# 硬化過程のモルタルを対象とした放射線分解ガス放出速度の評価

| 原子力発電環境整備機構 | 正会員 | ○後藤 | 考裕 | 北川 | 義人 |    |   |
|-------------|-----|-----|----|----|----|----|---|
| 鹿島建設株式会社    | 非会員 | 石川  | 俊介 | 澤田 | 祥平 | 紺谷 | 修 |

## 1. 目的

TRU 等廃棄物処分場において,操業期間中,処分坑道内で廃棄体パッケージ周辺をモルタルで充填する場合<sup>1)</sup>,モルタル中に含まれる水分から放射線分解によって水素ガスの放出が予想される.モルタルから放出される水素ガスの量に応じて換気による強制排気などの設備の設計が必要となるため,定量的にガス発生量を評価する必要がある.しかし,セメント系材料からの放射線分解による水素ガスの放出速度が自由水量に依存することが知られている一方で,自由水量が変化する硬化過程のモルタルを対象としたガンマ線照射試験による水素ガス発生速度に係るデータは取得されていない.そこで,本試験ではモルタルの硬化過程と水素ガスの放出速度の関係を評価することを目的とする.

#### 2. 実験方法

モルタルの使用材料及び配合をそれぞれ表 1,表 2 に示す. 試験時にはフレッシュ試験を実施し,配合が実際の作業環境を 考慮して設定した要件(自己充填性を有していること(スラン プフロー≧65cm)等)を満足していることを確認した.

本試験では、<sup>60</sup>Coを線源とするガンマ線照射によってモルタ ルから放出される水素量を測定するための試験(以下,ガンマ 線照射試験)を5ケース、硬化過程のモルタルにおける自由水 量を測定するための試験(以下,自由水量測定試験)を3ケー ス実施した.パラメータは線量率,温度,凝結遅延剤の有無と した.試験条件の詳細を表3に示す.

ガンマ線照射試験は,量子科学技術研究開発機構高崎量子応 用研究所で実施した.ガンマ線照射試験の試験体系を図 1(a) に示す.モルタルを φ 50mm×100mm の SUS 製型枠に流し込 み,SUS 製試験容器内に3体を封入し,SUS 製試験容器外側 から加熱した状態でガンマ線を照射した.また,試験開始時の モルタルの水和反応を揃えるため,フレッシュ試験からガンマ 線照射開始までを90分程度とした.試験システムは既往の研 究<sup>2)</sup>を参考とした.試験中はキャリアガスとしてアルゴンを 100 ml/min でSUS 製試験容器内に流入させ,流出側に取り付 けたガスクロマトグラフで水素放出速度の経時変化を測定し た.また,モルタル中の水分の収支を確認するため,流出側に

| 表1 使用材料 |     |  |  |  |  |  |
|---------|-----|--|--|--|--|--|
| 使用材料    | 記号  | 概要   |  |  |  |  |
| 水       | W   | 佐倉市上水道水  |  |  |  |  |
| セメント    | С   | 普通ボルトランドセメント<br>太平洋セメント社製,密度=3.16g/cm <sup>3</sup>                   |  |  |  |  |
| 石灰石微粉末  | LS2 | 宫城石灰工業株式会社製<br>密度=2.68g/cm <sup>3</sup> ,比表面積=5470cm <sup>2</sup> /g |  |  |  |  |
| 細骨材     | s   | 石灰砕砂(八戸松館産)<br>表乾密度=2.66g/cm <sup>3</sup> , F.M.=2.68, 微粒分量=2.6%     |  |  |  |  |
| 混和剤     | SP3 | 高性能 AE 減水剤 標準形 (I種)<br>マスターグレニウム SP8LS, BASF ジャパン社<br>製              |  |  |  |  |
|         | Ad  | 減水剤 遅延形(I種)<br>マスターポゾリス No.89, BASF ジャパン社製                           |  |  |  |  |
|         | As  | 空気量調整剤<br>マスターエア 404, BASF ジャパン社製                                    |  |  |  |  |
|         | 表 2 | モルタルの配合  |  |  |  |  |

| 水準    | W/C<br>(%) | W/P<br>(%) | 単位量(kg/m <sup>3</sup> ) |     |     |      |        |       |       |  |
|-------|------------|------------|-------------------------|-----|-----|------|--------|-------|-------|--|
|       |            |            | w                       | 粉体P |     | G    | SP3    | Ad    | As    |  |
|       |            |            |                         | С   | LS2 | 5    | (P×%)  | (P×%) | (P×%) |  |
| 遅延剤 無 | 55.0 28.   | 001        | 990                     | 410 | 401 | 1000 | 0.80   | _     | 0.010 |  |
| 遅延剤 有 |            | 28.1       | 230                     | 410 | 401 | 1232 | 2 0.80 | 0.30  | 0.016 |  |

**表3** 試験ケース





水分捕集管を取り付け、その重量変化を測定することで蒸発による水分減少の経時変化を測定した. 試験期間 は、モルタルの水和反応が十分に進行する 28 日間までとした. 試験終了後、取り出したモルタルを 105℃で 乾燥させて質量減量を測定することにより 28 日時点での自由水量を測定した. 次に、自由水量測定試験の試 験体系を図 1(b)に示す. 試験開始までの手順はガンマ線を照射しないことを除きガンマ線照射試験と同様であ る.1,3,7 日後に SUS 製試験容器内からモルタル供試体を 1 体ずつ取り出し、それぞれ自由水量を測定した.

キーワード 地層処分, TRU 等廃棄物, 放射線分解, ガンマ線, 操業安全
連絡先 〒108-0014 東京都港区芝4丁目1-23 三田 NN ビル2階 TEL03-6311-6109

#### 3. 試験結果

硬化過程のモルタルからの水素放出速度の経時変化を図 2 に示 す. 3~6 日後にガスクロマトグラフと制御 PC の通信不具合があ り、データ欠損が生じた. この間も温度は一定に保たれており、 初期の水素放出のピーク期間を終えていることから、内挿が可能 であると判断し、試験を継続した.

全ケースとも試験開始後1日の間に水素放出速度はシャープな ピークを示し、その後緩やかに低下した.このピークは以降の水 素放出速度の2~3倍程度であり、モルタル練混ぜ直後は水素放出 速度が一時的に上昇することを確認した.ピークの時期は水和反 応が最も緩やかに進むケース②で最も遅いため、このピークはモ ルタルの水和反応が影響している可能性が考えられた.また、水 素放出速度が緩やかになった後は、線量率が高いケースほど水素 放出速度は大きくなった.同一線量率では温度、遅延剤の有無に よる水素放出速度への影響は明確には認められなかった.次に、 モルタル中の自由水量の経時変化を図3に示す.水和反応が急速 に進む初期に自由水量が大きく減少した.また、蒸発量が多い高 温の60℃の方が40℃よりも自由水量は大きく減少した.

得られた自由水量,水素放出速度,ガンマ線吸収線量率から水 素発生のG値を算出した.ただし,7日後までの試験初期にSUS 製試験容器内に結露が観察されたため,この結露水も自由水量に 含めて算出し,1,3,7日後のG値は参考値扱いとした.図4は 自由水のみが吸収したエネルギーにより評価したG値(以下,G<sub>FW</sub> 値)である.いずれの期間もバルク水に対するG値(0.45個/100eV) <sup>3)</sup>を上回っている.これは固体と水の界面による影響と考えられ, 既往の文献<sup>4)</sup>に示されている高比表面積の無機酸化物と水の割合 を変化させた照射試験の結果と整合している.一方,図5に示す 通り,モルタルが吸収したエネルギーにより評価したG値(以下, G<sub>M</sub>値)は,G<sub>FW</sub>値よりも全体的に小さくなる.G<sub>M</sub>値は時間の経 過とともに減少した.

# **4.定量評価において採用するG値**

自由水のみが吸収したエネルギーにより評価した場合,自由水量の減少に伴い,水と固体の界面による影響の割合が大きくなるため G<sub>FW</sub>値は大きくなる.しかし,実際の水素放出速度は図2の通り,2日目以降は緩やかに低下しており,G<sub>FW</sub>値の増加より自由水量の減少が支配的であることが分かる.操業環境での自由水量の経時変化の評価が困難であるとして,練混ぜ時の水が全て自由水のまま存在し続けると仮定し,G<sub>FW</sub>値を用いて水素放出速度を評価すると,過度に保守的になることが懸念される.水素放出速度の評価方法については,G<sub>M</sub>値を用いた評価や原子力学会標準で実施した評価方法<sup>5)</sup>等も参考にして検討する必要があると考えられる.

## 参考文献

1)原子力発電環境整備機構(2018):NUMO-TR-18-03. 2)澤田祥平ほか(2013):日本建築学会大会学術講演梗概集,北海道, p.1311-1312. 3)Draganic I.G. and Draganic Z. D. (1971): Academic Press, New York, U.S.A. 4)Kumagai et al. (2013): Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 50, No. 2, p.130-138. 5)日本原子力学会(2009): AESJ-SC-F014:2009.



