

電力技術整備(株) 環境技術部 正会員 野村哲郎
 財電力中央研究所土木技術研究所 正会員 斎木泰郎

1. まえがき

原子力施設より発生する低レベル放射性廃棄物の多くは、セメント固化法により処理されているが、近年ではセメント固化法に比べて透水性、耐浸出性に関して利点があるとされているビチューメン固化法も各国で検討されている。ビチューメン固化体に関する研究は、物性ならびに製造方法を中心にして各所で行なわれており、均質な固化体の製造および貯蔵方式の検討に反映されている。さらに、ビチューメン固化体では、一般物性の他に水に浸漬した場合の膨潤性についても指摘されているが、最近の研究から膨潤量およびその防止法については、ある程度の目途が得られている。しかしながら、膨潤特性の検討については、まだ緒についたばかりであり、系統的な研究は全く行なわれていない。以上のことから、ビチューメン固化体の膨潤特性の解明を目的とし、その第一歩として以下の項目について検討を行なった。

- 1) ビチューメン固化体の一般物性(比重、含水量、針入度、軟化点、混合比)
- 2) 浸漬ビチューメン固化体の膨潤量
- 3) 浸漬ビチューメン固化体の膨潤圧試験方法および膨潤圧
- 4) 浸漬ビチューメン固化体の膨潤特性

2. 供試体

本実験に用いたビチューメンは、ストレートアスファルト40%であり、模擬廃棄物としては、20%硫酸ソーダ溶液および12%ほう酸ソーダ溶液を用いた。ビチューメン固化体の製造は、小型の2軸式エクストルダおよび遠心薄膜蒸発器を用いて、供試体の固形分混合比が、30、40、50、60 wt%となるように行なった。

3. 一般物性

比重、含水量、針入度、軟化点および混合比は、JISに示す試験方法に準じて行ない以下の結果を得た。

i) 固化体の比重は、混合比により1.23~1.63の範囲にあり、比重と混合比の相関は高いものであった(相関係数0.99)。また、構成材料の比重と比率から求めた固化体の比重とも良く一致した。ii) 含水量は、いずれの固化体も0.1 wt%以下であった。iii) 針入度は、混合比の増大とともに低下し、硫酸ソーダ固化体では16~25、ほう酸ソーダ固化体では16~26であった。iv) 軟化点は、硫酸ソーダ固化体では57~68、ほう酸ソーダ固化体では54~65であり、いずれも混合比0(砂)に比べて少し上昇した。

これらの結果から、固化体は、これまでに製造されているものとはほぼ同等の品質を有していると考えられるので、膨潤性試験の供試体を使用することとした。

4. 膨潤量

膨潤量試験は、すでにオ33回年次学術講演会で著者らが提案した方法に基づき、図1に示すように、100ml ビーカ

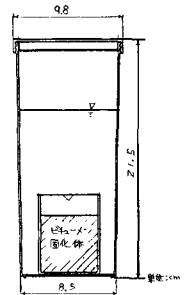


図1 膨潤量試験装置

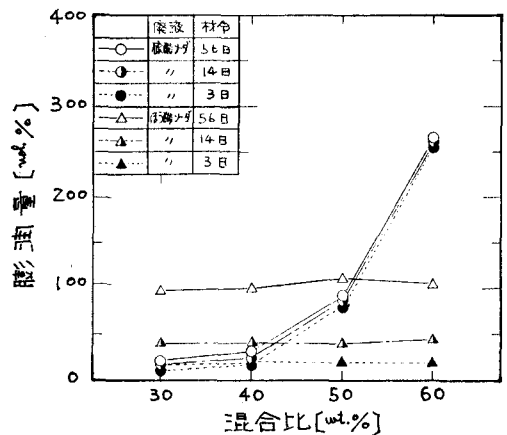


図2 混合比と膨潤量の関係

に100^{ml} 充填した固化体を500^{ml} のイオン交換水に浸漬し、その重量および体積の経時変化を、環境温度5、20、40℃において測定した。その試験結果は、

(1) 硫酸ソーダ固化体の場合(図2)は、i) 環境温度40℃においては、いずれの固化体も、ほとんど膨潤を示さなかった。ii) 混合比の増大とともに増加する傾向を示した。iii) 膨潤初期においては、40℃の場合を除いて、温度の上昇に伴い増加する傾向を示したが、浸漬4日以後では、その傾向が逆転するものもあった。

(2) ほう酸ソーダ固化体の場合(図3)は、i) 混合比の違いによる影響は小さかった。ii) 温度の上昇とともに増加する傾向を示した。

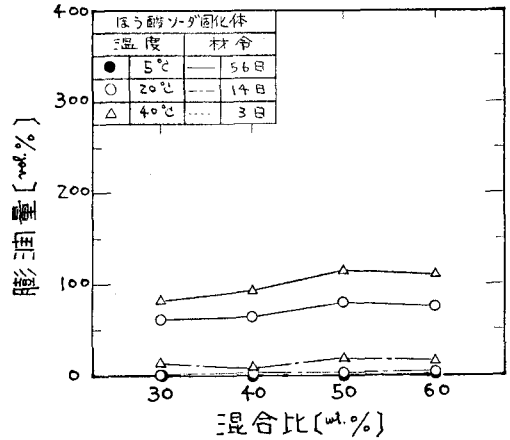


図3 混合比と膨潤量の関係

5. 膨潤圧

膨潤圧試験方法は、一般には、数種類の異なる拘束圧を与えた状態で膨潤試験を行ない、変位と拘束圧との関係から膨潤圧を推定する方法と力計等を使用して膨潤圧を直接求める方法がある。本実験では、こちらの方法を検討して後者を採用し、また力計の容量は数種のロードセルやプルベイングリングを用いて予備実験を行ない決定した。本実験装置は、図4に示すように、φ10×10^{mm} 鋼製モールドに充填した4ユーメン固化体の上面に注水する方式であり、環境温度20℃にて、その膨潤圧の経時変化を、上面に固定したプルベイングリング(容量100g)を用いて測定した。予備的試験結果より、次の傾向があることが判明した。

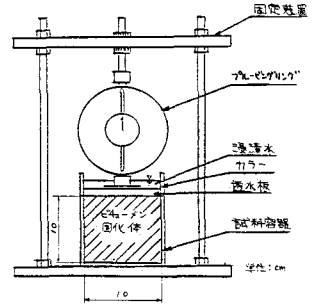


図4 膨潤圧試験装置

(1) 硫酸ソーダ固化体の場合では、膨潤圧はいずれの固化体も浸漬後12時間程度で平衡に達し、その値は混合比の増加とともに大きくなる傾向にある(混合比60wt%の固化体で約250g/cm²)。

(2) ほう酸ソーダ固化体の場合では、時間の経過とともに徐々に増え続け、浸漬56日目では約100g/cm²である。また、混合比の違いによる影響は小さい。

6. 膨潤機構に関する検討

(1) 硫酸ソーダ固化体の場合では、一般に無水Na₂SO₄は32.38℃以下で水と接触するとNa₂SO₄·10H₂Oに変態し、約4倍の膨張をきたすとされている。この膨張力が固化体の骨組みであるアスファルトの降伏値を越えるとき、固化体は膨潤現象を呈すると考えられる。これは、Na₂SO₄の変態点を越えた環境条件40℃において膨潤を示さなかった実験結果より、ほぼ妥当と考える。その後Na₂SO₄·10H₂Oは溶解し、一部は浸漬水中に溶け出す。さらに、結晶水塩形成による膨張によってアスファルト中に生じた微細な水みちを通して、より下層のNa₂SO₄が水と接触して同様な反応をくり返し、膨潤はある深さまで収束する。これは、浸透速度が徐々に小さくなるなどのためと考えられる。

(2) ほう酸ソーダ固化体の場合では、ほう酸ソーダの3つの変態点と固化体製造時の温度条件から、固化体中の結晶形態としてはNaBO₂·½H₂Oが存在していると考えられ、本実験温度ではNaBO₂·4H₂Oに変態し、結晶塩は約2倍に膨張すると予想される。

以上をもとにして、膨潤機構を単純モデル化して

$$\frac{\Delta V}{V_0} = C_3 \frac{\Delta z}{z_0} \quad (\text{層厚の変化, 自重を無視した式}) \quad \varepsilon: \text{4-ユーメン固化体のひずみ}, t: \text{経過時間}, z: \text{位置}, C_3: \text{膨潤係数(定値)}$$

を導き、数値解析を行なった。さらに他の項も考慮し検討している。