

地下水含有成分がセメント硬化体の溶脱に及ぼす影響(4)

—重炭酸イオンによる溶脱抑制現象のメカニズム—

(財) 電力中央研究所 正会員 ○蔵重 勲 廣永 道彦
 (株) セレス 正会員 関口 陽
 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の設計検討が鋭意進められている。処分施設に使用されるセメント系材料(モルタルやコンクリート)は、地下水との接触によってセメント水和物の溶脱が徐々に進行し、放射性物質の漏洩に対するバリア性能が低下してしまうことが懸念されている。また、溶脱に伴う Ca を含んだ高 pH 溶液の作用が、ベントナイト系人工バリアの性能をも低下させることが憂慮されている。以上から、セメント系材料の溶脱に関する評価および対策は、処分施設の設計・安全性評価における最重要課題の一つとして議論されている。

従来、純水を用いた溶脱挙動の把握が、安全側の評価として実施されてきたが、より合理的な評価・対策方法の確立を目指し、地下水含有成分の影響について現在検討している。本論では、各種溶液への供試体浸漬試験や分析試験の結果を紹介し、地下水に含有する重炭酸イオン(HCO_3^-)による溶脱抑制メカニズムについて説明する。

2. 実験概要

本研究では表 1 に示すとおり、処分施設建設候補地周辺の地下水を対象とした淡水系・海水系地下水模擬溶液および純水を用いた浸漬試験(シリーズ A)、ならびに重炭酸イオン濃度の影響に着目した浸漬試験(シリーズ B)を実施した。試験には水粉体比 35%のセメントペースト供試体を使用し、シリーズ A では低熱ポルトランドセメントにフライアッシュを 30%置換した配合(LF)を、シリーズ B では低熱ポルトランドセメント単味の配合(L)を設定した。供試体は 20x20x70mm の端部一面(20x20mm 領域)を開放し、開放面に対して 100mL/cm² の溶液が作用する条件で浸漬した。また、浸漬試験は所定期間ごとに溶液交換する方法を採用した。

表 1 各種浸漬溶液のイオン組成

溶液種類(略号)	組成							pH	実験シリーズ 供試体種類
	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻		
淡水系地下水模擬溶液(GF)	185	5	5	5	70	15	400	8.4	シリーズA ↓ LF供試体
海水系地下水模擬溶液(GS)	9500	160	1100	320	17000	600	400	7.4	
純水:イオン交換水(P)	0	0	0	0	0	0	0	7.0	
高濃度NaHCO ₃ 溶液(CH)	150	0	0	0	0	0	400	8.8	シリーズB ↓ L供試体
中濃度NaHCO ₃ 溶液(CM)	15	0	0	0	0	0	40	8.0	
低濃度NaHCO ₃ 溶液(CL)	1.5	0	0	0	0	0	4	7.0	

使用し、シリーズ A では低熱ポルトランドセメントにフライアッシュを 30%置換した配合(LF)を、シリーズ B では低熱ポルトランドセメント単味の配合(L)を設定した。供試体は 20x20x70mm の端部一面(20x20mm 領域)を開放し、開放面に対して 100mL/cm² の溶液が作用する条件で浸漬した。また、浸漬試験は所定期間ごとに溶液交換する方法を採用した。

3. 溶液に含まれる HCO₃⁻による溶脱抑制現象

3.1 地下水模擬溶液浸漬における溶脱抑制現象(実験シリーズ A)

浸漬試験における溶液の pH 上昇量を供試体からの OH 溶出量と見なして換算し、累積表示したものを図 1 に示す。シリーズ A に関して比較すると、淡水系・海水系地下水模擬溶液浸漬では、純水浸漬に対しそれぞれ 10⁻³、10⁻⁵ 倍程度となる非常に少ない OH 溶出量を示した。また、図 2 に示す Ca²⁺溶出量も、純水浸漬に比べ淡水系地下水模擬溶液浸漬で少なくなることが分かった。

一方、海水系地下水模擬溶液に浸漬した供試体の EPMA 分析によって、溶液との接触面に Ca と C の濃縮層が生じていることを明らかにした(図 3)。これに対し、淡水系地下水模擬溶液浸漬では、明確な濃縮層は認められなかった。さらに、海水系地下水模擬溶液に浸漬した供試体の表面から粉体試料を削り出し、X 線回折分析した結果(図 4)、Calcite (CaCO₃) が主要な鉱物として同定された。また、Ca や C の濃縮層を確認できなかった淡水系地下水模擬溶液に浸漬した供試体においても、同様に Calcite の存在が認められた。

以上の結果から、溶脱抑制のメカニズム概念を図 5 のとおりである。つまり、本実験で設定した HCO₃⁻濃度の地下水模擬溶液への浸漬では、供試体から Ca²⁺が溶出したとしても、溶液に含まれる HCO₃⁻(高 pH 条件では CO₃²⁻としても存在)と容易に反応して、Calcite の沈殿層を供試体表面において成長させ、溶脱の進展を阻害しているものと考えられる。また、海水系地下水模擬溶液浸漬で Calcite の沈殿層の成長が著しかったのは、溶液中に含まれる Ca²⁺濃度が、淡水系地下水模擬溶液と比較して、非常に高かったことが影響したのと考えられる。

キーワード:放射性廃棄物処分, 長期耐久性, 地下水, 溶脱, 重炭酸イオン

連絡先: 〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646 (財)電力中央研究所 地球工学研究所 バックエンド研究センター TEL(04)7182-1181

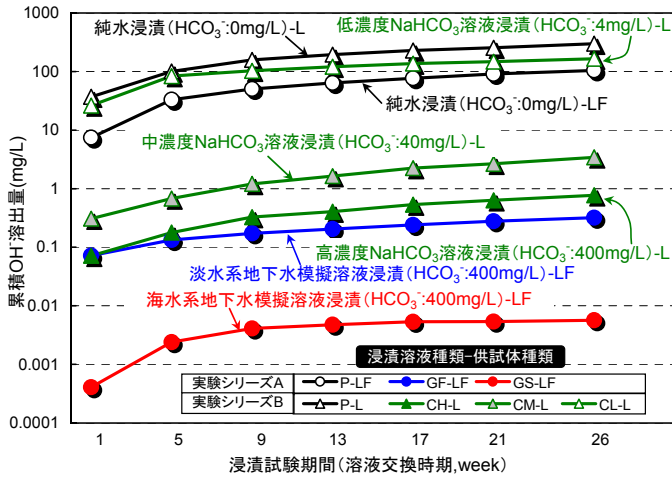


図1 各種溶液浸漬における OH⁻ 溶出量の相違

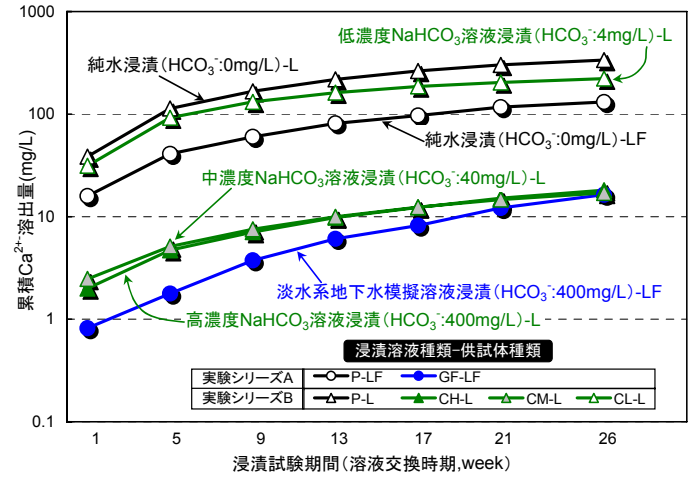


図2 各種溶液浸漬における Ca²⁺ 溶出量の相違

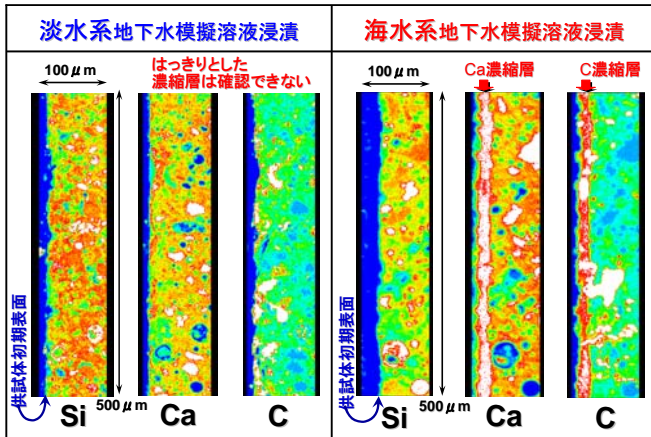


図3 供試体表面の Si, Ca, C の分布(LF 供試体,52 週間後)

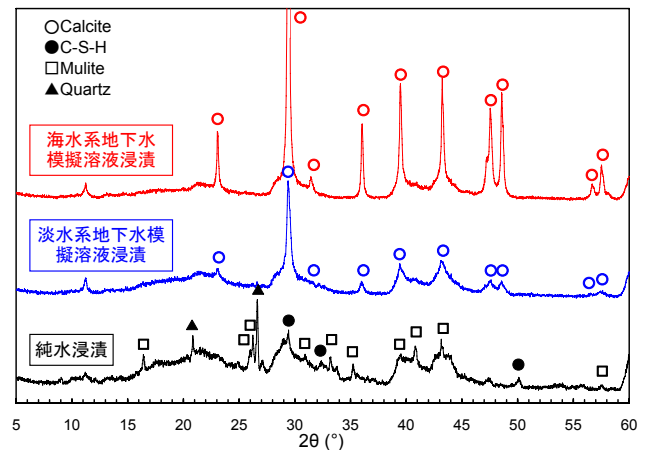


図4 供試体表面の鉱物同定結果(LF 供試体,52 週間後)

3.2 HCO₃⁻ 濃度の影響(実験シリーズ B)

HCO₃⁻ 濃度の異なる溶液への浸漬試験における, OH⁻ 溶出量の相違を図 1 に示す。明らかに HCO₃⁻ 濃度が高いほど OH⁻ 溶出量が少なくなることが分かる。HCO₃⁻ 濃度が 400mg/L の CH 溶液への浸漬では, 同じ HCO₃⁻ 濃度を示す淡水系地下水模擬溶液浸漬における OH⁻ 溶出量と同程度の値を示した。また, Ca²⁺ 溶出量も同様に, HCO₃⁻ 濃度が高いほど低減されることを明らかにした(図 2)。

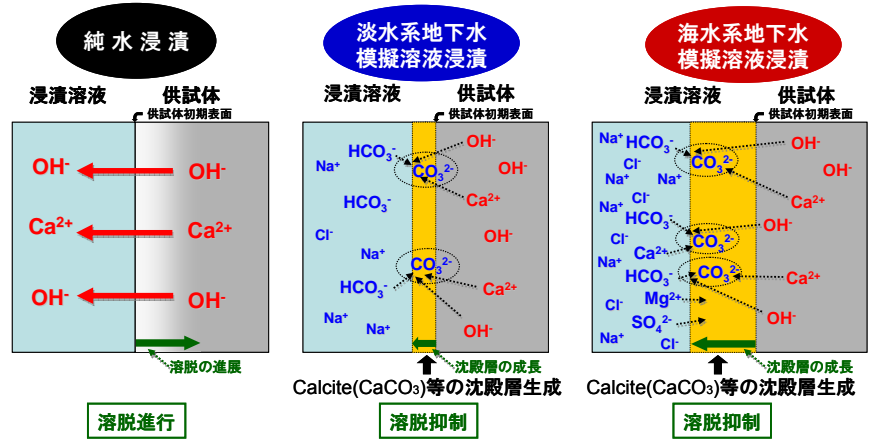


図5 重炭酸イオンによる溶脱抑制現象のメカニズム概念

なお, 淡水系・海水系地下水模擬溶液より 1 桁低い HCO₃⁻ 濃度(40mg/L)の CM 溶液への浸漬においても, 純水浸漬に比べ 1 桁以上小さい OH⁻ ならびに Ca²⁺ の溶出量となることが分かった。以上, 図 5 で示した現象メカニズムの概念に準じて, 浸漬溶液の HCO₃⁻ 濃度が高いほど, Calcite 沈殿層の成長が促進され, 溶脱が抑制されたものと考えられる。

4. まとめ

地下水に含有する重炭酸イオンの影響により, セメント硬化体表面に Calcite の沈殿層を生じ, 溶脱が抑制されることを明らかにした。また, その溶脱抑制程度は, 重炭酸イオン濃度が高いほど顕著であることを示した。今後は, 溶脱抑制メカニズムのより詳細な解明, ならびに溶脱抑制程度の解析的評価に関して検討を加えていく。

謝辞: 本稿には日本原燃(株)からの委託研究の成果が含まれております。委託研究を遂行するにあたり, 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。ここに記しまして深甚の謝意を表します。