

硝酸塩含有廃棄物の地層処分における安全性に関する研究（その2）
(1) 模擬固化体の熱測定及び発熱速度のモデル化

A study on the safety of geological disposal of nitrate-containing waste (part 2)

(1) The exothermic measurement of the simulated waste and modeling heat flux

*原 啓二¹, 長谷川 和俊¹, 朽山 修¹, 安達 夏絵¹, 桐島 陽², 三原 守弘³
¹原子力安全研究協会, ²東北大学, ³原子力機構

硝酸塩含有廃棄物の地層処分における安全性を評価することを目的として、廃棄物中の硝酸塩と有機物の酸化還元反応の機構解明のため模擬固化体の熱測定及びデータ解析を行い、発熱速度モデル・パラメータの検証を行った。

キーワード：地層処分、TRU 廃棄物、硝酸塩含有廃棄物、熱反応暴走、温度解析

1. 緒言

地層処分における硝酸塩含有廃棄物は、地下水の化学的特性や放射性核種の移行挙動に影響を及ぼす可能性があり、硝酸塩の溶出挙動や放射性核種の溶解・収着特性等への影響に関する研究が進められている。また、硝酸塩と有機物が多量に混在する場合(アスファルト固化体)、特殊な条件下でこれらの酸化還元反応による熱反応暴走を起こす可能性がある。反応暴走が起こるかどうかは、発熱速度とその系の放熱速度のバランスで決まり、前者が後者を上回る場合には、蓄熱により温度が上昇し続け、やがて熱反応暴走に至る。本研究では廃棄物中の硝酸塩と有機物の反応速度機構を解明し、発熱速度モデルを開発して地層処分施設における熱反応暴走のシミュレーション解析を行うために、高感度熱量計による模擬固化体の熱測定及びデータ解析を行い、発熱速度のモデル・パラメータの検証を行った。

2. 熱測定及びデータ解析

発熱反応が顕著になる 200℃以上の高温域においては、これまでの研究^[1]により、アスファルトと塩粒子それぞれの固相と液相の状態変化及び塩粒子周りの反応生成物層中の塩分子の拡散律速(図1)を考慮した発熱速度モデルにより熱量測定の実測値をほぼ再現できることが分かっている。一方、200℃以下の低温域においても亜硝酸塩の反応と見られる微小発熱が認められることから(装置名:C80による測定)、今回、高感度熱量計(装置名:TAM)により140~150℃における熱測定及びデータ解析を行い、低温域においても同発熱速度モデルが適用できることを検証するとともに、低温域から高温域の全温度領域にわたる反応速度定数を同定した。

3. 結果・考察

表1に低温域から高温域の全温度領域における反応速度定数を示す。また、本モデル・パラメータを用いた発熱曲線の計算例を図2に示す。本モデル・パラメータにより、これまで得られている熱測定データをほぼ再現でき、処分施設における熱反応暴走のシミュレーション解析が可能となった。今後は、これまで熱測定に供してきた模擬固化体に認められる長期保管中の経時変質の影響等の検討を行い、実固化体による試験・解析並びに熱反応暴走のシミュレーション解析手法の確立が重要である。

参考文献

[1] 朽山 修 他：硝酸塩含有廃棄物の地層処分における安全性に関する研究 (1) 模擬固化体の熱測定及びデータ解析, 原子力学会 2015 秋の大会, H50

*Keiji Hara¹, Kazutoshi Hasegawa¹, Osamu Tochiyama¹, Natsue Adachi¹, Akira Kirishima² and Morihiro Mihara³

¹Nuclear Safety Research Association, ²Tohoku Univ., ³Japan Atomic Energy Agency

※本研究の成果の一部は、平成 28 年度経済産業省の委託事業「地層処分技術調査等事業(処分システム評価検証技術開発)」の成果の一部である。

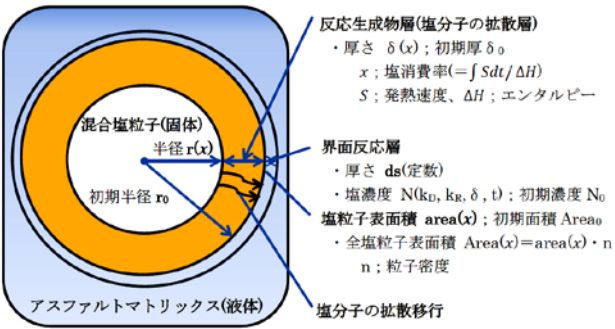


図1 拡散律速モデルの概念図

表1 反応速度定数

反応フェーズ i	粒子状の亜硝酸塩との反応(S _{NO2})	粒子状の亜硝酸塩との反応(S _{NO3})	溶解した硝酸塩との反応(L _{NO3})
活性化エネルギーE _i (J/mol)	1.20E+5	2.84E+5	5.0E+5
頻度因子A _i (s ⁻¹)	8.77E+7	4.4E+23	2.5E+43
拡散活性化エネルギーE _D (J/mol)	1.7E+5	—	—
拡散定数D ₀ (cm ² /s)	1.2E+5	—	—
エンタルピーΔH(J/g)	1500		

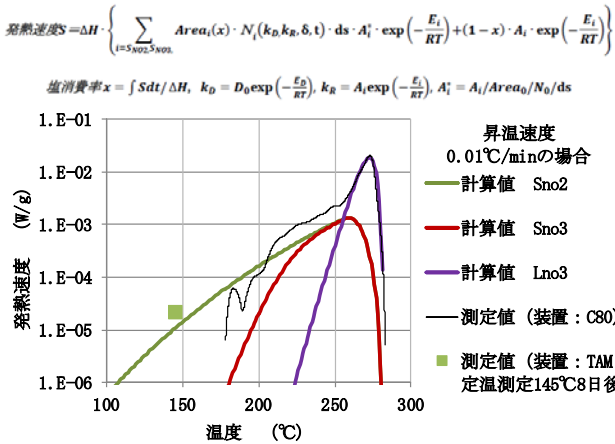


図2 発熱速度の計算値と実測例の比較