \cdot e^{-\lambda t}}{8(\pi t)^{3/2} (D_x \cdot D_y \cdot D_z)^{1/2}} \exp \left\{ -\left( \frac{x^2}{4D_x t} + \frac{y^2}{4D_y t} + \frac{z^2}{4D_z t} \right) \right\}$$

$D_x, D_y, D_z$  は放射性核種の  $x, y, z$  方向の拡散係数（「報告書」の(7-1)式）

(3)式は、 $\tau = t - t_1$  とおくと

$$\begin{aligned} \bar{C}_2 &= \int_0^\infty \int_0^\infty q' e^{-\lambda\tau - \lambda t_1} E(\tau) d\tau dt_1 \\ &= \int_0^\infty e^{-\lambda\tau} E(\tau) \left[ \int_0^\infty q' e^{-\lambda t_1} dt_1 \right] d\tau \\ &= \int_0^\infty e^{-\lambda\tau} E(\tau) \cdot Q \frac{S}{V} \sqrt{\frac{F}{\lambda}} d\tau \end{aligned}$$

$\int_0^\infty Q e^{-\lambda t} E(\tau) d\tau = \bar{C}_1$  であるから

$$\bar{C}_2 = \bar{C}_1 \left(\frac{S}{V}\right) \sqrt{\frac{F}{\lambda}}$$

## 2) 本格的海洋処分の場合（投棄量 $10^5$ Ci/年）

本格的投棄では毎年一定量の放射性廃棄物の投棄が継続し、海水中の放射能濃度が平衡値に達する。着底瞬時放出の場合と固化体またはドラム缶の放射能拡散に対するバリア効果を考慮した場合、それぞれの平衡濃度  $C_1$  および  $C_2$  は(4), (5)式で表わされる。

$$C_1 = \lim_{t \rightarrow \infty} \int_0^t Q e^{-\lambda t} E(t) dt \quad (4)$$

$$C_2 = \lim_{t \rightarrow \infty} \int_0^{t_0} \int_{t_0}^t Q F(t_1 - t_0) E(t - t_1) e^{-\lambda(t-t_1)} dt_1 dt_0 \quad (5)$$

ここである時刻  $t_0$  に投棄されたパッケージから時刻  $t_1$  に放出された放射能の分率を  $F(t_1 - t_0)$  とする。

$$F(t) = q'e^{-\lambda t} = Q \left( \frac{S}{V} \right) \sqrt{\frac{F}{\pi}} \cdot \frac{e^{-\lambda t}}{\sqrt{t}}$$

積分を行うため変数変換と積分順序交換を行うと結局

$$\begin{aligned} C_2 &= \lim_{t \rightarrow \infty} \int_0^t \left[ \int_0^{t-\tau'} Q F(\tau) d\tau \right] E(\tau') e^{-\lambda \tau'} d\tau' \\ &= \int_0^\infty \int_0^\infty Q F(\tau) d\tau E(\tau') e^{-\lambda \tau'} d\tau' \\ &= \frac{S}{V} \sqrt{\frac{F}{\lambda}} \int_0^\infty Q E(\tau') e^{-\lambda \tau'} d\tau' = \frac{S}{V} \sqrt{\frac{F}{\lambda}} C_1 \end{aligned}$$

ただし、 $\tau = t_1 - t_0$ ,  $\tau' = t - t_1$  である。

#### 付記 4. 計算結果

付記 2 で述べた方法によって求められた被曝線量を付記 1 で述べた条件別に付記 Table 2 に示す。核種別の表は付記 Table 3 に示す。本稿の計算で得られた線量は、いずれも「報告書」の線量に比べ  $10^{-1} \sim 10^{-2}$  倍である。

付記 Table 2 一般公衆人の被曝線量

設 定 条 件	試 驗 的 投 棄		本 格 的 投 棄
	全 身 ( mrem/y )	骨 ( mrem/y )	
(i) 着底瞬時放出(ドラム缶, 固化体とも バリア効果なし)	$1.3 \times 10^{-6}$	$8.0 \times 10^{-6}$	$4.6 \times 10^{-3}$
(ii) 固化体がバリアの場合	$1.0 \times 10^{-7}$	$2.1 \times 10^{-7}$	$4.9 \times 10^{-4}$
(ii)÷(i)	$7.7 \times 10^{-2}$	$2.6 \times 10^{-2}$	$1.1 \times 10^{-1}$
(iii) ドラム缶(5年間健全)と固化体がバリアの場合	$9.2 \times 10^{-8}$	$1.9 \times 10^{-7}$	$4.4 \times 10^{-4}$
(iii)÷(i)	$7.1 \times 10^{-2}$	$2.4 \times 10^{-2}$	$9.6 \times 10^{-2}$
(iv) ドラム缶(10年間健全)と固化体がバリアの場合	$8.4 \times 10^{-8}$	$1.7 \times 10^{-7}$	$4.0 \times 10^{-4}$
(iv)÷(i)	$6.5 \times 10^{-2}$	$2.1 \times 10^{-2}$	$8.7 \times 10^{-2}$
(v) ドラム缶(15年間健全)と固化体がバリアの場合	$7.6 \times 10^{-8}$	$1.4 \times 10^{-7}$	$3.7 \times 10^{-4}$
(v)÷(i)	$5.8 \times 10^{-2}$	$1.8 \times 10^{-2}$	$8.0 \times 10^{-2}$
			$2.7 \times 10^{-2}$

付記Table 3 各放射性核種の線量率と比較：単位 mrem/y  
(一般成人の場合)  
(A) 試験的投棄の場合

放射性核種	着底瞬時放出		固化体がハビリアの場合			ドラム缶(5年間健全)と固化体ハビリア		
	全 身	骨	$S\sqrt{N} \cdot \sqrt{\frac{F}{\lambda}}$	全 身	骨	$(S\sqrt{N}) \sqrt{\frac{F}{\lambda}} \cdot e^{-\lambda t_2}$	全 身	骨
<sup>54</sup> Mn	$4.4 \times 10^{-9}$	0	$7.6 \times 10^{-5}$	$3.3 \times 10^{-13}$	0	$2.3 \times 10^{-5}$	$1.0 \times 10^{-14}$	0
<sup>144</sup> Ce	$5.3 \times 10^{-12}$	$8.4 \times 10^{-11}$	$7.6 \times 10^{-5}$	$4.0 \times 10^{-16}$	$6.4 \times 10^{-15}$	$2.3 \times 10^{-6}$	$1.2 \times 10^{-17}$	$1.9 \times 10^{-16}$
<sup>60</sup> Co	$1.7 \times 10^{-7}$	0	$1.4 \times 10^{-4}$	$2.4 \times 10^{-11}$	0	$5.2 \times 10^{-5}$	$8.9 \times 10^{-12}$	0
<sup>90</sup> Sr	$5.0 \times 10^{-7}$	$7.0 \times 10^{-6}$	$6.5 \times 10^{-3}$	$3.2 \times 10^{-9}$	$4.5 \times 10^{-8}$	$5.9 \times 10^{-3}$	$2.9 \times 10^{-9}$	$4.1 \times 10^{-8}$
<sup>137</sup> Cs	$6.2 \times 10^{-7}$	$9.9 \times 10^{-7}$	0.16	$9.9 \times 10^{-8}$	$1.6 \times 10^{-7}$	0.15	$8.9 \times 10^{-8}$	$1.5 \times 10^{-7}$
<sup>226</sup> Ra	$3.3 \times 10^{-9}$	$2.8 \times 10^{-8}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$4.0 \times 10^{-11}$	$3.4 \times 10^{-10}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$4.0 \times 10^{-11}$	$3.4 \times 10^{-10}$
<sup>239</sup> Pu	$1.4 \times 10^{-10}$	$5.1 \times 10^{-9}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-12}$	$6.1 \times 10^{-11}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-12}$	$6.1 \times 10^{-11}$
<sup>238</sup> U	$9.7 \times 10^{-12}$	$1.4 \times 10^{-10}$	5.0	$4.9 \times 10^{-11}$	$7.0 \times 10^{-10}$	5.0	$4.9 \times 10^{-11}$	$7.0 \times 10^{-10}$
計	$1.3 \times 10^{-6}$	$8.0 \times 10^{-6}$	—	$1.0 \times 10^{-7}$	$2.1 \times 10^{-7}$	—	$9.2 \times 10^{-7}$	$1.9 \times 10^{-7}$

ラム缶(10年間健全)と固化体バリア

ラム缶(15年間健全)と固化体バリア

放射性核種	$(S/N) \sqrt{\frac{F}{\lambda} \cdot e^{-\lambda t_2}}$	全 身	骨	$(S/N) \sqrt{\frac{F}{\lambda} \cdot e^{-\lambda t_2}}$	全 身	骨
<sup>54</sup> Mn	$6.9 \times 10^{-8}$	$3.0 \times 10^{-16}$	0	$2.1 \times 10^{-9}$	$9.2 \times 10^{-18}$	0
<sup>144</sup> Ce	$6.9 \times 10^{-8}$	$3.7 \times 10^{-19}$	$5.8 \times 10^{-18}$	$2.1 \times 10^{-9}$	$1.1 \times 10^{-20}$	$1.8 \times 10^{-19}$
<sup>60</sup> Co	$1.9 \times 10^{-5}$	$3.2 \times 10^{-12}$	0	$7.0 \times 10^{-6}$	$1.2 \times 10^{-12}$	0
<sup>90</sup> Sr	$5.3 \times 10^{-3}$	$2.7 \times 10^{-9}$	$3.7 \times 10^{-8}$	$4.8 \times 10^{-3}$	$2.4 \times 10^{-9}$	$3.4 \times 10^{-8}$
<sup>137</sup> Cs	0.13	$8.1 \times 10^{-8}$	$1.3 \times 10^{-7}$	0.12	$7.4 \times 10^{-8}$	$1.2 \times 10^{-7}$
<sup>226</sup> Ra	$1.2 \times 10^{-2}$	$4.0 \times 10^{-11}$	$3.4 \times 10^{-10}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$4.0 \times 10^{-11}$	$3.4 \times 10^{-10}$
<sup>239</sup> Pu	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-12}$	$6.1 \times 10^{-11}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-12}$	$6.1 \times 10^{-11}$
<sup>238</sup> U	5.0	$4.9 \times 10^{-11}$	$7.0 \times 10^{-10}$	—	$4.9 \times 10^{-11}$	$7.0 \times 10^{-10}$
†	—	$8.4 \times 10^{-8}$	$1.7 \times 10^{-7}$	—	$7.6 \times 10^{-8}$	$1.4 \times 10^{-7}$

(B) 本格的投棄の場合  
付記 Table 3 各放射性核種の線量率と比較：単位 mrem / Y  
(一般成人の場合)

放射性核種	着底瞬時放出			固化体がバリアの場合			ドラム缶(5年間健全)と固化体がバリア				
	全	身	骨	$S/V \cdot \sqrt{\frac{F}{\lambda}}$	全	身	骨	$(S/V) \sqrt{\frac{F}{\lambda}} \cdot e^{-\lambda t_2}$	全	身	骨
<sup>54</sup> Mn	$7.3 \times 10^{-6}$	0	$7.6 \times 10^{-10}$	$5.6 \times 10^{-10}$	0			$2.3 \times 10^{-6}$	$1.7 \times 10^{-11}$		0
<sup>106</sup> Re	$3.3 \times 10^{-10}$	$2.3 \times 10^{-9}$	$7.6 \times 10^{-5}$	$2.5 \times 10^{-14}$	$1.8 \times 10^{-13}$			$2.3 \times 10^{-6}$	$7.6 \times 10^{-16}$		$5.3 \times 10^{-15}$
<sup>144</sup> Ce	$3.0 \times 10^{-11}$	$4.8 \times 10^{-10}$	$7.6 \times 10^{-5}$	$2.3 \times 10^{-15}$	$3.7 \times 10^{-14}$			$2.3 \times 10^{-6}$	$6.9 \times 10^{-17}$		$1.1 \times 10^{-15}$
<sup>60</sup> Co	$1.6 \times 10^{-4}$	0	$1.4 \times 10^{-4}$	$2.3 \times 10^{-8}$	0			$5.2 \times 10^{-5}$	$8.3 \times 10^{-9}$		0
<sup>3</sup> H	$9.8 \times 10^{-11}$	0	0.41	$4.0 \times 10^{-11}$	0			0.30	$3.0 \times 10^{-11}$		0
<sup>90</sup> Sr	$1.3 \times 10^{-3}$	$1.9 \times 10^{-2}$	$6.5 \times 10^{-3}$	$8.4 \times 10^{-6}$	$1.2 \times 10^{-4}$			$5.9 \times 10^{-3}$	$7.7 \times 10^{-6}$		$1.6 \times 10^{-4}$
<sup>137</sup> Cs	$3.0 \times 10^{-3}$	$4.8 \times 10^{-3}$	0.16	$4.8 \times 10^{-4}$	$7.6 \times 10^{-4}$			0.14	$4.3 \times 10^{-4}$		$6.9 \times 10^{-4}$
<sup>226</sup> Ra	$1.3 \times 10^{-4}$	$1.1 \times 10^{-3}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.6 \times 10^{-6}$	$1.3 \times 10^{-5}$			$1.2 \times 10^{-2}$	$1.6 \times 10^{-6}$		$1.3 \times 10^{-5}$
<sup>239</sup> Pu	$5.7 \times 10^{-6}$	$2.0 \times 10^{-4}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$6.9 \times 10^{-8}$	$2.4 \times 10^{-6}$			$1.2 \times 10^{-2}$	$6.9 \times 10^{-8}$		$2.4 \times 10^{-6}$
計	$4.6 \times 10^{-3}$	$2.5 \times 10^{-2}$	—	$4.9 \times 10^{-4}$	$9.0 \times 10^{-4}$			—	$4.4 \times 10^{-4}$		$8.1 \times 10^{-4}$

放射性核種	ドラム缶 (10年間健全) と 固化体がノミアラ			ドラム缶 (15年間健全) と 固化体がノミアラ		
	$(S/N)\sqrt{\frac{F}{\lambda} \cdot e^{-\lambda t_2}}$	全	身	$(S/N)\sqrt{\frac{F}{\lambda} \cdot e^{-\lambda t_2}}$	全	身
<sup>54</sup> Mn	$6.9 \times 10^{-8}$	$5.1 \times 10^{-13}$	0	$2.1 \times 10^{-9}$	$1.5 \times 10^{-14}$	0
<sup>106</sup> Ru	$6.9 \times 10^{-8}$	$2.3 \times 10^{-17}$	$1.6 \times 10^{-16}$	$2.1 \times 10^{-9}$	$6.9 \times 10^{-19}$	$4.8 \times 10^{-18}$
<sup>144</sup> Ce	$6.9 \times 10^{-8}$	$2.1 \times 10^{-18}$	$3.3 \times 10^{-17}$	$2.1 \times 10^{-9}$	$6.3 \times 10^{-20}$	$1.0 \times 10^{-18}$
<sup>60</sup> Co	$1.9 \times 10^{-5}$	$3.0 \times 10^{-9}$	0	$7.0 \times 10^{-6}$	$1.1 \times 10^{-9}$	0
<sup>3</sup> H	0.23	$2.3 \times 10^{-11}$	0	0.17	$1.7 \times 10^{-11}$	0
<sup>90</sup> Sr	$5.3 \times 10^{-3}$	$6.9 \times 10^{-6}$	$1.0 \times 10^{-4}$	$4.8 \times 10^{-3}$	$6.3 \times 10^{-6}$	$9.1 \times 10^{-5}$
<sup>137</sup> Cs	0.13	$3.9 \times 10^{-4}$	$6.2 \times 10^{-4}$	0.12	$3.6 \times 10^{-4}$	$5.8 \times 10^{-4}$
<sup>226</sup> Ra	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.6 \times 10^{-6}$	$1.3 \times 10^{-5}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.6 \times 10^{-6}$	$1.3 \times 10^{-5}$
<sup>239</sup> Pu	$1.2 \times 10^{-2}$	$6.9 \times 10^{-8}$	$2.4 \times 10^{-6}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$6.9 \times 10^{-8}$	$2.4 \times 10^{-6}$
†	—	$4.0 \times 10^{-4}$	$7.3 \times 10^{-4}$	—	$3.7 \times 10^{-4}$	$6.8 \times 10^{-4}$

## 付記5. 考 察

- 1) 全身被曝においては固化体をバリアと考えない場合に比べ、バリアとして計算した場合には<sup>90</sup>Sr の寄与割合が低下し、96%以上が<sup>137</sup>Cs の寄与割合となる（付記 Table 3 参照）。これは<sup>137</sup>Cs に比べ<sup>60</sup>Co の浸出係数が小さいことに起因する。
- 2) 骨の被曝においては、固化体をバリアと考えない場合は<sup>90</sup>Sr の寄与割合が一番大きい。しかし、固化体をバリアとして計算した場合は、<sup>137</sup>Cs の寄与割合が大きくなる。その理由は 1) と同様である。
- 3) <sup>60</sup>Co の寄与割合は小さい。特に固化体ならびにドラム缶をバリアとして計算した場合には著しく小さくなる（骨の被曝はいずれの場合も 0）。これは<sup>137</sup>Cs あるいは<sup>90</sup>Sr に比べ半減期が短かく、浸出性も低いためである。
- 4) セメント固化体では比較的<sup>137</sup>Cs の浸出性は高い。しかし、<sup>137</sup>Cs は核分裂生成物 (F.P.) である。したがって燃料被覆管が改良（現在では、燃料被覆管は相当改善され、この当時のデータに比べ<sup>137</sup>Cs の軽水炉からの排出量は著しく少なくなっている）されれば、<sup>137</sup>Cs の被曝に対する寄与割合は小さくなる。
- 5) イオン交換容量が大きく、<sup>137</sup>Cs に対して選択的吸着性の高いゼオライトを添加することによって、セメント固化体からの<sup>137</sup>Cs の浸出を低く押さええるようにすれば、さらに被曝の低減に有効である。

## 参考文献

- 1) 科学技術庁・原子力安全局：“試験的海洋処分の環境安全評価に関する報告書”，(1976).
- 2) 原子力委員会・放射性廃棄物対策技術専門部会：“放射性廃棄物の廃棄に関する技術的基準”，(1978).
- 3) IAEA : Tech . Rep . Ser ., No.82 (1968).
- 4) 松鶴, 伊藤 : JAERI-M 7936 (1978).
- 5) Matsuzuru M., Ito A., : Anh . Nucl . Energy , 4, 465 (1977).

## 5. 総 括

本研究は近い将来実施が予定される低レベル放射性廃棄物の海洋処分に備え、処分体の中心となるセメント均一固化体について、深海中の健全性、非破壊検査法の開発および放射性核種の浸出性の面から安全評価法の開発を行ったものである。

第2章では実大(200ℓ)の廃棄物パッケージが収容でき、かつ深海5,000mと同等の条件(水圧500kg/cm<sup>2</sup>、水温2°C、流速1~2cm/sec)を再現し、同条件下でパッケージの健全性試験ならびに放射性核種の浸出試験を行うことのできる実大固化高圧RI浸出試験装置を開発した。

同装置を使って、深海5,000mの条件においていた実大セメント均一固化体の深海中健全性模擬試験を行った。その結果、セメントパッケージの海中落下速度に相当する速度で500kg/cm<sup>2</sup>まで昇圧した場合、ドラム缶容器付きのセメント固化体では、クラックなどの発生による破壊は認められない。ドラム缶容器の一部または全部を外すした露出面のある固化体では、固化体内部への水の浸入により露出面およびその内部にクラックの発生が認められる。ドラム缶容器を具備しない固化体でも、耐水性の被膜で被覆したものには、クラック発生等の変化は認められない。また、昇圧速度を遅くし、500kg/cm<sup>2</sup>まで6時間とした場合には、ドラム缶で覆われていない露出面のある固化体でも、クラック等の変化は認められない、などを明らかにした。以上の結果からセメント固化体のクラックの原因は、固化体への高圧水の急激な侵入に基づくものであるとの結論を得た。

廃棄物パッケージが海洋投棄時の水圧、海面および海底の衝突に対して、放射性核種が漏洩するような破損を生じないためには、セメント固化体の強度が一軸圧縮強度で150kg/cm<sup>2</sup>以上なければならない。このため小規模(10cmφ×20cm)固化体の圧縮強度試験を行うことにより、原子力発電所から発生する放射性廃液を含むセメント均一固化体は、規定以上の一軸圧縮強度を有していることを確認した。

深海中健全性模擬試験の結果を確かめるため、同様パッケージを用い、水深5,000cmまでの吊下ろし一回収の海洋健全性実証試験を行った。その結果、ドラム缶詰めセメント均一固化体の吊下ろし一回収試験は、深海中の連続写真撮影を除き、所期の目的を達成した。また、回収パッケージのドラム缶の外面およびドラム缶を取り除いた固化体の外面の目視検査の結果、安全上問題となる変化はないと結論した。

以上の結果から、ドラム缶詰めセメント均一固化体を約5,000mの深海に投棄した場合、規定の一軸圧縮強度を有する固化体の健全性は、容器が完全であれば着底まで保持しうる。一方、容器に破損がある等の原因で固化体に露出面が存在する場合は、固化体にクラックが発生し、その結果、固化体からの放射性核種浸出の増加をもたらす。したがって容器は安全上、重要な役割を果していると結論しうる。また、容器は水の急激な浸入を緩和できるものであればよく、完全に防止するものである必要はない。水の急激な浸入を緩和するために、防水塗膜を用いてもクラックの発生を防止することができた。

第3章では外部が異質のドラム管で覆われていて、ドラム缶外側から内容物であるセメント均一固化体の強度を測定するための非破壊検査法について研究した。非破壊検査法としては、反発

硬度法および超音波試験法を試みた。その結果、放射性廃液実大セメント均一固化体の品質検査の一環として、両方法とも適用できることを明らかにした。

ドラム缶を外はずした裸の固化体およびドラム缶付き固化体の反発硬度と同一組成固化体の一軸圧縮強度との間には直線関係にあり、海洋処分用セメント固化体に必要な一軸圧縮強度  $150\text{kg/cm}^2$  以上に対応する反発硬度は、38 以上であることを認めた。一方、上記固化体について超音波伝播速度と一軸圧縮強度との間にはやはり直線関係があり、一軸圧縮強度  $150\text{kg/cm}^2$  以上に対応する超音波伝播速度は、 $3,200\text{m/sec}$  以上であった。

また、一軸圧縮強度について反発硬度法と超音波試験法の比較を行い、確実性の観点から両方法を併用することを提案した。

さらに、超音波試験法によりドラム缶詰めセメント固化体内部に存在する欠陥の探査についても検討を行い、ドラム缶の長手方向における欠陥の存在およびその位置を知ることができた。

以上述べた 2 つの非破壊検査方法は、現在各原子力発電所において採用されようとしている段階にある。

前章までは、海洋処分用放射性廃棄物パッケージの深海中健全性について検討した。これらの試験により健全性を保証した廃棄物パッケージが海洋処分された場合、放射性核種の漏洩があるとすれば、それは着底後、パッケージからの浸出のみによって生ずる。このため、パッケージ自体に浸出を抑制する効果がどれくらいであるか、明確にする必要がある。

第 4 章では先ず、IAEA が提案した浸出試験方法に基づき、模擬濃縮廃液小規模 ( $4.5\text{cm}\phi \times 4.4\text{cm}$ ) セメント固化体からの  $^{137}\text{Cs}$  の常圧における浸出性を研究した。その結果、普通ポルトランドセメント固化体および高炉スラグセメント固化体とも廃液・セメント比 (W<sub>a</sub>/C) の増加とともに浸出比も増加すること、BWR 廃液の主成分である硫酸ナトリウムを含む高炉スラグセメント固化体は、普通ポルトランドセメント固化体にくらべ耐浸出性が優れていること、などを明らかにした。また、固化体を浸漬した場合の浸出液の温度および浸出液の種類の相違によつて放射性核種の浸出性はどのように影響されるかをしらべた。その結果、浸出速度の温度依存性は活性化エネルギーとして約  $4\text{ kcal/mol}$  であった。浸出水にイオン交換脱塩水を用いた場合、浸出比は人工海水を用いた場合に比べ、わずかに高くなることを認めた。

さらに浸出性の改善目的から浸出に対する骨材の効果もしらべた。その結果、ゼオライトを添加することによって、 $^{137}\text{Cs}$  の耐浸出性を著しく向上することができた。

以上小規模固化体の放射性核種の浸出性について述べた。しかしこれらの浸出試験結果が実物大投棄体あるいは実際の海洋処分条件においても適合しうるものか否か実験的に確認する必要がある。このため LWR 模擬濃縮廃液を含むドラム缶詰めセメント均一固化体を水深  $5,000\text{m}$  の模擬条件に置き、同固化体からの放射性核種の浸出性について研究した。その結果、アスファルトキャッピングを施し、さらにドラム缶の蓋をした固化体では、675 時間にわたる浸出試験で、浸出放射能は検出されず、キャッピングを通して内部への水の浸入も認められなかった。したがつて浸出に対して、キャッピングが非常に有効な手段であることを明らかにした。また、ドラム缶の蓋をした場合、蓋を外はずした場合に比べ  $^{137}\text{Cs}$  の浸出速度は  $1/10$  以下であった。

一方、露出面を意図的に設けた固化体では、 $500\text{kg/cm}^2$  まで 40 分間で昇圧した場合、クラックが生じ、表面積の増大に起因する浸出量の増加が見られた。

これらの研究とならんで、安全上問題となる<sup>60</sup>Coの浸出挙動を<sup>137</sup>Csのそれと比較した。

このためBWR模擬廃液（硫酸ナトリウム水溶液）を高炉スラグセメントで固化したドラム缶詰め固化体のドラム缶蓋をはずし、500kg/cm<sup>2</sup>まで6時間をかけて浸出試験を行った。この結果、<sup>137</sup>Csの後期の浸出係数は $1.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{day}$ であり、<sup>60</sup>Coでは $1.2 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{day}$ であって、<sup>137</sup>Csの1/10,000以下であった。その差異は溶解度の差によるものと考えられる。すなわち、セメント固化体中ではアルカリ性が強いため、<sup>60</sup>Coは水酸化物として存在し、その水に対する溶解性は低い。したがって水に溶解してイオン化する<sup>137</sup>Csにくらべ<sup>60</sup>Coの浸出速度は、はるかに低いことを確認した。また、PWRの模擬廃液（ホウ酸水溶液を水酸化ナトリウムでpH12以上に調整したもの）を普通ポルトランドセメントで固化した固化体を同一条件で試験した場合、<sup>137</sup>Csの後期の浸出係数は $1.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{day}$ であった。

放射性廃棄物パッケージを海洋処分した場合、固化体から放射性核種がどの程度水相中へ放出されるか、長期にわたって予測することはきわめて重要な事項である。このため固化体の全表面が露出しているものと仮定し、前述の浸出係数を用いて、放射性核種の減衰を考慮した水相中の浸出量の予測を行った。その結果、BWR廃液高炉スラグセメント固化体からの<sup>137</sup>Csの浸出は、最大でも初期含有量の10%を越えず、また同固化体からの<sup>60</sup>Coの浸出は0.01%を越えないことが推測された。これは安全側の評価であり、実際には浸出に対する防壁（バリア）としてドラム缶およびキャビングが存在するので、実際の浸出はこれらの値をさらに下回るものと考えられる。

以上、実際に海洋処分に供されるセメント固化体はドラム缶で覆われているものであり、その上キャビングが施されているため、放射性核種の浸出は起り難いこと、またドラム缶およびキャビングの効果を除外したとしても、固化体自体が浸出に対するかなりのバリア効果を有していることなどを明確にした。

放射性廃棄物の海洋処分の安全性は、処分によって公衆が被曝する線量でもって評価される。

海洋中に放出される放射性核種からうける放射線量は、従来、放射性廃棄物固化体および容器が長期にわたり、バリアとしての信頼性を有しないという仮定のもとに計算してきた。実際、海洋処分を実施した場合の国の被曝評価でも放射性核種は、廃棄物パッケージが海底に着底と同時に全量放出されるという仮定のもとに計算を行っている。しかし、これらは安全側の評価ではあるが、実状とは非常にかけ離れたものである。すなわち、本研究により、パッケージは着底後も長期間、健全性を保持しうることが明らかにされている。このため、付記ではセメント固化体のみのバリア効果およびドラム缶が5年間、10年間、15年間の健全性を保持した場合の3通りのバリア効果を考慮に入れた一般公衆がうける被曝量を求め、従来（瞬間放出）の方法で求めた被曝線量と比較した。その結果、固化体のみのバリア効果を考慮した場合、その値は従来の方法で求めた被曝線量に比べ1/10～1/100となり、海洋処分の安全性がより安全側にあることを確認した。その上、ドラム缶のバリア効果を加味すれば、この値は、さらに安全側の評価になることは明らかである。

以上述べた如く、本研究は海洋処分用放射性廃棄物セメント均一固化体の特質を明らかにし、取得したデータに基づき、同固化体の質的向上をはかり、さらに同固化体のもつバリア効果を考慮に入れ、放射性核種の最終的な影響である公衆がうける被曝線量の評価までを言及した。これ

らの研究の成果は近い将来実施が予定される試験的海洋処分およびそれに続く本格的海洋処分の事前安全評価ならびに廃棄物パッケージの基準化に十分に寄与するものと期待される。

## 謝 辞

本研究の実施にあたって名古屋大学天野 惇教授（元日本原子力研究所安全性試験センター長 兼環境安全研究部長）には、終始懇切なる御指導と御鞭撻を賜わり、日本原子力研究所環境安全研究部今井和彦部長ならびに同部次長荒木邦夫博士には、深い关心と御理解をいただいた。本研究の遂行に際しては、日本原子力研究所環境安全研究部主任研究員伊藤彰彦博士および同部低レベル廃棄物処理研究室長和達嘉樹博士の懇切なる御指導をいただいた。また、本研究の一部内容について日本原子力研究所保健物理部放射性汚染処理第1課江村 悟課長、環境安全研究部低レベル廃棄物処理研究室松鶴秀夫研究員の御助言ないし資料の提供を受けた。さらに本研究の一部実験について日本原子力研究所保健物理部放射性汚染処理第2課丸山 亨、同部放射性汚染処理第1課森下 悟の両氏の協力をいただき、特に本研究の実験全般にわたって日本原子力研究所環境安全研究部低レベル廃棄物処理研究室大内康喜、岡川誠吾、比佐 勇（現在、大洗研究所材料試験炉部照射第3課）の各氏に負うところ大である。

本論文をまとめるにあたり東北大学菅野卓治教授の終始懇切なる御指導、御教示を賜わった。また、東北大学瀬戸邦夫教授、鈴木 進教授、井上 泰教授および三浦 尚教授には懇切なる御助言をいただいた。これら諸先生の御厚意に対し謹んで感謝の意を表わす。