

広島大学大学院工学研究科 学生会員 ○村上 博紀
 広島大学大学院工学研究院 国際会員 土田 孝
 広島大学大学院工学研究科 学生会員 安部 太紀

1. はじめに

東日本大震災以降、放射性セシウムで汚染された廃棄物の処理が問題となっている。本研究では、陸上処分場に比べて一ヶ所で多くの廃棄物を処分・管理できる海面処分場の可能性について検討するため、処分場に用いる遮水材料として、海成粘土とベントナイトの混合遮水材料の透水・吸着特性を実験により調べた。海成粘土は難透水性、セシウムなどの陽イオンに対する吸着性を有し、経年劣化しない性質がある。また、ベントナイトは放射性セシウムを吸着するだけでなく、変形を与えても十分に追随し、遮水性を低下させない性質を持つ。本研究では、遮水材の遮水性能として透水係数 $k=5.0 \times 10^{-10} \text{m/s}$ 以下、遮水材の補助的性能として時間経過による放射能の減衰を考慮せずに、汚染水が遮水層を通過し、処分場外に漏出した時点の放射能濃度が初期濃度の $1/10$ 以下の吸着性能を付加するという目標を設定し、海成粘土とベントナイトの配合量が異なる試料に対して検討を行った。

2. 遮水材の目標性能の設定

本研究で開発する遮水材の目標性能は、図1に示す考え方より設定した。ただし、図1中の「100,000Bq/kg以下の廃棄物受入可能な性能」とは開発する遮水材の目標性能であって、実際の海面処分場で 8,000 から 100,000Bq/kg の廃棄物を受け入れることを意味しない。

遮水性能については、式(1)に示す放射能濃度の減衰式を用いて最大溶出量 18,750Bq/L が原発の排水規制値以下となる時間を計算し、透水係数 k を計算した。

$$C = C_0 \times \left(\frac{1}{2} \right)^{\frac{t}{T}} \quad (1)$$

ここで、 C ：時刻 t での放射能濃度、 C_0 ：初期放射能濃度、 T ：放射性物質の半減期である。

まず、式(1)を変形して、原発の排水規制値 90Bq/kg 以下となる年数は式(2)のように計算できる。

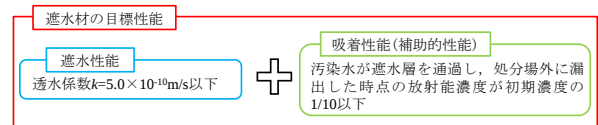
$$t = \frac{T \times \ln \frac{C}{C_0}}{\ln \frac{1}{2}} = \frac{30.1 \times \ln \frac{90}{18,750}}{\ln \frac{1}{2}} \approx 231 \text{年} \quad (2)$$

海面処分場の条件としては図2に示すように、廃棄物埋立前において、遮水層に対して常に 4m の水頭差が作用し、処分場内から処分場外への浸透流が発生しているという厳しい条件を想定した。これより、汚染水

8,000Bq/kg以下の廃棄物を、安全な放射能レベルに低下するまでの期間、遮蔽・遮水できる高性能(100,000Bq/kg以下の廃棄物受入可能な性能)な遮水材の開発を行う

開発する材料の要求性能の考え方

廃棄物(間隙比を0.8、単位体積重量15kN/m³と仮定)から間隙水への溶出率10%と仮定
 ⇒最大溶出量は18,750Bq/kgと計算される。



浸出水のトラベルタイム(遮水層厚4m) $4\text{m} \div 5.0 \times 10^{-10} = 253.7\text{年}$
 間隙水中の最大濃度 $18,750\text{Bq/L} \times 1/10 = 1,875\text{Bq/L}$

遮水層を通過し、253.7年後に処分場外に出たときの放射能レベル
 $1,875 \times (1/2)^{253.7/30} = 5.4\text{Bq/L}$ (原発の排水規制値90Bq/Lを下回る)

図1 遮水性能の考え方

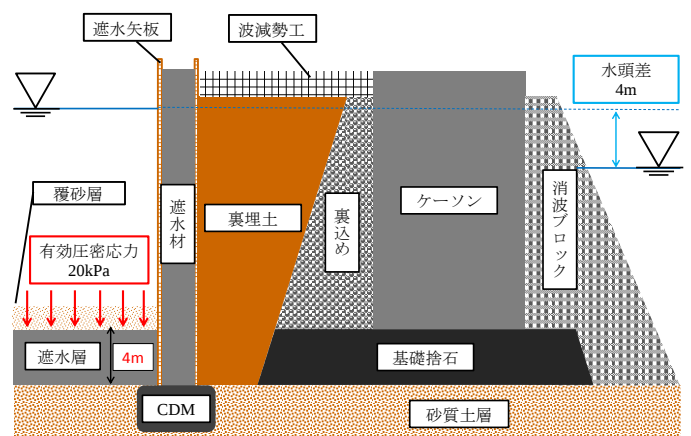


図2 処分場概略図

が導水勾配 1 で遮水層 4m を通過する時間が 231 年となる透水係数 k は式(3)のように計算できる.

$$k = \frac{H}{t \times i} = \frac{4}{(231 \times 365 \times 24 \times 3600) \times 1} \doteq 5.5 \times 10^{-10} [\text{m/s}] \tag{3}$$

ここで, H : 遮水層厚さ, t : 透水時間, i : 導水勾配である. ただし, 本研究では遮水性能の目標として式(3)の計算結果より安全側に見積もり, 透水係数 $k=5.0 \times 10^{-10} [\text{m/s}]$ 以下と設定した.

また, 基本的に汚染水の遮蔽・遮水は遮水材の遮水性能のみで行うが, 遮水材の補助的性能として放射性セシウムに対する吸着性能を付加した. 吸着性能の目標については時間経過による放射能の減衰を考慮せずに, 汚染水が遮水層を通過し, 処分場外に漏出した時点の放射能濃度が初期濃度の 1/10 以下と設定した.

以上の遮水材の目標を検討するために, 遮水性能については段階載荷圧密試験を, 吸着性能については振とう攪拌試験(バッチ試験)及び圧密通水試験(カラム試験)を実施した.

3. 遮水性能・吸着性能の検討方法

本研究で用いた試料は, 徳山港粘土 ($\rho_s=2.616\text{g}/\text{cm}^3$, $w_L=110.6\%$) 及びワイオミング産ベントナイト ($\rho_s=2.898\text{g}/\text{cm}^3$, $w_L=510.6\%$) である. 本研究では, 表 1 に示すような徳山港粘土とベントナイトの配合量が異なる試験体を 7 種類用意し, 遮水性能・吸着性能の検討を行った.

表 1 配合条件

試料名	T0	T25	T50	T75	T100	T150	BO
配合比	徳山港粘土のみ	徳山港粘土 1m ³ に対してベントナイト 25kg 添加	徳山港粘土 1m ³ に対してベントナイト 50kg 添加	徳山港粘土 1m ³ に対してベントナイト 75kg 添加	徳山港粘土 1m ³ に対してベントナイト 100kg 添加	徳山港粘土 1m ³ に対してベントナイト 150kg 添加	ベントナイトのみ

遮水性能については, 表 1 の BO を除く試験体に対して段階載荷圧密試験を実施し, 検討を行った. 通常の段階載荷圧密試験では, 事前に予備圧密し, 成形した試料を用いるが, 本研究では予備圧密を行っていないスラリー状の試験体を, 厚さ 20mm, 直径 60mm の圧密リングに空気が混入しないように充填した. その後, 圧密応力 4.9 から 627.2kPa, 応力増分比 $\Delta p/p=1$, 計 8 段階の段階載荷圧密を実施した. 試験から求まる圧密係数 c_v と体積圧縮係数 m_v を用いて, 透水係数 k を式(4)のように算出し, 各試験体の遮水性能の比較を行った. ただし, γ_w は水の単位体積重量である.

$$k = c_v \cdot m_v \cdot \gamma_w \tag{4}$$

吸着性能の検討については, 試験体とセシウム溶液を混合させ, 振とう攪拌させる振とう試験(バッチ試験)を行った. 表 1 の全ての試験体 20g(乾燥状態)と塩分濃度 3%の人工海水を溶媒とした様々な濃度のセシウム溶液 200mL を混合させ, 1 時間振とう攪拌した. 振とう攪拌終了後, 混合液を採取し, 遠心分離機を用いて 30 分間, 3000rpm で遠心分離させ, 上澄み液を採取した. 採取した上澄み液は原子吸光分析機により濃度測定を実施し, 各試験体の吸着性能の比較を行った.

さらに, 表 1 の T0, T25, T75, T150 の試験体に対して, 実際の現場を想定した吸着性能の検討として圧密通水試験(カラム試験)を実施した. 図 3 に圧密通水試験装

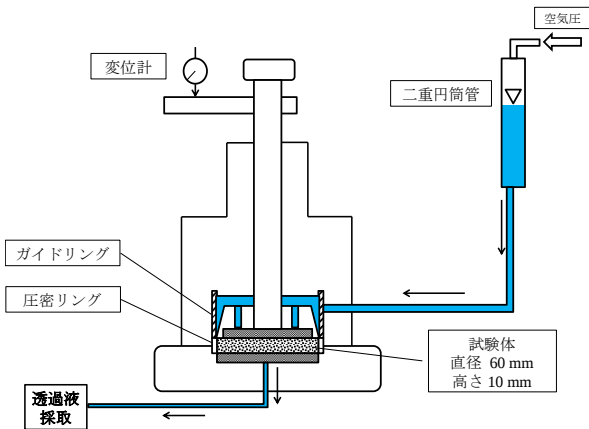


図 3 圧密通水試験装置

置を示す。まず、直径 60mm、高さ 10mm の圧密リングにスラリー状の試験体を充填し、成形した。その後、現場で想定される圧密応力 20kPa まで試験体を圧密した。圧密終了後、30ppm のセシウム溶液が充填された二重円筒管に空気圧 19.4kPa を常に与え、図 3 の矢印方向の透水経路で試験体にセシウム溶液を通水させた。試験体に計 300mL のセシウム溶液が通水した時点で試験を終了した。また、試験体にセシウム溶液が 10mL 通水するごとに、透過液を採取し、原子吸光分析機により濃度測定を行った。

4. 実験結果

図 4 に圧密係数 c_v と圧密応力 p の関係を示す。これより、徳山港粘土にベントナイトを添加するにしたがって、同圧密応力下での圧密係数が小さくなっていることが分かる。ベントナイトに含まれるモンモリロナイトは大量の水を吸収し、膨潤する性質を持っている。このため、間隙中の自由水が吸収され、試験体中の間隙が充填される膨潤効果が発生し、圧密係数が低下したと考えられる。

図 5 に透水係数 k と圧密応力 p の関係を示す。これより、徳山港粘土にベントナイトを添加するにしたがって、同圧密応力下で透水係数が小さくなっていることが分かる。これは、ベントナイトの膨潤効果により、間隙が充填され、透水係数を低下させたと考えられる。しかし、現場で想定される圧密応力 20kPa 下で、遮水性能の目標値 $k=5.0 \times 10^{-10} \text{ m/s}$ 以下を達成した試験体はなかった。したがって今後は、透水係数が増加しない程度に砂を混ぜて圧密係数を増大させるなどの有効圧密を高める工夫が必要であると考えられる。

図 6 にそれぞれの平均圧密応力における透水係数低減比 r とベントナイト添加量 B の関係を示す。また、透水係数低減比 r は式(5)のように定義する。

$$r = \frac{k_x}{k(\text{TO})} \quad (5)$$

ここで、 $k(\text{TO})$ は試験体 TO の透水係数、 k_x は任意のベントナイト添加量での試験体の透水係数である。

図 6 より、全体的な傾向として徳山港粘土にベントナイトを添加することで初期透水係数の約 0.35 から 0.8 倍に低減していることがわかる。また平均圧密応力が大きいほど、透水係数低減比の低下勾配が大きいことが分かる。これは圧密応力が大きくなるに従って、徳山港粘土中の間隙に入りきらなかったベントナイト粒子が強制的に押し込められたことにより、透水係数が大幅に低減したためと考えられる。

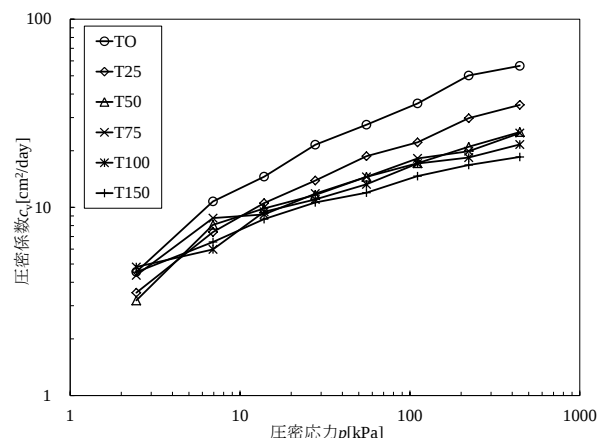


図 4 c_v - p 曲線

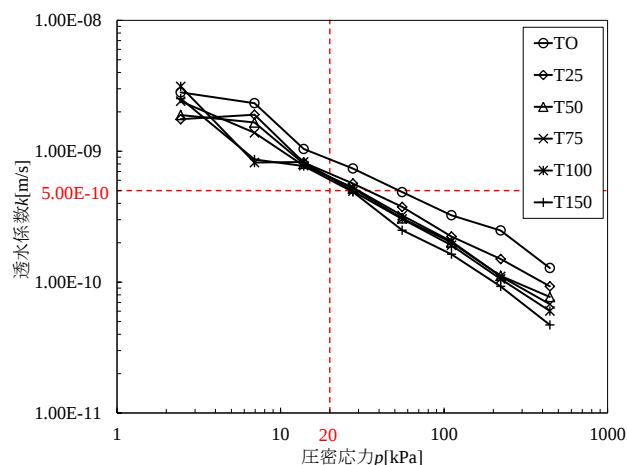


図 5 k - p 曲線

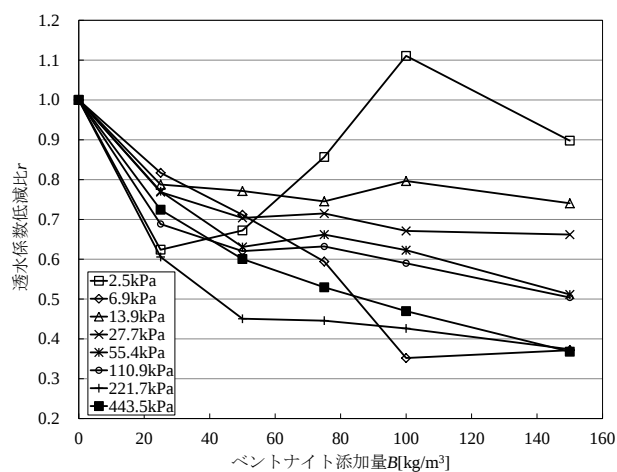


図 6 r - B 曲線

図 7 に振とう試験から得られた分配係数 K_d とセシウム溶液初期濃度 C_i の関係を示す。分配係数とは式(6)のように計算され、値が大きいほど、吸着性能が高いことを示す係数である。

$$K_d[\text{mL/g}] = (\text{吸着量}[\text{mg/kg}]) / (\text{残留濃度}[\text{ppm}]) \quad (6)$$

図 7 より、どの試験体もセシウム溶液の初期濃度が増加するにつれて、分配係数が低下していることが分かる。これは、試験体がセシウムを吸着しきれず、セシウムの残留濃度が大きくなってしまったからだと考えられる。また、各試験体の吸着性能の比較をすると、同初期濃度下において分配係数の値に大きな差異がみられないことが分かる。したがって、徳山港粘土にベントナイトを添加しても、振とう攪拌による吸着性能に影響を与えないことが分かった。また、セシウム溶液の溶媒が海水ではなく真水の場合の分配係数として 24 から 63mL/g が報告されており¹⁾、今回の値はこれに比べて全体的に小さかった。これより海水が含むイオンにより吸着の障害が発生したと考えられる。

図 8 に圧密通水試験から得られたセシウムの漏出濃度 C_r と PVF の関係を示す。PVF とは試験体中の間隙水が何回入れ替わったかを表しており、式(7)のように計算できる。

$$PVF = V_c / V_w \quad (7)$$

ここで、 V_c はセシウム溶液の累積通水量、 V_w は試験体中の間隙体積である。図 8 より、セシウム溶液が試験体を通過し漏出し始める時点、つまり $PVF=1$ の時点では、いずれの試験体もセシウムの漏出濃度は検出下限値以下であった。これより本研究の吸着性能の目標は達成できたといえる。さらに、漏出濃度が初期濃度の 1/10 以上となるのは試験体の間隙体積の約 13 から 18 倍の透水があったときであり、この観点からも十分吸着性能の目標を達成できたといえる。しかし、ベントナイト添加による試験体の吸着性能の挙動に着目すると、ベントナイトの添加量の多い試験体ほど同 PVF 下での漏出濃度が大きくなっている。これより、徳山港粘土にベントナイトを添加することで吸着性能が低下したといえる。

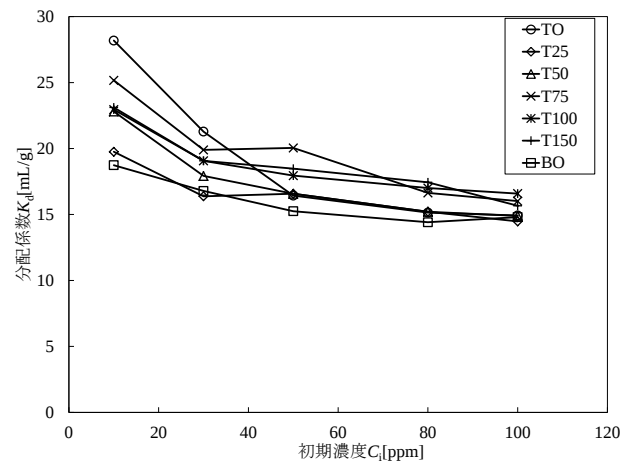


図 7 K_d - C_i 曲線

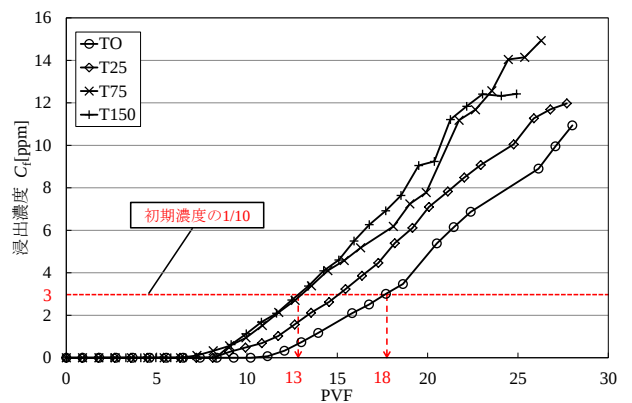


図 8 C_r -PVF 曲線

5. 結論

- 1) 海成粘土にベントナイトを添加するにしたがい透水係数は低下した。しかし、遮水性能の目標である透水係数が現場で想定される圧密応力 20kPa 下において $k=5.0 \times 10^{-10} \text{m/s}$ 以下を達成した試験体はなかった。今後は、さらに透水係数を低下させる工夫が必要となる。
- 2) 圧密通水試験による試験体の吸着性能はベントナイトを添加するに従い低下した。しかし、試験体の間隙水が 1 回入れ替わった時点ではセシウム濃度は検出下限値以下であり、吸着性能の目標は達成できたと考えられる。

参考文献

- 1) 国立環境研究所, 資源循環・廃棄物研究センター：放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分, 技術資料 第二版, 平成 24 年 3 月 26 日, p38-41