

セメント硬化体の細孔径分布とヨウ化セシウム溶液の拡散透過性の関係

大阪大学大学院 学生会員 ○工藤 正智
金沢大学大学院 学生会員 久司 成利

日本原子力研究開発機構 正会員 三原 守弘
金沢大学大学院 正会員 鳥居 和之

1. 研究背景

福島第一原子力発電所の事故により、発生した放射性物質の処分として、中間廃棄処理施設の建設計画が環境省により進められている。30年間貯蔵する中間廃棄処理施設を設計するにあたり、施設外部への放射性物質の拡散透過を抑制できるセメント系材料の選択が必要である。また、コンクリートへ放射性物質が拡散透過する上で、コンクリートの細孔径分布による放射性物質との拡散透過性の関係性を把握することが重要である。しかし、放射性物質の各種セメント系材料を用いたコンクリート内部の細孔径分布と放射性物質の拡散透過性についての研究数は少ないのが現状である。そこで本研究では、セメント硬化体の細孔径分布と放射性物質の拡散透過性の関係性を検討した。

2. 実験概要

セメント硬化体に対するヨウ化セシウム溶液の拡散透過性を把握するため、セシウムイオン (Cs^+) 及びヨウ化物イオン (I^-) に対し有効な拡散透過性を同時に調べることが可能である拡散透過セル法を実験的に使用した¹⁾。また、セメント硬化体に対し水銀圧入式ポロシメータ法により細孔径分布を算出した。セメント系材料の種類は、普通ポルトランドセメント (OPC)、フライアッシュ (FA, OPC 置換率 15%, 30%としたものをそれぞれ FA15%, FA30%)、高炉スラグ微粉末 (BFS, OPC 置換率 40%としたものを BFS40%) の4種類とした。また、各種セメント硬化体に対して水セメント比 0.3 及び 0.5、材齢 28 日の試験体を作製した。本研究で使用したセメント及び鉱物混和材の物理的・化学的性質を表 2.1 に示す。

2.1 拡散透過セル法

PCV アクリル製のリング(厚さ 5mm, 内径 30mm)をガラスプレートに設置し、手練りによりセメント硬化体打設した。初期乾燥や水分ロスを防ぐため打設経過 24 時間後、試験体を養生層(水酸化カルシウム溶液中、室温 20 度、湿度 60%の一定条件下)に浸漬養生した。浸漬養生終了後、試験体を取り出し、アクリル製の拡散透過セル装置のトレーサーセル・測定用セルの二つの溶液層を仕切る境界部分にセメント硬化体を設置した。トレーサーセル及び測定用セル内に対しヨウ化セシウムの溶液、蒸留水をそれぞれ 100ml 注入した。拡散透過セル法は温度 20°Cの恒温室内で実施し、測定用セルから 2 日毎に 2ml ずつ溶液を抽出し、所定の濃度に希釈後、イオンクロマトグラフィ (PIA-1000) を使用し、 Cs^+ 及び I^- の濃度を約 30 日間測定した。イオン濃度と経過日数のグラフより得られる拡散初期のプロットの最小二乗近似による直線を算出し、Fick の第 1 法則よりそれぞれのイオンの拡散係数を算出した。

2.2 水銀圧入式ポロシメータ法

厚さ 5mm, 内径 30mm のセメント硬化体の試験体に対し、水銀圧入式ポロシメータ法を実施した。各圧力における水銀圧入量を、その時点までに水銀が圧入された細孔量とし、細孔径分布を求めた。

3. 実験結果

3.1 細孔径分布の特徴

図 3.1 に示すように水セメント比 0.5 において、OPC, FA15%, FA30%の試験体では約 0.05 μ m の付近でピークが生じたのに対し、BFS40%においては細孔直径ピークが大幅に減少し、約 0.02 μ m 付近でピークが生じた。こ

表 2.1 使用材料の物理・化学的性質

試験体	密度 (g/cm ³)	ブレン値 (cm ² /g)	化学組成 (%)										
			lg.Loss	SiO ₂	AlO ₃	FeO ₃	CaO	MgO	TiO ₂	MnO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
OPC	3.2	3300	-	21.2	4.9	3.4	66.4	1.3	0.0	0.0	1.9	0.3	0.5
FA	2.4	4780	2.0	53.6	28.9	6.7	3.2	0.8	1.4	0.1	0.2	0.3	0.7
BFS	2.9	6030	1.0	33	13.6	0.1	42.6	5.8	0.6	0.2	3.1	0.2	0.2

キーワード 細孔径分布, 拡散透過性, ヨウ化セシウム, 水銀圧入式ポロシメータ法

連絡先 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1 大阪大学大学院工学研究科地球総合工学専攻 TEL06-6879-7618

これは、BFS のスラグ粒子のポゾラン反応による組織の微細化により、細孔直径のピークが大きく減少したものと推定される。また、水セメント比 0.3 よりも 0.5 の方が細孔直径のピークの減少が顕著であった。一方、図 3.2 に示すように、細孔径分布は BFS40% に比べ OPC, FA15% の試験体では、Cs⁺及び I⁻、各水セメント比において 0.019μm~0.300μm の細孔の割合が増加し、BFS40% の試験体は 0.003μm~0.019μm の細孔の割合が増加した。これは、ポゾラン反応の進行による組織の微細化に伴い、0.003μm~0.019μm の細孔が増加することが言われており、細孔直径と細孔容積の傾向とも一致した²⁾。また、水セメント比を 0.3 から 0.5 とすると、全細孔容積が約 3 倍の値になった。

3.2 細孔径分布と拡散透過性の関係

細孔径分布と透過拡散性の関係を図 3.2 に示す。浸漬材齢 28 日の試験体では BFS40%、OPC、FA15% の順で、Cs⁺及び I⁻とも、0.003μm~0.019μm の細孔の割合が減少し、0.019μm~0.300μm の細孔の割合が増加するにつれて、拡散係数が増加するといった相関が得られた。特に、BFS40% の試験体では、この関係が顕著であった。これは、水和反応の進行によるセメント硬化体の内部組織が微細化し細孔径が小さくなり、不連続な空隙を形成することで移動経路が増長したものと示唆される。また、本研究で使用した BFS はブレン値 6000cm²/g と高品質なものであり、早期よりスラグの反応が進行することで拡散係数が大きく低下したと考えられる。これより、水銀圧入ポロシメータ法により得られる粗大な空隙 (0.019μm~0.300μm) と拡散係数との間に相関が得られることが明確となった。その一方で、他の試験体と比べて FA30% の試験体は細孔容積と拡散係数との関係に相関は得られなかった。これは、浸漬材齢 28 日ではフライアッシュのポゾラン反応の進行が十分に発揮されないことが原因と考えられる。また、水セメント比を大きくすると、0.019μm~0.300μm の細孔の増加に伴う Cs⁺及び I⁻の拡散係数の増加が顕著であった。

4. 結論

BFS40% の試験体では、ポゾラン反応の進行により 0.003μm~0.019μm の細孔の割合が増加し、0.019μm~0.300μm の細孔の割合が減少するのに伴い、セシウムイオン及びヨウ素イオンの拡散係数が低下した。

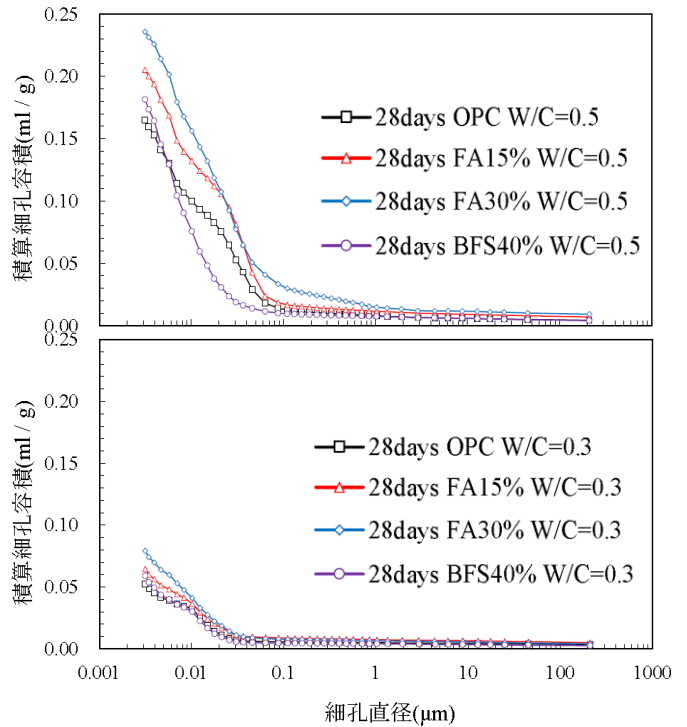


図 3.1 細孔径分布曲線

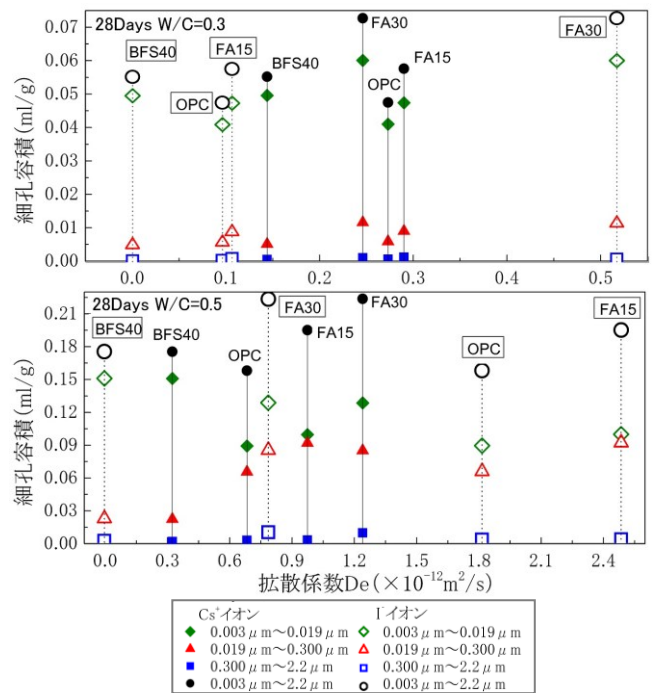


図 3.2 各径の細孔容積と両イオンの拡散係数の関係

参考文献

- 1) 浅野壮洋, 津田誠, 野村昌弘, 鳥居和之: セメント硬化体への NaCl 及び CaCl₂ 溶液の拡散・透過性の比較検討, コンクリート工学年次論文集, Vol.36, No.1, pp.892-897, 2014
- 2) 山本武志, 金津努: フライアッシュのポゾラン反応に伴う組織の緻密化と強度発現のメカニズムの実験的考察, 土木学会論文集 E, Vol.63, NO.1, 52-65, 2007