

放射性廃棄物の海洋投棄処分に関する研究 — 再処理廃液のセメント固化法について —

京大工. 正員. 岩井重久, 井上頼輝, ○寺島 泰, 学生員. 青山 勉.

序言

原子力利用開発の進展に伴ない、生成される放射性廃棄物の量も、近い将来には飛躍的に増大するものと予測されるが、特に核燃料再処理に伴なう廃棄物の処理、処分が、その量、質から見て最も重要な問題となる。中でも、高レベル放射性廃棄物の最終処分は、現在のところ隔離貯蔵によるものさえないが、我々の場合、原子力施設が海岸に設置され、しかも近海に高深度の海溝が存在するという立地、地理的条件から、深海投棄処分が、さわめて有効な永久隔離貯蔵処分となりうる可能性があり、その検討が緊急に要望されている。我々は、海洋投棄処分にかかる一連の問題として、廃棄物固化の方法、投棄容器の開発、投棄体からの放射性成分の溶出抑止法、溶出放射性成分の海洋における輸送現象や海洋生物による摂取の問題などをとりあげ、安全性、経済性の面から総合的に検討を進めている。本研究では、特に再処理廃液のセメントによる固化の可能性と、固化体の強度とを調べとりあげ、この点について種々の観点から検討を加えた結果を報告する。

実験方法

再処理廃液の組成は、再処理の方法や、工程のどの段階で排出されたものかによって大に異なるが、湿式処理法のうちでも最も代表的な Purex 法の場合、T.B.P. による U, Pu 抽出後、最終的に排出される高レベル廃液の蒸発濃縮後の主成分は、次表に示すようなものと推定される。この廃液は、硝酸イオン含有量が多く、その廃液生成量が多いことなどが、他の処理法による廃液にくらべて特徴的である。本実験では、表に示す組成の模擬廃液を調製し、これを NaOH, Ca(OH)₂ で中和したものを固化廃液とした。中和廃液の比重、塩類重量百分率は、NaOH 中和廃液の場合、それぞれ 1.406, 44.4%, Ca(OH)₂ 中和廃液の場合、1.434, 43.1% であり、いずれの廃液も Fe(OH)₃ の存在によって茶褐色を呈し、粘性も高い。この中和廃液は、塩類濃度の低い場合をも想定して幾度かに希釈し、これと市販のポルトランドセメントを用い、廃液・セメント比(重量比)を変えて固化した。試体は直径 5cm, 高さ 10cm の円柱形である。型から取り出す際には、所定の期間中、20℃, 湿度 100% で空中養生し、その後、2軸圧縮強度を測定した。

Purex 廃液
(HNO₃ 酸性)

成分	濃度 (M)
Al(NO ₃) ₃	0.1
Fe(NO ₃) ₃	0.3
NaNO ₃	0.5
Cr(NO ₃) ₃	0.01
H ₃ PO ₄	0.01
H ₂ SO ₄	0.75
HNO ₃	5.03

実験結果

廃液固化の目的からすると、廃液・セメント比をできるだけ大きくすることが望ましいが、その上限は、固化に際して Breeding を起こさないという条件によって制限され、他方、下限は、Workability によって制限される。この点を明し、実質的な水・セメント比や含水量によって支配されるもの、廃液の希釈度によって、上限は変化する。一般に、希釈度の低いものほど、同一廃液・セメント比における実質的な含水量が少なくなるため、

実際にはより高い廃液・セメント比をとりこことが可能である。特に $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知廃液は、 Ca 塩に与るセメント凝結促進効果があり、保水性を良く、希釈度 1~3 倍の範囲で、120~140% の廃液・セメント比をとりうる。NaOH 中知廃液の場合は、希釈度 2~3 倍とすると、廃液・セメント比が 60~70% であり、そのための Breeding を要する。

固化体中の原廃液(無希釈)と固化体の体積とから求めた増容比は、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知廃液の場合、無希釈、120% の廃液・セメント比で約 1.5、NaOH 中知廃液の場合は、無希釈、70% で約 1.7 である。増容比は、希釈度が高くなると必ずしも比例的に増加するが、廃液・セメント比による変化の割合は小さい。

固化体の圧縮強度は、廃液・セメント比の増加にともない、指数的に減少するが、これはモルタル強度と水・セメント比との関係とほぼ同一である。固化体中における Ca 塩の存在は、むしろ強度を増大せしめる効果があるが、Na 塩の存在は明らかに逆の効果を示し、これが、希釈度 1~5 倍の廃液について、同一廃液・セメント比のものである $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知廃液に与る固化体の強度が高く、すなわち、必要な圧縮強度を定めても、より大量の廃液・セメント比をとりこことがでる。したがって、強度に関する限り、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知とより方がより有利であるといえる。 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知廃液の場合、無希釈、材令 28 日、廃液・セメント比 80% で 680 kg/cm^2 、120% で 340 kg/cm^2 という比較的高い強度が得られる。NaOH 中知廃液については、廃液・セメント比を 50% として最大強度は 420 kg/cm^2 、70% では 230 kg/cm^2 に低下する。

強度はすなわち、希釈度の増大、つまり廃液中塩類濃度の減少にともない低下し、その割合は、廃液・セメント比の大きなる場合に与り大である。 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知廃液の場合、材令 28 日、廃液・セメント比 80% で希釈度が 1 か 5 3 倍となると、強度は約 60% 減少、廃液・セメント比 120% では約 70% 減少する。NaOH 中知廃液の場合は、とりうる廃液・セメント比が 50~70% といふ、比較的狭い範囲であるため、希釈に与る強度減少の割合も、30~50% 程度である。一見矛盾したようにも思えるが、同一廃液・セメント比のものである、希釈度の大きなもの内では実質的な水・セメント比が大となることを考えれば理解できる。

多くの場合、強度は封鎖時間に対して直線的に増加する。7 日強度は、材令 28 日の時点では 1.5~1.8 倍の範囲で増加している。最終的な強度を推定することは困難であるが、材令 28 日以後も、相当程度の強度の増大が予想される。

廃液・セメント比、希釈度、材令を要因として、3 元配置法による分散分析を行なうと結果、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 中知廃液については、圧縮強度に対して最も影響のある要因は、希釈度、ついで廃液・セメント比であり、この両者が寄与率 82% を占めている。主効果図から判明すると、まず希釈度を低くすると、つまり与る量の Ca 塩を含有せしめると、なす強度は増加するものと思われる。NaOH 中知廃液については、廃液・セメント比、ついで材令が主要な要因となっており、希釈度が強度におよぼす影響は小さい。

結語

以上、再処理廃液のセメント固化法について、主として定性的な実験結果を述べたが、定量的な細部については、掲載時発表の予定である。最後に、固化法の望定にある、すなわち固化体の化学的耐久性、放射線成分の溶出についての検討も重要であることと附言する。