

様々な温湿度条件下に長期間暴露したセメント硬化体の空隙構造分析

(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

1. はじめに

使用済核燃料の再処理や原子力発電所において発生する放射性廃棄物を安全に処分するためには、放射性核種に応じて発生する崩壊熱が、処分施設に対して有意に悪影響を及ぼさないことを確認する必要がある。その為には、処分施設に使用される各種材料の物性やバリア性能の温度応答を把握するとともに、それに対応した適切な廃棄体の配置設定、あるいは処分施設の設計を行うことが重要となる。本研究では、セメント系材料について放射性核種の拡散係数や分配係数といったバリア性能の温度応答を評価することを最終目的に、その基礎的検討として、バリア性能と密接に関係する空隙構造に及ぼす温度の影響を実験的に調べた。また、セメント硬化体の空隙構造変化に対する主要な影響因子として湿度にも着目し、併せて検討した。その結果、本実験範囲内(温度:60, 80℃, 湿度:40, 90%RH および水中)では、温度が高いほど水銀圧入法で測定した総細孔量が上昇し、湿度 40%RH の条件では細孔径のピークが大きな径にシフトするなどの傾向が確かめられ、これらの空隙構造変化は拡散係数等に影響を及ぼすものと推察された。現状では、材料物性への影響を考慮して例えば 60~80℃の範囲内で温度制限値を設定し検討されているが、温度条件に加えて、湿度の影響も考慮しセメント系材料部材の時空間的な物性変化を把握する必要性が示唆された。

2. 実験概要

(1)供試体:普通ポルトランドセメントを使用し、W/C=35, 55%のセメントペースト供試体(それぞれの略号 O35, O55, 20x20x80mm)を作製した。混練開始から 24 時間後に脱型し、その後材齢約 1 年まで 20℃の湿空中(底面に水を貯めた容器中)で養生した。

(2)暴露条件:温度条件(60, 80℃), 湿度条件(40, 90%RH および水中)をそれぞれ変化させた合計 6 種類の環境に、全面開放した供試体を 6 ヶ月間暴露した。なお、暴露試験は大気中 CO₂ の影響を除外する目的で、N₂ 雰囲気中に制御したグローブボックス内にて実施した。

(3)分析条件:暴露試験終了後の供試体内部から 5mm 前後に破碎した試料を取り出し、48 時間 D 乾燥を行った。その後、水銀の表面張力 0.484N/m, 水銀と試料の接触角 130° の条件で、3.3nm~360μm の範囲の細孔径について、水銀圧入式ポロシメータを用い分析した。測定は 2 回行い、その平均値を用いて評価した。また、細孔量は、ポロシメータ分析時に測定された試料のかさ密度を用いて、単位体積当たりの細孔量(cm³/cm³)に換算した。

3. 実験結果および考察

3.1 温度が空隙構造に及ぼす影響

図 1 は、O35 供試体について、処分施設閉鎖後のごく初期における施設内部まで水分飽和が及んでいない高湿度環境を想定した湿度 90%RH 暴露において温度の影響を比較したものである。初期試料の空隙構造と比較し、60 および 80℃に暴露したものでは、水銀圧入式ポロシメータにおいて測定される 10nm 以上の細孔が減少して、それ以下の細孔が増加し、温度が高いほどその傾向は顕著であった。また、温度が高くなるほど総細孔量が増加した。図 2 に示す水中暴露における温度影響についても同様な空隙構造の変化を示した。ここで、水中暴露といった常時水と接する状態で総細孔量が初期試料に比べ増加したことについては興味深い。常温下での水中養生でも同様な実験結果が報告されており¹⁾、検出限界を超えた数 nm 以下の細孔の影響なども一因として考えられ、水銀圧入法の分析条件や適用範囲についてはさらなる検討が必要であると考えられる。一方、図 3 に示す湿度 40%RH に暴露した O35 供試体の測定結果では、初期試料と比較して、明らかに 10nm 以下の一般にゲル空隙と呼ばれる細孔が大幅に減少し、物質移動抵抗性と密接な関係があるとされるしきい細孔径²⁾が、より大きな径へとシフトしていることが分かる。

W/C が比較的高い条件の O55 供試体について、各暴露環境における空隙構造変化をそれぞれ図 4~6 に示す。湿度 90%RH および水中暴露では、O35 供試体で見られた温度が高くなるほど 10nm 前後の細孔量が増加するといった

キーワード:放射性廃棄物処分, 廃棄体発熱, 変質, 温度, 湿度, 空隙構造

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

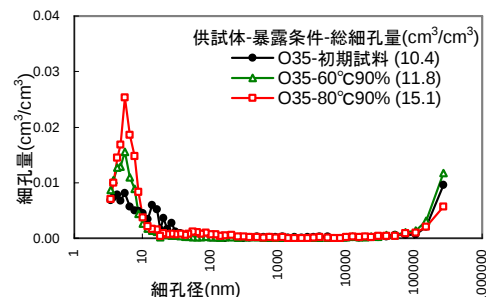


図1 湿度 90%RH 暴露における
温度の影響(O35 供試体)

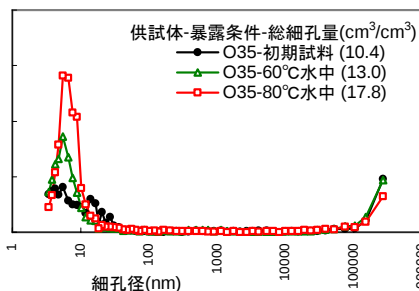


図2 水中暴露における
温度の影響(O35 供試体)

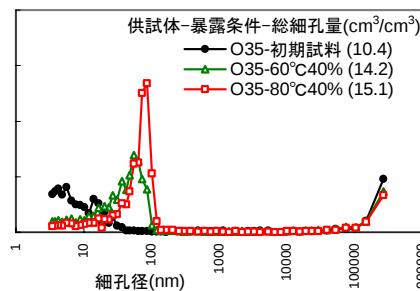


図3 湿度 40%RH 暴露における
温度の影響(O35 供試体)

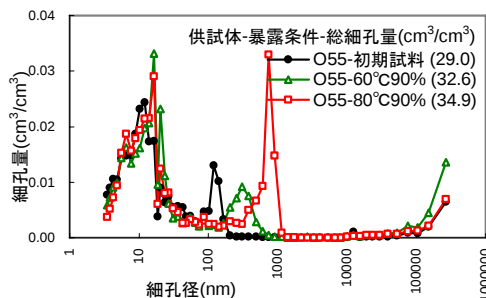


図4 湿度 90%RH 暴露における
温度の影響(O55 供試体)

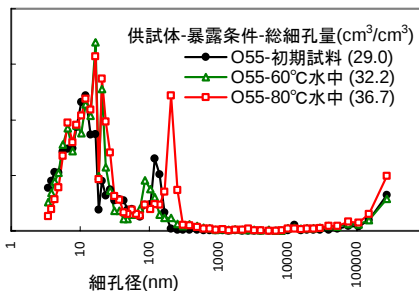


図5 水中暴露における
温度の影響(O55 供試体)

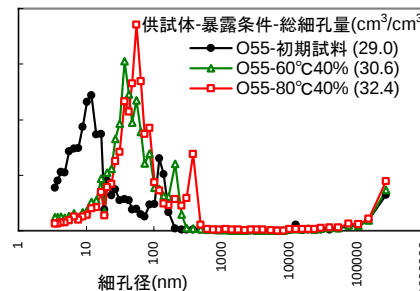


図6 湿度 40%RH 暴露における
温度の影響(O55 供試体)

現象は顕著ではなく、100nm 以上の毛細管空隙が大きく増加し、しきい細孔径が大きい径にシフトする結果となった。また、湿度 40%RH 暴露においては、同様なしきい細孔径のシフトに加えて、図 3 で見られたゲル空隙の現象が認められた。

3.2 湿度が空隙構造に及ぼす影響

図 7~10 は、各温度条件において、湿度が空隙構造に与える影響を、供試体ごとに比較したものである。いずれの温度、供試体種類においても、湿度 40%RH に暴露した場合、ゲル空隙の減少、ならびにしきい細孔径のシフトが著しいことが分かる。他方、O55 供試体では、湿度 90%RH 条件でしきい細孔径が最も大きくなるなど、メカニズムの理解が難しい現象も見られ、セメント水和物の化学的変質なども併せて検討する必要があるものと考えられる。

4. まとめ

セメントペースト供試体を様々な温湿度条件下に 6 ヶ月間暴露した結果、セメント硬化体の空隙構造に及ぼす温度および湿度の影響を定量的に把握した。今後は、これら空隙構造の変化メカニズムの詳細分析とともに、セメント水和物の変質に関する検討も行い、各種イオンの拡散係数や分配係数といったバリア性能に及ぼす影響について実験的に調べていく予定である。

参考文献

- 岡崎慎一郎, 八木翼, 岸利治, 矢島哲司: 養生が強度と物質移動抵抗性に及ぼす影響感度の相違に関する研究, セメント・コンクリート論文集, No.60, pp.227-234, 2006
- 後藤孝治, 魚本健人: ポルトランドセメントの水和反応による硬化体細孔構造のモデル化, 土木学会論文集, No.520, V-28, pp.203-211, 1995

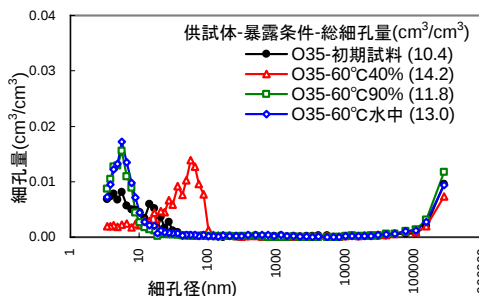


図7 温度 60°C 暴露における
湿度の影響(O35 供試体)

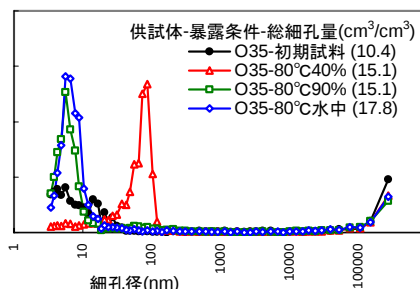


図8 温度 80°C 暴露における
湿度の影響(O35 供試体)

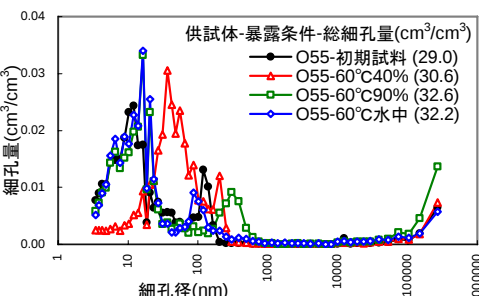


図9 温度 60°C 暴露における
湿度の影響(O55 供試体)

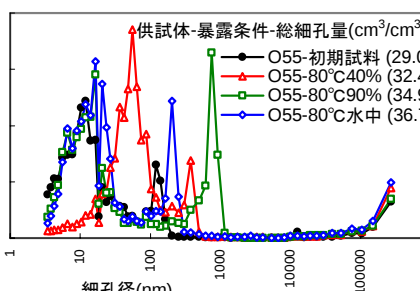


図10 温度 80°C 暴露における
湿度の影響(O55 供試体)