

各種セメント系材料の溶脱特性の比較「その 2」

(財) 電力中央研究所	正会員	○山本 武志
(財) 電力中央研究所	正会員	広永 道彦
(株) セレス	正会員	関口 陽
東京電力 (株)	非会員	熊野裕美子
日本原燃 (株)	正会員	庭瀬 一仁

1. はじめに

放射性廃棄物処分施設においては、人工バリア材料の一つとしてセメント系材料が用いられる。その環境下においては、セメントからカルシウム等を含む高アルカリ水が溶脱し、期待されている核種移行抑制機能の低下を招くことが懸念されている。また、溶脱に伴いセメント系人工バリア材料は、表層部から空隙径分布に変化が生じ、拡散係数および透水係数に影響を及ぼすと考えられる。そこで、本研究では各種セメント系材料の溶脱に伴う液相組成の変化と固相の空隙径分布の変化を評価した。

2. 試験概要

普通ポルトランドセメント (OPC), 低熱ポルトランドセメント (LPC), OPC の 30% をフライアッシュ I 種で置換したフライアッシュ混合セメント (FAC) を使用し、水結合材比 40%, 80% とした各硬化体試料に対し 26 週間まで定められた間隔で液交換を行った（「その 1」参照）。これらの各試料を OPC40, OPC80（セメント種・水結合材比）として表記する。また、空隙径分布測定においては、各試料を OPC40-初期, OPC40-26 週（セメント種・水結合材比・状態）として表記する。PH と液相組成 (Ca, Si, Na, K, Al) の分析は、液交換実施時に行った。また、空隙径分布測定は溶脱試料の表層部を 5mm 厚さで切断し、真空ポンプによる乾燥処理後に水銀圧入式測定装置にて行った。

3. 試験結果

(1) 液相組成の変化

各試料の浸漬期間と pH, 溶脱組成の変化の関係を図 1～図 6 に示す。 Ca^{2+} の溶脱は浸漬期間 5 週間で最大値を示し、13 週間で安定した。その溶脱量の最大値は OPC, LPC, FAC の順となり、フライアッシュを混和することで、無混和ポルトランドセメント使用時に比べて Ca^{2+} 溶脱量を抑制できると考えられた。また、OPC, LPC においては水結合材比を高く設定した方が Ca^{2+} 溶脱量が多くなったが、FAC においては水結合材比を低くした方が僅かに溶脱量が高まった。 Ca^{2+} , Na^+ , K^+ の溶脱量の間には、 Na^+ , K^+ の溶脱量が高まる水結合材比とした場合に Ca^{2+} の溶脱量が抑制される傾向が認められた。FAC は OPC, LPC に比べて浸漬初期から Si, Na^+ , K^+ , Al の溶脱量が多かった。フライアッシュ粒子に僅かに付着している Na および K が溶出したと考えられた。また、ポズラン反応に関

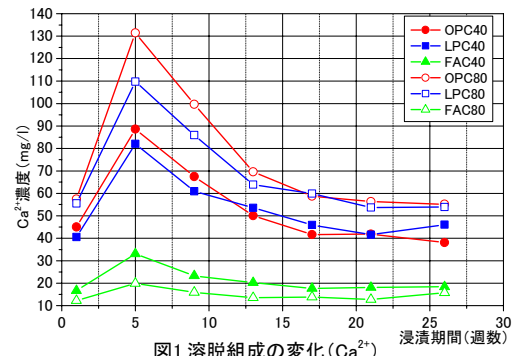
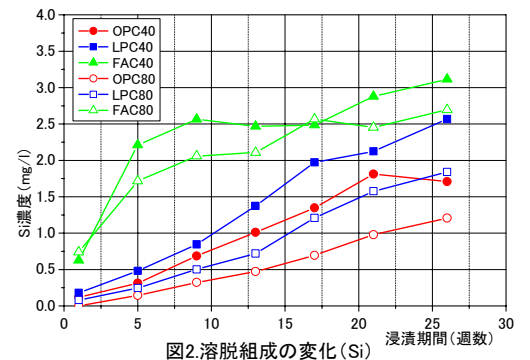
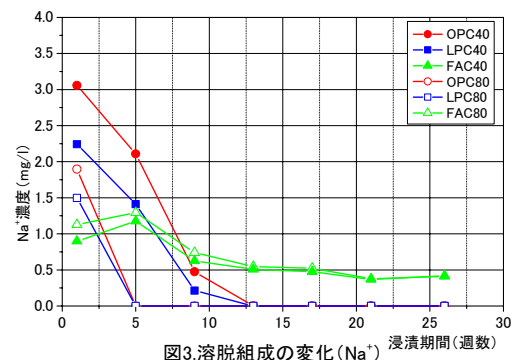
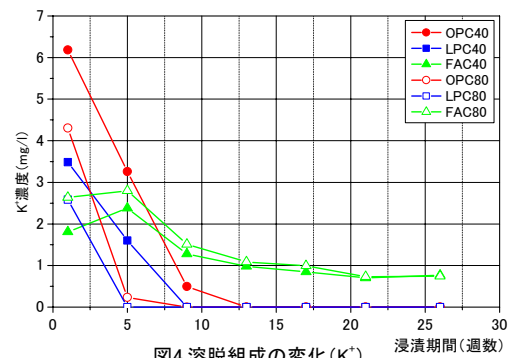
図1.溶脱組成の変化 (Ca^{2+})

図2.溶脱組成の変化 (Si)

図3.溶脱組成の変化 (Na^+)図4.溶脱組成の変化 (K^+)

キーワード 溶脱, 耐久性, セメント, フライアッシュ, 空隙径分布
 連絡先 〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646 (財) 電力中央研究所 TEL 04-7182-1181

与するフライアッシュのガラス相を形成する Si, Al が高 pH 下で溶解したと考えられた. このように FAC では Na^+ および K^+ の溶脱量が多かったが, 浸漬期間 26 週までの pH は他の試料に比べて低い値となった. これは, Ca^{2+} 溶脱量が少なかったことによると考えられた.

OPC の液相組成として Si と Al を含むことから, CH のみならず, C-S-H, AFm の溶脱も生じたと考えられた. また, LPC においては Al を含まないことから, CH と C-S-H の溶脱が生じたと考えられた. FAC においては, Si, Al を含むことから, CH, C-S-H, およびボゾラン反応相の溶脱が生じたと考えられた（「その 1」, XRD 分析）.

（2）空隙径分布の変化

初期試料と溶脱試料の空隙径分布の比較を図 7～図 9 に示す. 測定は $360 \times 10^{-6} \text{m}$ まで実施したが, 溶脱による空隙径分布の変化が生じた $10 \times 10^{-6} \text{m}$ の範囲を拡大表示した. 初期試料においては, 水結合材比を高めた場合に OPC, LPC, FAC では, 各々 $0.006 \sim 0.3 \times 10^{-6} \text{m}$, $0.005 \sim 0.07 \times 10^{-6} \text{m}$, $0.005 \sim 0.06 \times 10^{-6} \text{m}$ の範囲の空隙径量が多くなった. C-S-H 等の結晶群間の空隙の粗大化と水和の進行による結晶粒間の緻密化が同時に生じたと考えられた.

溶脱による顕著な空隙径の変化領域を各図中に「増加域」として表記した. それらの空隙径の増加は, CH 等の水和物の溶脱により生じたと考えられた. OPC, LPC では水結合材比を高めるほど増加域の空隙径が大きくなり, 増加範囲も大きくなった.

水結合材比 40% の FAC では, 表層領域の薄相の溶脱に留まった（「その 1」, EPMA 分析）ことから増加域を特定することはできなかったが, 水結合材比 80% の FAC では溶脱により $0.04 \sim 0.08 \times 10^{-6} \text{m}$ の空隙径が増加し, OPC と LPC の場合に比べて増加範囲の空隙径が小さく, さらに狭い増加範囲となった. このことから, FAC は OPC, LPC に比べて溶脱により粗大化する空隙径が小さくなるため, 接水面から浸透・拡散する水の量が抑制され, 同じ浸漬期間とした場合に変質深さが小さくなったと考えられた.

4. まとめ

本研究で得られた成果をまとめると以下の通りである.

- ① フライアッシュを混和することで無混和時に比べて Ca^{2+} の溶脱量を抑制することができた. また, Na^+ , K^+ の溶脱量が高まるが, pH を高める影響は認められなかった.
- ② フライアッシュを混和することで溶脱により粗大化する空隙径を小さくする効果があり, 表層部からの変質深さの進行を抑制すると考えられた.

謝辞

本研究は, 電力共通研究において実施した研究成果の一部である. また, 本研究を実施する上で八戸工業大学庄谷教授, 群馬大学辻教授, 東京工業大学坂井助教授, 東北学院大学遠藤教授, 八戸工業大学月永教授にご指導・ご鞭撻を賜った. ここに記して, 感謝する次第である.

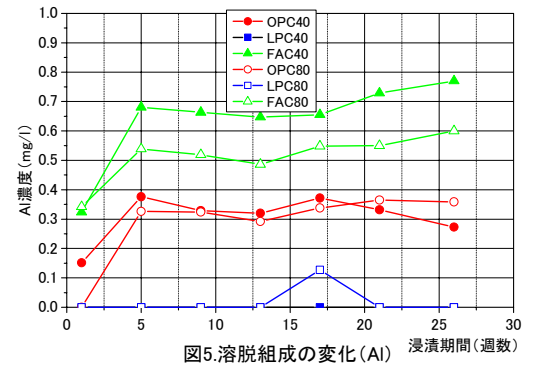


図5.溶脱組成の変化 (Al)

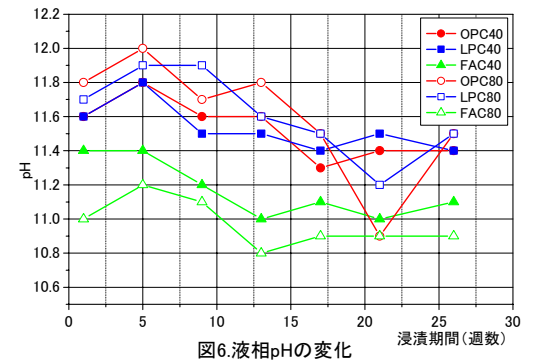


図6.液相pHの変化

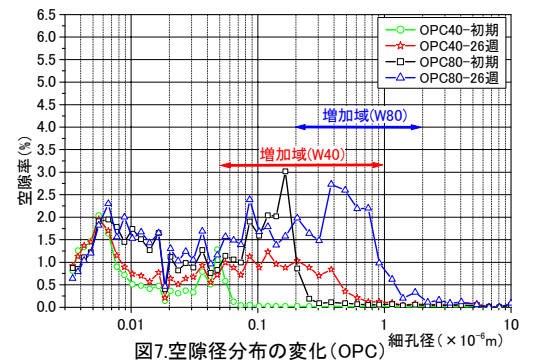


図7.空隙径分布の変化 (OPC)

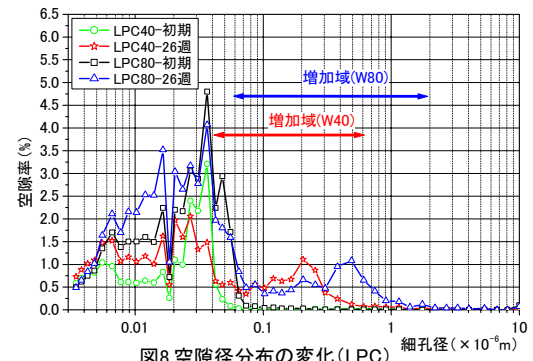


図8.空隙径分布の変化 (LPC)

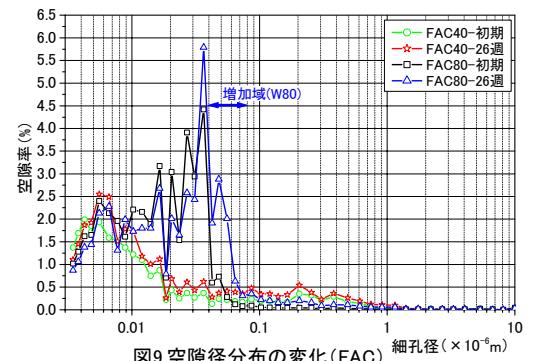


図9.空隙径分布の変化 (FAC)