

セメント系材料の実験的溶脱評価における溶液フロー型試験の適用検討

(株)セレス 正会員 ○関口 陽 非会員 實方 彰
(財)電力中央研究所 正会員 蔵重 勲 廣永 道彦

1. はじめに

低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分では、様々な部位にセメント系材料が用いられる。処分施設に使用されるセメント系材料は、地下水の影響により緩やかにセメント水和物が溶脱し、その結果、組織の多孔化によって放射性核種の漏出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。これまでの研究で、室内試験における炭酸水素イオンを含んだ溶液への浸漬において、セメント硬化体表面に Calcite の沈澱を生じ、溶脱が抑制されることが報告されている^{1),2)}。この溶脱抑制効果が実環境においても生ずる現象であるか確かめるため、現場にて実際の地下水を用いた浸漬試験を実施することが求められている。しかし、従来提案されている溶脱試験方法³⁾では、浸漬溶液の交換など人手が必要なものや、加圧透水のための大型実験設備が必要な方法など、現場試験への適用に当たってはいくつかの課題が挙げられる。本報告では、現場にて比較的簡便で人手を要しない溶液フロー型試験の提案を行い、従来の浸漬法と試験結果を比較することで、現場試験への適用性について検討を行った。

2. 溶液フロー型試験の概要

図1に示す溶液フロー型試験は、アクリル製セル内にエポキシ樹脂を用いて埋め込んだ供試体に、一定の流量で連続的に溶液を接触させ、採取溶液の成分や供試体の変質を分析することによって溶脱を評価するものである。以下、試験条件について概説する。

(a)溶液種類:試験に使用した溶液種類とその組成を表1に示す。純水は、従来の浸漬法との溶脱挙動を比較するために用いた。また、浸漬試験において溶脱が促進および抑制されるといった対照的な実験結果の報告がある、それぞれ NaCl 溶液⁴⁾と NaHCO₃ 溶液^{1),2)}を用い、本試験法においても同様な現象が生じるか確かめた。

(b)溶液フロー:純水を用いた試験については、設定流量を 0.03, 0.1, 0.3cm³/min と変化させ、その溶脱に対する影響を調べた。

(c)供試体種類:表2にセメントペーストの配合を示す。供試体は、20×20×80mmの角柱とし、50℃セメント平衡溶液中で3ヶ月、ならびに20℃湿空雰囲気下で1年間養生した。その後、端部から10mmを切断し、20×20×70mmの一面暴露供試体とした。

(d)測定項目:溶液採取は最初の4週間はほぼ24時間毎に行い、その後21週目までは約1週間毎に行った。採取した溶液について、pH および Ca, Si 濃度を測定し、各種条件の影響を比較評価した。なお、溶液フロー型試験は大気中 CO₂ の影響を除去する目的で、N₂ 雰囲気中に制御したグローブボックス内で行った。

3. 実験結果および考察

図2は、純水フロー試験における流量の影響について、溶液の pH 上昇を供試体からの OH 溶出量と見なして換算した供試体単位暴露面積当たりの溶出量を、試験期間を横軸に取り比較したものである。また、Ca, Si 溶出量に対する流量の影響を図3および図4にそれぞれ示す。従来の溶液交換型浸漬法^{例えば2)}と比較し、溶液フロー型試験では一定試験期間に対して OH, Ca, Si のいずれの溶出量も増加した。また、純水の流量が大きくなるほど、それらの溶出量も多くなる傾向が認められた。これらのことから、連続的に溶液と接触させる溶液フロー型試験法では、溶液交換等人手を比較的要さず、純水によるセメント系材料の溶脱を、溶液の流量に応じて促進できることが分かった。しかしながら、図4に示すように、流量の増大に

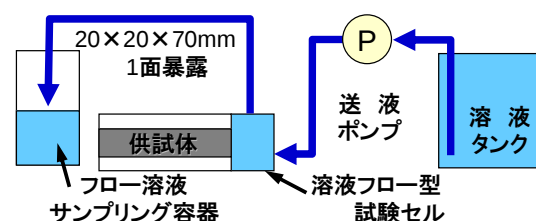


図1 溶液フロー型試験の概略

表1 溶液種類

溶液種類	略号	実測濃度 mg/dm ³			実測 pH
		Na ⁺	Cl ⁻	HCO ₃ ⁻	
純水	P	0	0	0	7.0(理論値)
NaCl 溶液	S	11000	17600	0	5.7
NaHCO ₃ 溶液	C	13.6	0	39.5 ⁵⁾	8.2

表2 セメントペーストの配合

セメント種類	水セメント比	略号
普通ポルトランドセメント	0.55	O
低熱ポルトランドセメント		L

キーワード: 放射性廃棄物処分, 長期耐久性, 地下水, 溶脱, 試験方法, 溶液フロー型試験

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

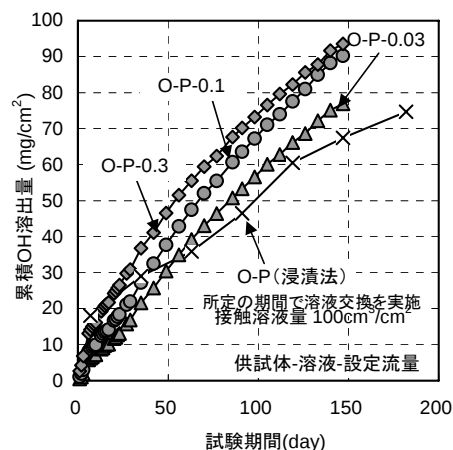


図2 流量がOH溶出量に及ぼす影響

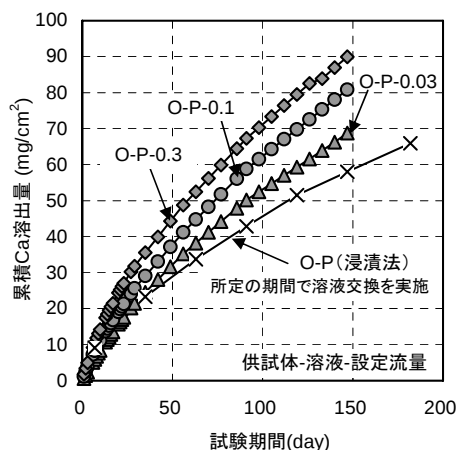


図3 流量がCa溶出量に及ぼす影響

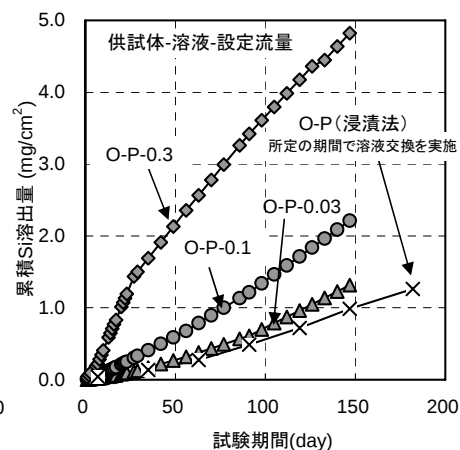


図4 流量がSi溶出量に及ぼす影響

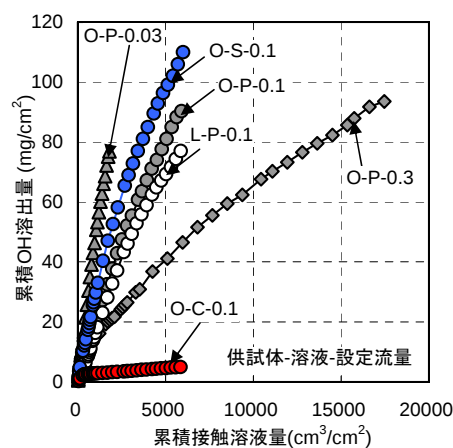


図5 各種溶液接触におけるOH溶出量

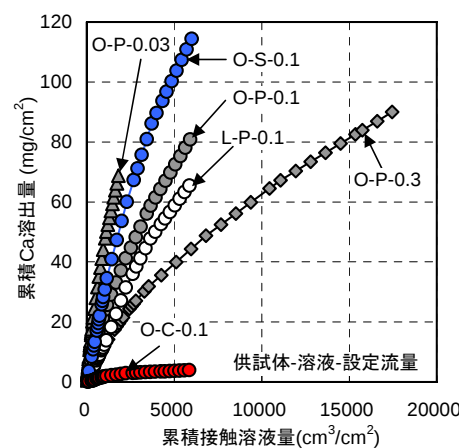


図6 各種溶液接触におけるCa溶出量

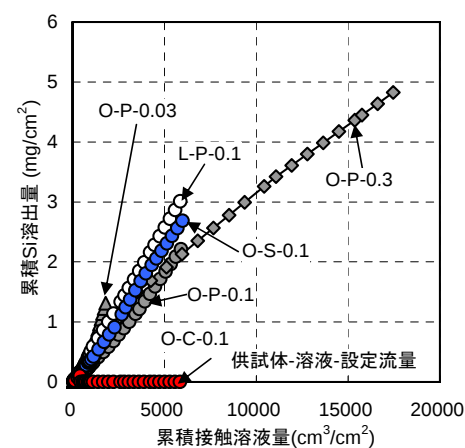


図7 各種溶液接触におけるSi溶出量

伴って、Portlandite ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) の溶脱による Ca や OH の溶出量の増加比よりも大きな割合で Si 溶出量が増加する傾向も認められ、C-S-H (カルシウムシリケート水和物) の溶脱への影響など、適切な流量の設定についてはさらなる検討が必要と考えられる。

図5～7は、OH、Ca、Siのそれぞれの累積溶出量と累積接触溶液量の関係に及ぼす純水流量、セメント種類、溶液種類の影響を比較したものである。まず、流量の影響については、供試体との溶液接触時間が相対的に長くなる、流量が小さい条件で接触溶液量当たりの溶出量が多くなることが確かめられた。また、普通ポルトランドセメントを使用した供試体よりも Portlandite の含有量が少ない低熱ポルトランドセメント供試体では、Ca や OH の溶出量が低減され、Si 溶出量が増加した。これらの結果は、従来の浸漬法において得られる傾向と同様である。さらに、NaCl 溶液を用いた試験では、純水の場合と比較して OH、Ca、Si の溶出量が増加し、溶脱が促進されることが分かった。NaHCO₃ 溶液を用いた試験では、溶脱が抑制される現象を溶液フロー型試験でも再現可能なことを明らかにし、現場試験への適用性を見出すことができた。

4. まとめ

現場においてセメント系材料の地下水変質評価実験を実施するに当たり、比較的人手を要さず、長期連続試験が可能な溶液フロー型試験の提案を行い、その適用性を評価した。その結果、従来の浸漬法において確認されている諸現象と同様な傾向を再現することができることを確かめた。今後は、現場での溶液フロー型試験の実施に向けて、詳細条件の設定を進めるとともに、本試験方法より得られるデータの数値解析的評価への利用方法について検討する予定である。

参考文献

- 1) 蔵重勲, 廣永道彦, 関口陽, 庭瀬一仁: 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), 土木学会第61回年次学術講演会概要集, CS05-042, pp.289-290, 2006
- 2) 蔵重勲, 廣永道彦: 地下水中炭酸水素イオンによるセメント系材料の溶脱抑制メカニズムに関する検討(その1), 電力中央研究所研究報告, N06028, 2007
- 3) コンクリートの化学的侵食・溶脱に関する研究の現状, 土木学会コンクリート委員会化学的侵食・溶脱研究小委員会, pp.127-155, 2003
- 4) 関口陽, 蔵重勲, 廣永道彦, 庭瀬一仁: 地下水含有成分がセメント硬化体の溶脱に及ぼす影響(3), 土木学会第61回年次学術講演会概要集, CS05-041, pp.287-288, 2006
- 5) 低レベル放射性廃棄物処分の次期埋設に関する本格調査結果について, 日本原燃株式会社, プレスリリース資料, 2006