

## 炭酸塩混合ベントナイトと隣接したセメントの溶脱と炭酸カルシウムの生成

広島大学大学院 正会員 ○半井健一郎  
 (株) 太平洋コンサルタント 柴田 真仁  
 坂本 浩幸

## 1. はじめに

放射性廃棄物処分施設では、緩衝材や低透水層としてベントナイト系材料の使用が検討されているが、隣接するセメント系材料からのカルシウムや水酸化物イオンなどの溶脱成分の作用によって変質し、バリア性能が低下する可能性がある。

著者らは、あらかじめベントナイト中に炭酸塩を混合することにより、セメント系材料から溶脱したカルシウムイオンとの反応によって境界部にカルサイトを生成させ、両材料の変質を抑制する手法を提案している<sup>1),2)</sup>。本検討は、同時に、数値解析の結果としては多数の報告があるものの実験的には十分な検証が行われていない、2次鉱物の生成による閉塞効果の検証をも期待している。

これまでの電気泳動による促進劣化試験<sup>1)</sup>や浸漬試験<sup>2)</sup>の結果、炭酸塩をベントナイトに混合することで、明確な変質抑制効果が確認できた。特に本稿では、浸漬試験における浸漬期間の違いに着目し、変質抑制効果の検討を行うこととした。

## 2. 実験概要

本研究では、既往のブロック状試験体の浸漬試験<sup>3),4)</sup>と同じ条件を採用した。図-1に浸漬試験の概要を示す。

ベントナイトはクニゲル V1 を用い、炭酸ナトリウム  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  をベントナイトの乾燥質量に対して、1%または4%混合した。比較のため、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  を混合しない無混合試験体も作製した。乾燥密度は、 $1.6 \times 10^3 \text{ kg/cm}^3$  とした。セメントペーストは普通ポルトランドセメントを用い、水セメント比を 60% とした。50℃の温水中で 28 日間の養生を行った後、直径 20mm 試料を厚さ 10mm に切断した。

切断加工したセメントペーストを、圧縮したベントナイトの両側に配し、アクリルセルに入れた試験体を用い、図-1に示す浸漬試験を行った。試験前に真空飽水处理をし、中央のベントナイトまで飽水したことを側面から確認した。浸漬水には 50ml のイオン交換水を用い、浸漬期

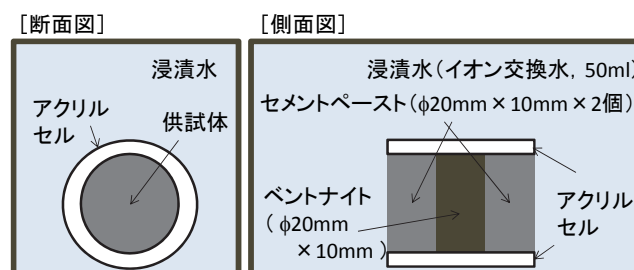


図-1 浸漬試験の概要

間は 4, 10, 20 ヶ月とした。試験体名は、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  無混合を O-BL, 1%混合を O-NC1, 4%混合を O-NC4 とした。

浸漬試験後、試験体を解体・切断し、断面における EPMA 分析とセメントペースト表層部(厚さ 1mm)における熱分析を行った。各試験方法は文献<sup>3),4)</sup>と同一とし、O-BL の 10, 20 ヶ月のデータも同文献から引用した。

## 3. 実験結果と考察

## 3. 1 溶脱深さ

図-2に EPMA 分析で得られた CaO の平均濃度の分布から求めたセメントペーストの溶脱深さの経時変化を示す。ここで、一般的な溶脱挙動は  $\sqrt{t}$  則に従って進行することが知られていることから、時間軸を平方根で示した。また、線形関係が認められた、O-BL の全データおよび O-NC1 の浸漬 4 ヶ月以降のデータについての近似直線を示した。

O-BL では、溶脱深さが大きく、また、時間の平方根に比例して溶脱が進行した。一方、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  を混合した試験体では、無混合と比べて溶脱深さが小さく、混合による変質抑制効果が確認された。特に、O-NC4 では 4 ヶ月以降の溶脱深さがほぼ一定で、劣化は進行しなかった。O-NC1 では、4 ヶ月以降は浸漬期間の平方根に比例して溶脱が進行した。線形区間の比例定数は、O-BL の場合には  $0.44 \text{ mm}/\sqrt{\text{月}}$ 、O-NC1 の場合には  $0.24 \text{ mm}/\sqrt{\text{月}}$  であり、溶脱の進行が停止しなかった O-NC1 であっても、進行速度については抑制効果が確認された。

キーワード 人工バリア、ベントナイト、セメント、溶脱、炭酸ナトリウム、炭酸カルシウム

連絡先 〒739-8527 広島県東広島市鏡山 1-4-1 広島大学大学院工学研究院社会環境空間部門 TEL 082-424-7531

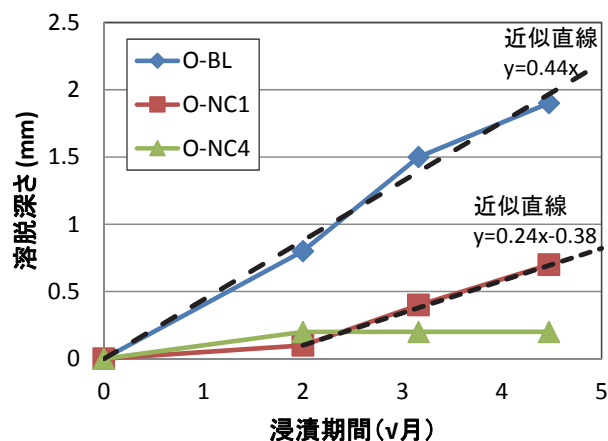
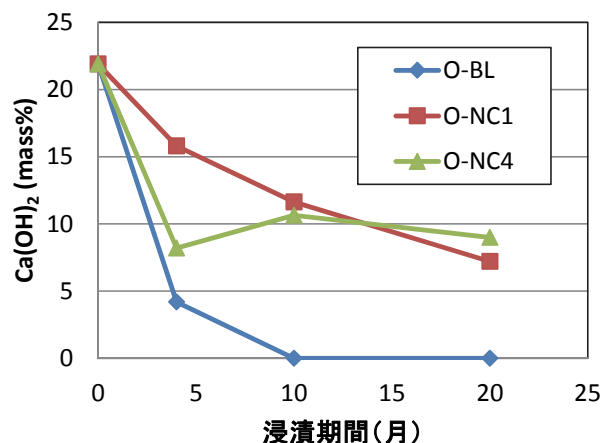


図-2 セメントペーストの溶脱深さ

図-3 セメントペースト表層の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 

### 3. 2 炭酸カルシウムの生成

熱分析で得られた水酸化カルシウム  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  の残存量の経時変化を図-3 に、炭酸化カルシウム  $\text{CaCO}_3$  の生成量の経時変化を図-4 に示す。ここで、O-NC1 および O-NC4 の溶脱深さは、分析対象である表層 1mm の範囲内にとどまっていた(図-2)。

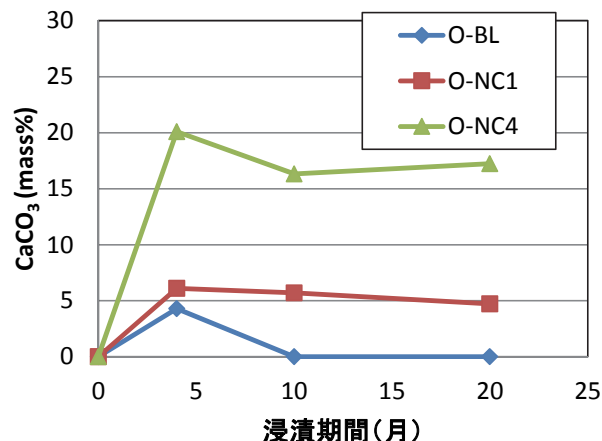
O-BL では溶脱に伴い  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  が大きく減少し、溶脱深さが 1.5mm となった浸漬期間 10 ヶ月で消失した。

O-NC1 では、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$  の減少は O-BL よりも抑制されたものの、徐々に進行した。また、 $\text{CaCO}_3$  の生成が確認されたが、4 ヶ月以後は 5% 強でほぼ一定値であった。ベントナイトに混合した  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  の全量が、熱分析の測定領域(表層 1mm)での反応に消費された場合、生成される  $\text{CaCO}_3$  は 6.9mass% であり、実験値とほぼ一致した。すなわち、混合した  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  がすべて消費されたが、溶脱を停止するだけの  $\text{CaCO}_3$  が生成しなかったといえる。

O-NC4 では、4 ヶ月までの  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  の減少と  $\text{CaCO}_3$  の生成が顕著であったが、以降はともに変化がなかった。O-NC1 と同様に、混合した  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  の全量が  $\text{CaCO}_3$  の生成に消費されたとすると、 $\text{CaCO}_3$  の生成量は 27.7% となり、実測値の 20% 弱と比較するとやや大きくなった。一方、生成量と比較した 4 ヶ月以降の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  の差分は平均 12.6mass% であるが、これがすべて  $\text{CaCO}_3$  になったと仮定すると 17.0mass% となる。これは、実測された 4 ヶ月以降の  $\text{CaCO}_3$  量の平均値である 17.9mass% とほぼ一致する。すなわち、溶解した  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  のほぼすべてが  $\text{CaCO}_3$  として生成し、溶脱停止後には余剰の炭酸イオンは消費されなかったものと考えられる。

### 4. まとめ

ベントナイトにあらかじめ炭酸ナトリウムを混合しておく

図-4 セメントペースト表層の  $\text{CaCO}_3$ 

ことで、セメントペースト表層には  $\text{CaCO}_3$  が生成し、溶脱が抑制された。

### 謝辞

本研究の一部は、原安協－太平洋－間組ニアフィールド共同体で実施した「ニアフィールド長期挙動を考慮した設計・安全評価のための情報整備」(原子力発電環境整備機構(NUMO)委託)によるものです。ここに感謝いたします。

### 参考文献

- 1) 半井健一郎ほか: 隣接ベントナイトへの炭酸塩の混合がセメント系材料の溶脱に及ぼす影響, コンクリート工学年次論文集, 第 32 巻, No.1, pp.713-718, 2010.
- 2) 半井健一郎ほか: 炭酸塩混合ベントナイトとセメントペーストの境界部変質実験, 秋の大会, 日本原子力学会 2012.
- 3) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 19 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術人工バリア長期性能評価技術開発報告書, 2008.
- 4) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 20 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術人工バリア長期性能評価技術開発報告書, 2009.