

外97-54

早稲田大学大学院理工学研究科

早稲田大学審査学位論文(博士)の要旨
-2630-

博士論文概要

論文題目

放射性核種のコンクリート中移行に関する基礎研究

申請者

下岡 謙司

Kenji Shimooka

1997年12月

低レベル放射性廃棄物については、我が国では浅地中埋設設計画が進められているところである。放射性廃棄物埋設の安全性は、人工バリアおよび天然バリアからなる多重バリアの放射性核種移行阻止機構により保たれる。地中埋設の場合、主たる人工バリアはコンクリートピットである。

本研究の主目的は、人工バリアとして最も主要なコンクリートについて、放射性核種の移行阻止機構を解明する事である。コンクリート中での放射性核種の主たる移行機構を明らかにし、埋設の安全評価のため核種移行を定量的にとらえた後、さらに一般化させることが本論文の主題である。この目的のため、本論文では、2つの観点から基本的な問題を解明している。第1の観点はまず放射性核種移行現象の解明であり、第2の観点は核種移行の定量化即ち、解析モデルの提案である。これらの観点から、健全なコンクリート、経年変化をしたコンクリート、ひびわれが生じたコンクリートについて核種移行阻止能力を評価し、さらに施設構造物を用いた実規模試験の結果も含めた4つのケースについて論証している。

最初のケースはひびわれの無い健全なコンクリートに関し、コンクリートの諸物性例えば吸着特性、拡散係数などの物性と廃棄物中の代表的放射性核種¹³⁷Cs、⁹⁰Srおよび⁶⁰Coの移行を拡散機構に結びつけて解明する観点である。コンクリート中の放射性核種の拡散に関する研究は従来あまり行われておらず、現象論的に終始しその解明、解析研究は十分ではなかった。2番目のケースでは、コンクリートが経年変化をしたとき、核種移行に係わるであろう物性がどのように変化するかを明らかにし、核種移行評価上経年変化をどのように考慮すべきかの観点からまとめられている。このため、後述のように経年変化により中性化するであろうコンクリートについて、拡散係数及び透水係数等の物性値の変化が、核種移行阻止能力に対しどの様な影響を与えるかについて調べた。中性化コンクリート中の核種移行の研究は、いままではほとんどなされていない。3番目はコンクリートにひびわれが発生したケースを対象とした。この場合は水の流れに伴う核種の移行解析が主たるものであり、微小ひびわれに対して水流モデルの適応範囲、解析の可能性について検討を試みた。最後のケースでは、実規模サイズのコンクリートピットで試験を実施し、上記の各ケースで確立した解析理論とコンクリートサンプルを用いた実験で明らかにされた現象により解析の妥当性を確認、実証したものである。

地下水に溶出した放射性核種のコンクリート中の移行は多孔質媒体中の移行として扱われる。間隙水が存在すれば、間隙水中の拡散および間隙水の移動によって移行する。それ故、コンクリートのバリア特性は拡散係数と透水係数で表現される。核種が間隙表面に吸着される場合はさらに移行が遅延されるので、吸着特性も重要である。拡散移流方程式の壊変および移流の項が無視しうる場合は、フィックの拡散方程式で表されるはずである。拡散係数を求める従来の実験では侵出法あるいは薄い試料を用いた透過法が用いられ、拡散媒体内の濃度分布につ

いては考慮されない例が多くあった。本実験では、コンクリート内部に浸入した¹³⁷Cs、⁹⁰Srおよび⁶⁰Coの濃度分布を測定することにより、核種の移行が単一の拡散では説明できないことを示した。あわせて、放射性核種の濃度分布をオートラジオグラフで観察し、骨材部とセメント部で放射性核種の濃度が異なっており、濃度が一様でないことを確認した。そこで2つの拡散経路を想定し、それぞれの経路による濃度を重ね合わせることによって実測濃度分布へ良くフィッティングさせることができた。これらのことから、コンクリート中への放射性核種の浸入には、コンクリート内部の速い拡散と遅い拡散の2つがあるという解釈をした。すなわち、固体表面に吸着した高濃度部からの拡散と溶液からの直接拡散との重ね合わせによって表現できるという考えを提案した。

コンクリートの長期間にわたる物性変化としては、大気中の炭酸ガス及び水中的炭酸イオンとの反応による中性化による変化が考えられる。そこで、核種移行における長期予測に関する試験では、炭酸ガスにより強制的に中性化したコンクリート（通常の条件では数百年経過に相当する）を用いて行い、拡散係数、透水係数等のパラメータを得た。この結果、中性化コンクリートの値は新鮮なコンクリートの値と大きく異なっていないことがわかり、放射性核種の移行は相当長期にわたり、本実験で明らかにされた機構およびパラメータで予測することが可能であると判明した。

人工バリアの施設構造物としてのコンクリートピットは水密性に優れたコンクリートとなるよう設計、施工を行うことが重要であるが、コンクリートは乾燥による収縮等の原因によりひびわれが発生する可能性をなしとしない。したがって、放射性核種の移動が水を媒体としても起こり得ることを考えると、コンクリートひびわれ内部における水の移動のメカニズムを知ることは、核種移行評価上極めて重要な課題である。しかし現状ではひびわれを有するコンクリートの漏水現象に関する定量的なデータは不十分な状況であり、コンクリートのひびわれ中の核種移行に関するデータを見ない。本ケースでは水密性からの許容値としている幅、約0.006 cm位までのひびわれについて漏水現象および核種移行現象を調べ、それについて、既存のどのようなモデルが適応できるか、またどの程度定量化することが可能かを確かめた。その結果、現在考えられているコンクリートピット、最大水深5 mでは、水の移動は層流になるものと考えられ、流量と圧力勾配／粘性係数との間には、ナビエ・ストークス運動方程式の解で与えられる比例関係が成立していると見なしうる結果が得られた。一方、間隙幅と流量との関係においても理論と同様間隙幅の3乗に比例するという結果が見いだされた。すなわち、微細間隙における漏水現象については、幅の3乗および圧力勾配に比例し、粘性係数に逆比例するという平行平板ひびわれの理想的な流れであるヘル・ショウの流れとして扱うことができる事が確認された。

ひびわれ中の放射性核種の移行に関しては、平行平板コンクリート隙間中で

の¹³⁷Csおよび⁶⁰Co溶液の挙動を観察した。溶液の破過曲線は核種の化学状態に大きく左右され、非沈降性の¹³⁷Cs溶液の流れは、D.H.Tang の單一クラックの解析解で表現できることがわかった。一方、沈降性の状態の⁶⁰Co溶液はクラック表面でのイオン交換、吸着では表現できない挙動をとり、上記の解法では解析不能であった。今後、沈降性の状態の核種移行を解析するには、目詰まりを伴う複雑な漏水現象の解明と共に沈着等による放射性核種の保持効果を考慮できる解析法が必要となるであろう。

実規模試験では、コンクリートピットに¹³⁷Cs、⁹⁰Srおよび⁶⁰Co含有のセメント固化体を設置し、純水に浸漬した後、水位を一定に保ち約2年間この条件を継続した。約2年間の移行期間後、コンクリート中の放射性核種濃度を実測するため、ピットを解体しながらコンクリート部およびセメントモルタル部の両者から試料を採取し、放射性核種濃度分布を測定した。¹³⁷Cs、⁹⁰Srおよび⁶⁰Coのコンクリート中ならびにセメントモルタル中での濃度分布はほぼ同じ分布であった。これらの濃度分布および試験期間中に得られた諸データに基づき、¹³⁷Cs、⁹⁰Srおよび⁶⁰Coが実際にピットのコンクリート部及びモルタル部の中を2年間で移動した現象を解析した。その結果より、動水勾配と透水係数で計算される水の浸透深さはわずかであり、水の移流に伴う核種移行では濃度分布が説明できること、また拡散式による計算でも単純な1つの拡散では説明ができないことを明らかにした。そこで実規模ピットの濃度分布解析においても、侵入深さ方向の核種の濃度分布を隙水中の拡散に固体中の拡散の2つの拡散の重ね合わせで解析する手法を適用した。その結果、実際の濃度分布と2つの拡散の重ね合わせによる計算結果と良く一致しており、長時間後の放射性核種移行を上記解析法とモデル化で推定評価する事が可能であることを明らかにした。この研究により、コンクリートピット中の放射性核種の移行は実際に近い条件下での放射性核種の侵入分布を観察し、その機構を把握することが最も大事であり、この侵入現象をモデル化することによって、放射性核種の長期にわたる移行をうまく解析しうることが明らかとなった。

以上本研究の成果は、従来あまり必要がなくほとんど確認されていなかった放射性核種のコンクリート中移行について、その現象を実測しそれに基づいたあらたないいくつかの解析手法とその適応性を示したと要約される。本研究によって、人工バリアであるコンクリート中の放射性核種の移行を正確でより実際的に評価しうる手法を提案し得たと考える。

しかし、核種のコンクリート中移行には、まだ多くの問題が残っていることも事実である。地下水組成の影響、コンクリートの経年変化に伴う核種との反応、ひびわれが生じた場合の移行解析等の問題が考えられるが、本論文では核種移行の基本となる主たる移行現象の解析についてのみ論議した。長期間にわたり生じる複雑な現象についてはその問題点の指摘のみにとどめている。