

地下水含有成分がセメント硬化体の溶脱に及ぼす影響(2)

—純水および地下水模擬溶液への浸漬におけるセメント硬化体中の元素分布変化—

(株)セレス 正会員 ○久松 信太郎
 (財)電力中央研究所 正会員 蔵重 勲 廣永 道彦
 日本原燃(株) 正会員 庭瀬 一仁

1. はじめに

低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分施設へのセメント系材料の適用に際し、様々な課題に対して検討が加えられている。中でも、耐久性能評価は、処分施設設計において、その長期安全性の説明上重要な項目として取り上げられている。地下深度約 80～100m に建設が予定されている処分施設では、セメント系材料の主要な劣化現象として地下水による「セメント水和物の溶脱」が検討されている。従来、溶脱に対しては、純水を用いて評価されることがほとんどであったが、より合理的な評価の為に、地下水含有成分の影響を考慮することが求められている。本研究では、純水および淡水系・海水系地下水模擬溶液を用いて浸漬試験を実施し、供試体中の元素分布変化を EPMA(電子プローブマイクロアナライザー)によって分析を行うことで、地下水含有成分の影響を調べた。

2. 実験概要

表 1 供試体の使用材料と配合

供試体種類	セメント種類	混和(合)材種類	水粉体比 W/P(mass)	置換率 Rp (内割 mass)	砂粉体比 S/P(mass)	供試体略号
セメントペースト	OPCr	LS	0.35	0.05	-	P-OrLs
	LPC	FA		0.30		P-LF
モルタル	LPC	FA	0.50	0.30	2.0	M-LF

OPCr: 研究用普通ポルトランドセメント FA: フライアッシュ(II種) LS: 石灰石微粉末
 LPC: 低熱ポルトランドセメント 粉体: セメント+混和(合)材

2.1 供試体配合および形状

供試体の配合を表1に示す。水粉体比はそれぞれ良好なフレッシュ性状が得られ、均質な供試体が作製可能な値として定めた。またセメント・混和(合)材の組み合わせの内、P-LF および M-LF は、現状のセメント系人工バリアの候補材料を想定し、設定した。浸漬試験に使用する供試体は、全面をエポキシ樹脂で塗布した後、端部 10mm を切断して 20×20×70mm の1面を暴露する状態とした。

表 2 各種浸漬溶液のイオン組成

溶液種類	組成							pH
	濃度 (mg/L)							
	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	
① 純水	0	0	0	0	0	0	0	7.0
② 淡水系地下水模擬溶液	185	5	5	5	70	15	400	8.4
③ 海水系地下水模擬溶液	9500	160	1100	320	17000	600	400	7.4

2.2 浸漬溶液の種類

浸漬試験溶液として、建設予定地周辺の地下水データを基に、約 100m 以浅の地下水を想定した淡水系地下水模擬溶液、ならびに約 150m 以深の地下水を想定した海水系地下水模擬溶液を作製した。加えて、溶脱について従来から研究の対象となっている、純水での浸漬試験を実施した。表2に各種浸漬溶液のイオン組成を示す。

2.3 EPMA 面分析

浸漬試験後、供試体を切断し、次の工程で研磨した。まず、#200 研磨紙、および#600 研磨紙上で粗研磨し、次に铸铁盤上で 9μmダイヤモンドスラリーを滴下しながら精密研磨した。さらに、1μmダイヤモンドスラリーをバフ上に滴下しながら鏡面研磨を施した。これをアセトンで脱脂した後、真空乾燥し、Pt 膜を蒸着した。その後、EPMA により供試体の暴露面から約 5mm および約 100μm の深さまで元素分布を分析した。

3. 実験結果および考察

図1に各種溶液への浸漬試験を 52 週間実施した供試体の Ca 濃度分布を示す。比較的溶解性の高い Ca(OH)₂ の含有量を低減することが、溶脱に伴う硬化体組織の多孔化、ならびにそれによる溶脱の促進を抑制するのに効果的であることが知られている¹⁾。本実験においても、P-OrLs よりも Ca(OH)₂ 含有量が少ない P-LF 供試体で溶脱が抑制されることを確かめた。一方、淡水系・海水系地下水模擬溶液に浸漬した P-LF、P-OrLs 供試体については顕著な Ca

キーワード 放射性廃棄物処分、長期耐久性、溶脱、EPMA 面分析、地下水

連絡先 〒270-1166 千葉県我孫子市我孫子 1646 (財)電力中央研究所内 TEL04-7179-6211

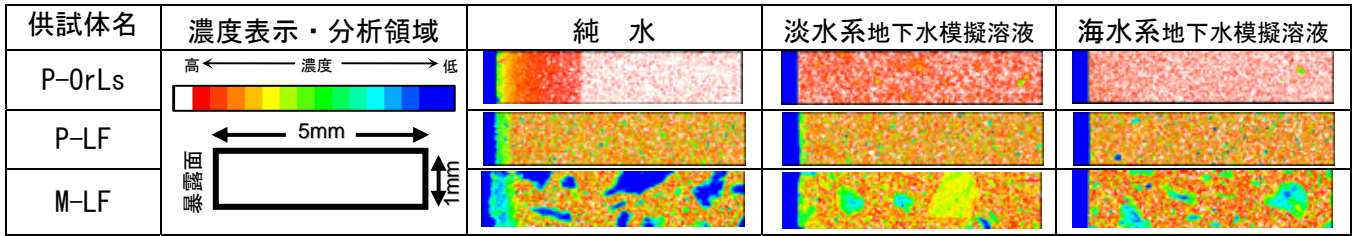


図1 各種溶液に浸漬した供試体のCa分布

濃度分布の変化は認められず、この傾向は、より W/P が高い M-LF 供試体においても確認できた。このように、純水浸漬と比較し、本実験で設定した淡水系・海水系地下水模擬溶液への浸漬では、溶脱が抑制されることを明らかにした。

溶脱が抑制される要因として、地下水模擬溶液の含有成分の影響による供試体表層での二次鉱物の沈殿の可能性を考え、海水系地下水模擬溶液に浸漬した、P-LF 供試体暴露面近傍の微小領域（約 100×500 μm）の元素分布分析を行った（図2）。その結果、供試体暴露面において、厚さ20 μm程度のCa, Cの濃縮層が観察された。また、Si, Al, Feの分布を見るとCaおよびCの濃縮層には存在していないことが分かる。浸漬溶液の分析においても、Si, Al, Feの溶出が認められなかったことから、図中の▼印部分が浸漬前の供試体表面であったと考えられる。つまり、CaやCの濃縮層は、供試体表面より外部に成長したものと判断できる。また、この濃縮層にはMgやSの存在も認められ、これらを成分とする化合物の沈殿も示唆された。これに対しNa, K, Clは、CaやCの濃縮層にはほとんど分布しておらず、この濃縮層によって移動が抑制されたものと考えられる。以上より、供試体表面に成長したCaやCの濃縮層によって、溶脱が抑制されたものと推察される。

一方、淡水系地下水模擬溶液に浸漬したP-LF供試体の元素分布（図3）を見ると、はっきりとしたCaやCの濃縮層は確認できずMgやSの濃縮も見られない。しかし、図1で示した様に溶脱は抑制される結果となった。したがって、淡水系地下水模擬溶液への浸漬においても、海水系地下水模擬溶液の場合と同様に、CaやCの濃縮層が形成されているものの、EPMA分析の検出限界以下のものであったと推察される。

4. まとめ

本研究で設定した地下水模擬溶液に浸漬した場合、供試体表面に地下水模擬溶液の含有成分の影響により濃縮層を生じ、この濃縮層によって溶脱が抑制されたものと考えられる。今後は、これら溶脱抑制現象のメカニズムを解明することが望まれる。

参考文献

1) 例えば、 関口 他;各種セメント系材料の溶脱特性の比較「その1」、土木学会第59回年次学術講演会概要集, CS1-034, pp67-68, 2003

謝辞

本論は、日本原燃(株)からの委託研究の成果をもとにしている。委託研究を実施するにあたり、群馬大学 辻教授、八戸工業大学 庄谷教授、東京工業大学 坂井助教授、東北大学 久田助教授、東京大学 石田助教授より貴重なご意見、ご助言を頂戴しました。ここに記して深甚の謝意を表します。

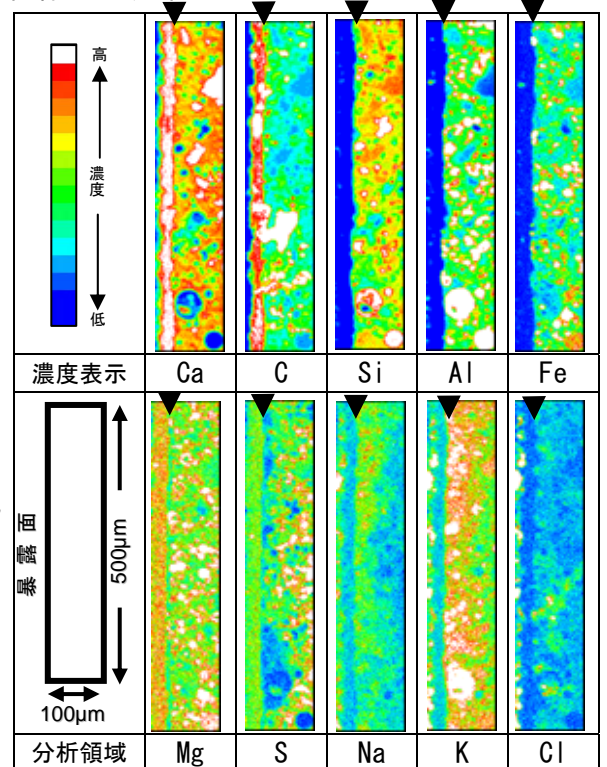


図2 海水系地下水模擬溶液に浸漬した P-LF 供試体の微小領域元素分布分析結果

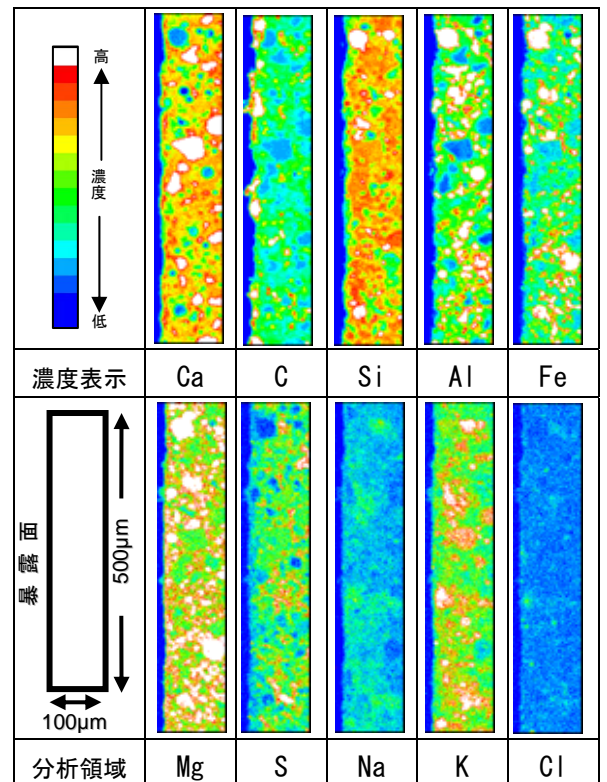


図3 淡水系地下水模擬溶液に浸漬した P-LF 供試体の微小領域元素分布分析結果