余裕深度処分試験空洞地下水模擬溶液を用いたセメント系材料の溶脱評価実験

日本原燃（株）　正会員　○庭瀬 一仁　伊藤 裕紀
（財）電力中央研究所　正会員　蔵重 勲　廣永 道彦

1. はじめに

放射能レベルの比較的高い低レベル放射性廃棄物について，地下約 50～100m の深度に処分する（余裕深度処分）施設の設計検討が進められている。処分施設に供するセメント系材料は，地下水との長期接触によって溶脱が徐々に進行し，これがセメント系人工バリアに及ぶと放射性核種漏洩に対するバリア性能の低下を招いてしまう。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低下させることも懸念されている。このようなセメント系材料の溶脱に対しこれまで多くの検討が加えられ，種々の溶脱評価手法が提案されている[例えば 1),2)]。今後は，溶脱に対する地下水組成の影響など，実環境をより反映した現象の解明や評価手法の確立が期待される。

これに対し，近年，地下水に溶存する程度の炭酸水素イオン濃度で，溶脱が抑制される可能性を実験的に示した研究成果が報告されている[3),4)]。この溶脱抑制現象は，セメント系材料の長期耐久性評価および処分施設設計の合理化に寄与する可能性があるため，建設予定サイト周辺地下水の作用下においても同様な現象を生じるか，実験的に検証することとした。本研究では，純水を比較対象として余裕深度処分に際し建設した試験空洞の周辺地下水を模擬した溶液にセメント系材料を浸漬し，溶出成分や硬化体の変質について分析した。本稿は，その実験結果を示し，試験空洞地下水模擬溶液浸漬においても上記溶脱抑制現象が認められたことを報告するものである。

2. 実験概要

表 1 に示す 4 種類の配合にしたがい，20x20x80mm のセメントペーストおよびモルタル供試体を作製した。図 1 のように，養生完了後，供試体全面を樹脂で被覆し，端面 10mm を切断することで一面暴露供試体に加工した。

浸漬試験は，単位暴露面積に対して 100cm^3/cm^2 の溶液量が作用する条件で行い，浸漬試験開始後 1 週目に溶液を交換し，その後 26 週目までは約 4 週間ごとに溶液を交換した。浸漬溶液の種類は表 2 のとおりであり，試験空洞地下水模擬溶液の組成は，実際の地下水分析データ[5)]を参考にして設定した。なお，浸漬試験は，大気中 CO_2 の影響を除外する目的で，N_2 雰囲気に制御可能なグローブボックス内にて実施した。

本実験における評価項目は，溶液交換までの浸漬期間における溶液の pH 変化および供試体からの Ca 溶出量とし，供試体内部の変質評価として Ca/Si モル比分布，ならびにビッカース硬さ分布も分析した。

3. 実験結果および考察

図 2 は，純水および試験空洞地下水模擬溶液浸漬における溶液の pH 変化を比較したものである。純水浸漬では，初期 pH=7.0 から 11 前後まで上昇しているのに対し，試験空洞地下水模擬溶液浸漬では，初期 pH=7.6 から 9～10 程度までの上昇にとどまった。溶液の pH 変化量を供試体からの OH 溶出量と見なし，単位暴露面積当たりの累積 OH 溶出量を累積接触溶液量と比較したものを図 3 に示す。純水浸漬においては，既往の知見[例えば 1)]のとおり水結合材比が低いほど，また比較的溶解しやすいセメント水和物である Portlandite の含有量が少ないほど OH 溶出量が少なくなった。これに対し，試験空洞地下水模擬溶液浸

表 1　浸漬試験に用いた供試体の種類および配合

配合略号	供試体種類	セメント種類	混和材	水結合材比 mass ratio	砂結合材比 mass ratio
PO35	セメントペースト	普通PC	－	0.35	－
PO55				0.55	
PLF35		低熱PC	フライアッシュ（30vol.%内割）	0.35	
MLF50	モルタル			0.50	2.0

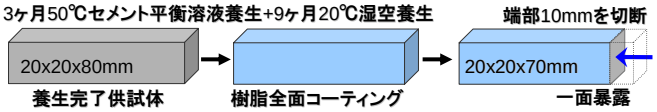

図 1　浸漬試験用供試体の形状および寸法

表 2　浸漬試験に用いた純水および試験空洞地下水模擬溶液の組成と pH

浸漬溶液種類	略号	設定濃度 mg/dm^3							実測濃度平均値 mg/dm^3							実測pH平均値
		Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Cl^-	SO_4^{2-}	HCO_3^-	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Cl^-	SO_4^{2-}	HCO_3^-	
純水	P	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	7.0（理論値）
試験空洞地下水模擬溶液	J	18	1	5	4	16	13	38	14.4	1.4	4.2	4.1	14.7	12.5	31.8	7.6

キーワード：低レベル放射性廃棄物，余裕深度処分，セメント系材料，長期耐久性，溶脱，地下水組成
連絡先：〒039-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駮字野附 504-22 日本原燃（株） 埋設事業部 開発設計部 TEL (0175)72-3305

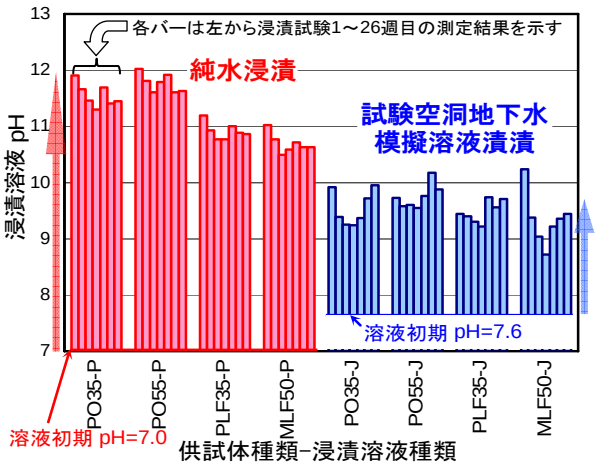

図 2 浸漬溶液の pH 変化

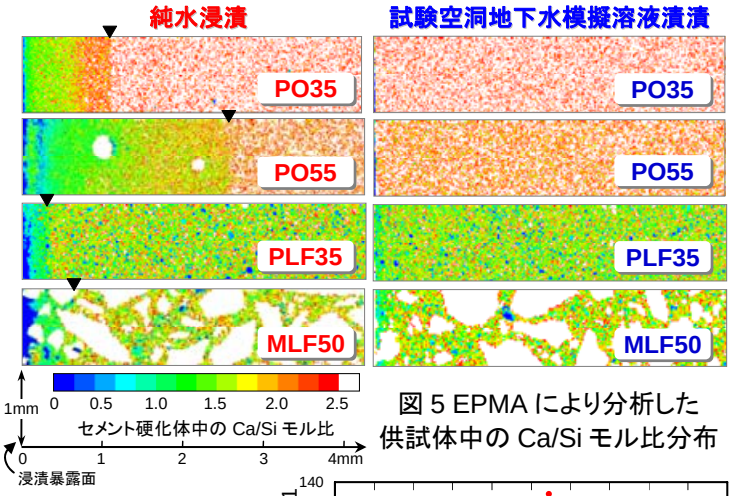

図 5 EPMA により分析した
供試体中の Ca/Si モル比分布

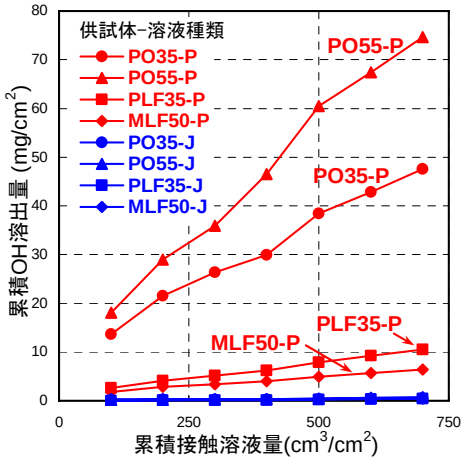

図 3 供試体からの OH 溶出量

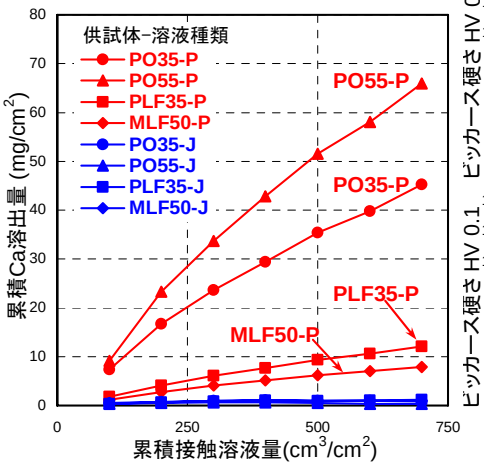

図 4 供試体からの Ca 溶出量

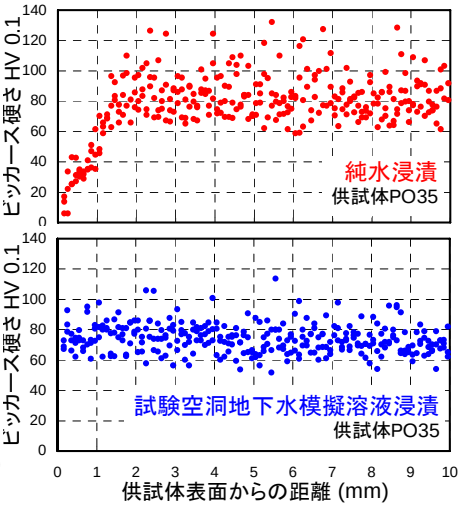

図 6 供試体中のビッカース硬さ分布

漬では，いずれの供試体においても OH の溶出が大幅に抑制された。図 4 に示す Ca 溶出量においても，同様に試験空洞地下水模擬溶液に浸漬した供試体で少ない値を示した。

このような試験空洞地下水模擬溶液における溶脱の抑制を確認するため，EPMA を用いて供試体中の Ca/Si モル比分布を分析した。その結果，図 5 のとおり，試験空洞地下水模擬溶液に浸漬した供試体では，浸漬暴露面からの明確な Ca/Si モル比の低下は認められず，溶脱が抑制されることが分かった。さらに，図 6 に示すビッカース硬さ分布の測定結果からも，試験空洞地下水模擬溶液浸漬では空隙構造の多孔化など顕著な組織変化は見られなかった。以上の分析結果から明らかとなった試験空洞地下水模擬溶液浸漬における溶脱抑制現象は，供試体表面の X 線回折分析によって Calcite の強いピークが認められたことから，既往の報告 [4]と同様のメカニズムに基づくものと判断された。

4．まとめ

余裕深度処分試験空洞の周辺地下水を模擬した溶液に浸漬した場合でも，溶液中炭酸水素イオンの影響により供試体表面に Calcite の沈殿を生じ，溶脱が抑制されることを明らかにした。今後は，現場において実際の地下水を使用したセメント系材料浸漬試験を実施する予定である。

参考文献

1) 横関康祐：コンクリートからの成分溶出を対象とした千年レベルの長期耐久性設計に関する研究，東京工業大学学位論文，2003
2) 半井健一郎，石田哲也，前川宏一，中根理史：セメント系多孔体の水和組織形成とイオン平衡を考慮した強相関カルシウム溶脱連成解析，土木学会論文集，No.802，V-69，pp.79-96，2005
3) 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)-重炭酸イオンによる溶脱抑制現象のメカニズム-，土木学会第 61 回年次学術講演会講演概要集，CS05-042，pp.289-290，2006.9
4) 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
5) 低レベル放射性廃棄物の次期埋設に関する本各調査結果について，日本原燃株式会社プレスリリース資料，2006

謝辞

本研究を実施するに当たりまして，群馬大学辻教授，八戸工業大学庄谷教授，東京工業大学坂井准教授，東北大学久田准教授，東京大学石田准教授より，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。