余裕深度処分施設に用いるセメント系人工バリアの拡散性能評価手法に関する考察

清水建設㈱　正会員　○名倉健二　杉橋直行　矢ノ倉ひろみ
日本原燃㈱　正会員　庭瀬一仁　伊藤裕紀
東電設計㈱　正会員　谷智之
㈱ニュージェック　正会員　枝松良展

１．はじめに

低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分施設に用いる低拡散層は放射性核種の拡散を抑制する部材であり，その拡散性能は安全評価上，重要な項目である．しかし，放射性核種の拡散係数の試験評価方法については，原子力学会で基準化されている「収着分配係数の測定方法」の中で，実効拡散係数の取得について記述されているものの，具体的な試験条件や評価方法などが示されていない．さらに，低拡散層のようなセメント系材料における放射性核種の拡散係数の試験方法や評価に関する研究はほとんどない．このためここでは，放射性核種のうち，セメント系材料へ収着がほとんどなく評価の基本となるトリチウムを用いて，低拡散層の実効拡散係数の試験条件と評価方法について検討を行うこととした．ここでは，試験条件のうち特に拡散試験に供する供試体材齢と試験結果の評価方法について示す．

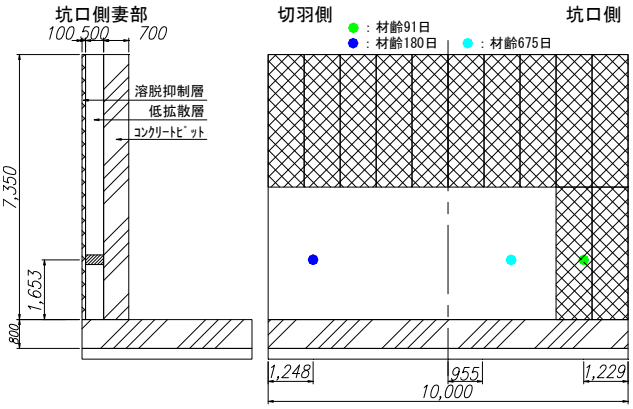

図-1　実規模試験体

表-1　試験条件

項目	試験条件
トレーサ濃度	300,000cpm/ml 程度（材齢 91,675 日） 100,000cpm/ml 程度（材齢 180 日）
φ 50mm 試料の厚さ	10mm（材齢 91 日）,5mm（材齢 180,675 日）
試験温度	室温（20±3℃程度）
試験雰囲気	低酸素雰囲気（O_2<1ppm，高純度 Ar ガス）

２．試験方法

供試体は材齢 91 日，180 日，675 日で**図-1** に示す実規模試験体の低拡散層から採取したコアを用いた．この低拡散層にはモルタル（結合材 B：低熱ポルトランドセメント+フライアッシュ+膨張材、W/B=45%）を用いている．試験は，透過型拡散試験法によりトレーサをトリチウムとしてセメント平衡水を用いて実施し，濃度分析を液体シンチレーションカウンターにより行った．試験条件を**表-1** に示す．

３．実効拡散係数の評価方法

実効拡散係数の評価は既報において筆者らが提案した方法[1]（以下，早期評価法）と三原らが Zhang の式から Cl 濃度の実効拡散係数を数値計算，評価した方法[2]（以下，Zhang の方法）の 2 つの方法で行った．早期評価法は，試験期間のデータのうち最初 2 割のデータを棄却し，それ以降のデータを一次回帰した直線の傾きを実効拡散係数と評価する方法である．一方，Zhang の方法はフィックの拡散方程式（第二法則）から実効拡散係数 De と収着容量 α を使用して，透過型拡散試験で得られる濃度分布 C（x,t）を求める**式-1** を理論的に導出し，時間 t におけるサンプリングセルの濃度 C_{exp}（L,t）と**式-1** の算定値との差の自乗和が最小となるように De と α を数値計算するものである．

$$C(x,t)=\frac{C_t}{\delta+\gamma+1}-2C_t\sum_{m=0}^{\infty}\left[\frac{\delta\cos\left(\phi_m\frac{L-x}{L}\right)-\gamma\phi_m\sin\left(\phi_m\frac{L-x}{L}\right)}{\left\{\gamma\phi_m^2-\delta(\delta+\gamma+1)\right\}\cos(\phi_m)+\{\delta\gamma+\delta+2\gamma\phi_m\}\sin(\phi_m)}\exp\left(-\frac{\phi_m^2}{L^2}\frac{D_e}{\alpha}t\right)\right]$$　・・・式-1

ここで，C_t＝C（0,0）：トレーサー濃度，L：厚さ，A：断面積，$\tan\phi_m=\delta(\gamma+1)\phi_m/(\gamma\phi_m^2-\delta)$，δ＝

キーワード　低レベル放射性廃棄物，放射性核種，トリチウム，拡散係数，低拡散層
連絡先　〒105-8007　東京都港区芝浦 1-2-3 シーバンスＳ館　清水建設　ＴＥＬ03-5441-0594

α A･L/V_t，$\gamma = V_s/V_t$，V_t：トレーサーセル体積，V_s：サンプリングセル体積，$\alpha = \varepsilon + \rho K_d$，$\varepsilon$：空隙率，$\rho$：単位容積質量，$K_d$：分配係数．本検討では，セメント系材料にトリチウムは収着しないとし，Kd＝0，ε は水銀圧入法により求めた全空隙率として収着容量 α を設定し，実効拡散係数 De のみを数値計算して求めた．

４．試験結果と考察

材齢 91 日の供試体で，試験期間 60 日までは 30 日毎，以降 60 日毎に Zhang の方法で回帰し，それぞれ No.1～No.7 の回帰曲線として**図-2** に示す．No.1～No.7 のそれぞれの試験期間で回帰して得られた実効拡散係数を試験期間で整理した結果を**図-3** に示す．**図-3** には早期評価法で算定した実効拡散係数も併記した．材齢 180，675 日の供試体についても同様の整理を行い**図-4**，5 に示す．いずれの供試体も，試験期間 300 日程度以降，評価手法に係らず実効拡散係数は 2.0～3.0×$10^{-13}$$m^2$/s 程度で定常になる．低拡散層の結合材に低熱ポルトランドセメントとフライアッシュを用いているため，試験期間中であっても拡散試験容器中のセメント平衡水により水和やポゾラン反応が進行，緻密化して空隙率が小さくなることを別途確認している．このことが，試験開始時の供試体材齢に関係無く実効拡散係数が 2.0～3.0×$10^{-13}$$m^2$/s で定常になる理由の一つと考えられる．評価手法に差が無いことは，早期評価法が，理論解である Zhang の式相当の精度であることを示している．試験初期の両評価手法による実効拡散係数の差異は，以下のとおりそれぞれの評価手法の特徴を表している．**図-3** より，材齢 91 日の供試体では，Zhang の方法により評価した実効拡散係数は試験期間とともに徐々に小さくなり，定常化していく．これに対して，早期評価法では，試験期間とともに徐々に大きくなり，Zhang の方法より早い試験期間で 2.0～3.0×$10^{-13}$$m^2$/s 程度で定常になる．これは，Zhang の方法のように全プロットを曲線回帰すると，緻密化が進行する前の初期非定常部分の影響を大きく受けるのに対し，早期評価法では濃度プロファイル曲線の直線部分の傾きの変化を敏感に捉えているためと考えられる．現場の品質管理等では，建設期間内で拡散性能を照査し，結果をフィードバックするが，この場合，早期評価法は実用上問題ない精度で早期に拡散性能を評価できる．一方，**図-5** より，材齢 675 日の供試体では Zhang の方法が早期評価法よりも早く定常状態に達する．緻密化の影響が少ない長期材齢の供試体では，初期非定常部分を含めて曲線回帰する Zhang の方法が，早期評価法よりも早く実効拡散係数を決定できる．安全評価などでは，比較的長期間養生した供試体を拡散試験に供し，Zhang の方法により実効拡散係数を評価する事が説明性も高く適していると考えられる．

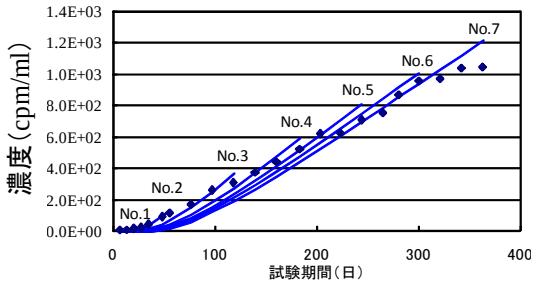

図-2　Zhang の方法による回帰

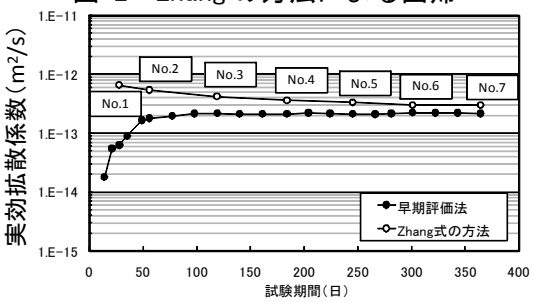

図-3　供試体材齢 91 日

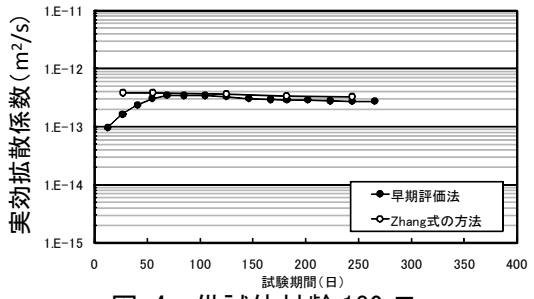

図-4　供試体材齢 180 日

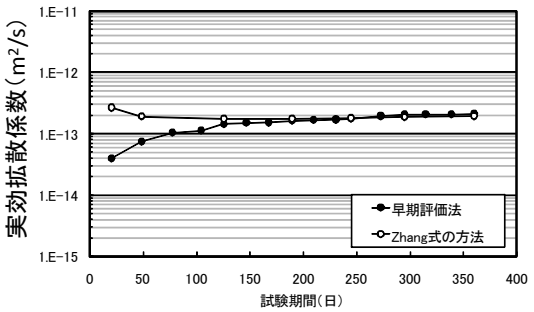

図-5　供試体材齢 675 日

５．まとめ

早期評価法は，理論解である Zhang の式相当の精度で実効拡散係数を評価できることを確認した．拡散試験期間中に緻密化が進むような供試体でも実効拡散係数を早期に評価できるため，早期評価法は余裕深度処分施設の低拡散層建設時における実効拡散係数の品質管理などに適しているといえる．

参考文献

[1]杉橋直行ほか：低熱ポルトランドセメントとフライアッシュ，膨張材を使用したコンクリートおよびモルタルの材齢 2 年までの諸特性（その 2），土木学会第 64 回年次学術講演会，2009．　[2]三原守弘ほか：透過型拡散セル試験によるセメント硬化体中の Cl-の拡散係数の評価，Cement Science and Concrete Technology, No.62，pp.365-371，2008.