

セシウム吸着ゼオライト固化技術における HPC-FA 系セメント固化体の空隙特性

八戸工業高等専門学校 学生会員 ○馬渡大壮
 八戸工業高等専門学校 正会員 庭瀬一仁
 北海道大学 名誉教授 非会員 佐藤正知

1. はじめに

福島第一原子力発電所の事故に伴い、廃炉に向けた技術開発が急務となっている。現在、炉心冷却により発生する放射性汚染水は、セシウム（以下、Cs）をゼオライトに吸着することで処理されている。Cs は発生量と被ばく線量低減の観点から最重要な核種であり、Cs を吸着したゼオライトは発熱が低減されるまでの間、中間管理される必要がある。その中間管理方法としてセメント固化技術は、ガラス固化やジオポリマーによる固化法と比較して、経済性や製作性の観点から優れている。しかし、各種閉じ込めを要求性能とするセメント系材料は、力学特性、低拡散性、長期劣化特性に加え、硬化段階での高温履歴と水の放射化分解を考慮した材料設計が不可欠である。そこで本研究では、水の放射化分解を考慮した HPC-FA 系セメント固化体の配合により、Cs 吸着性に優れた人工ゼオライト生成型コンクリート（以下、人工ゼオライト）を混入した供試体を作製し、電気泳動法による塩化物イオンの実効拡散試験(JSCE-G571)とリニアトラバース法による気泡測定(ASTM C 457)を実施した。また現実的には固化体は高放射線環境で作製されるため、極力簡便な製作方法が要求される。そのため本実験では、人工ゼオライト中にセメントミルクを自己充填させて供試体を作製した。

2. 試験概要

本実験の示方配合を表 1 に示す。水の放射化分解や発熱によりセメントの水和に必要な水が時間とともに減少することや、硬化後の余剰水が放射化に伴って水素ガス発生量の増加が予想されるため、結合剤として早強ポルトランドセメントを用いた。加えて、長期的には溶解度が低く、緻密な固化体が要求されるためフライアッシュを混入した。また、人工

ゼオライトの吸水による流動性の低下を見込み、W/B を 60% とし、高性能 AE 減水剤を使用した。形状は $\phi 100 \times 100$ mm の円柱供試体とし、絶乾状態の人工ゼオライトをモールドに自然落下し、その隙間にセメントミルクを自己充填して作製した。人工ゼオライトの粒径は 5~10mm に調整している。打込み後は 20°C 恒温室で 1 日静置し、脱型した。電気泳動法による塩化物イオンの拡散試験では、円柱供試体を厚さ 5cm にカットし、実効拡散係数を測定した。図 1 に本実験で使用した拡散セル写真示す。また、気泡測定はマニュアルリニアトラバース法により行った。測定範囲は 50×50 mm とし、トラバースピッチを 2.5mm とした。各試験結果は、上記の条件で作製した脱型直後の供試体と 1 ヶ月間水中養生（20°C）した供試体に加え、W/C が 55% の一般的な配合による普通コンクリートの計 3 ケースにおいて比較した。

表 1 HPC-FA 系セメント固化体の示方配合

W/B (%)	W/P (%)	W (kg/m ³)	単位置			SP (×P (%))
			粉体P		LS (kg/m ³)	
			結合材B			
			HPC (kg/m ³)	FA (kg/m ³)		
60	40.6	515	566	292	410	1.8

ここで、HPC:早強ポルトランドセメント FA:フライアッシュ
 LS:石灰石微粉末 SP:高性能 AE 減水剤



図 1 本実験で使用した拡散セル

3. 試験結果と考察

3.1. 電気泳動による拡散試験結果

電気泳動法により求めた塩化物イオンの実効拡散係数を図1に示す。実効拡散係数は、HPC-FA系セメント固化体では $1.367 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、OPCコンクリートでは $3.182 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ となった。OPCコンクリートは養生期間が1ヵ月と短いことから、粗骨材の遷移帯の影響によって実効拡散係数は比較的高くなったと考えられる。一方、HPC-FA系セメント固化体では、人工ゼオライトによってセメントペースト中の水が吸水されることにより、W/B低下による緻密化とゼオライト界面での遷移帯生成が抑制され、実効拡散係数が低下したことが考えられる。図3に、本実験と類似する条件で生成された人工ゼオライトの細孔径分布¹⁾を示す。本実験で用いた人工ゼオライトは180℃で生成されている。図3より、180℃で生成された人工ゼオライト中には0.01 μm前後の細孔が多く存在していることが分かる。人工ゼオライトは多孔質な材料であるが、その空隙は0.01 μm前後と微細であるため塩化物イオンの実効拡散係数が比較的小さくなる結果が得られたと考えられる。

3.2. 気泡測定結果

マニュアルトラバース法により測定した気泡径分布を図4に示す。図5にOPCコンクリートとHPC-FA系セメント固化体の断面写真を示す。OPCコンクリートにおいては、気泡が50 μm以下に集中しており、図5では1mm程度の円形状の気泡が多いことが確認できる。一方、HPC-FA系セメント固化体では350 μm以上の気泡が多く、図5では不均一で粗大な空隙が確認できる。粗大な空隙ができる理由としては、ゼオライトの吸水により流動性が低下し、充填が十分行われなかったことが考えられる。

4. まとめ

ゼオライト中に自己充填して作製したHPC-FA系セメント固化体において、実効拡散係数はOPCコンクリートに比べて小さいが粗大な空隙が多い結果となった。今後は、セメントミルクに対するゼオライトの吸水量を定量化し、流動性と所要の水セメント比を確保するための配合を定めた後、再度、その物質透過性と空隙構造を明らかにする必要がある。

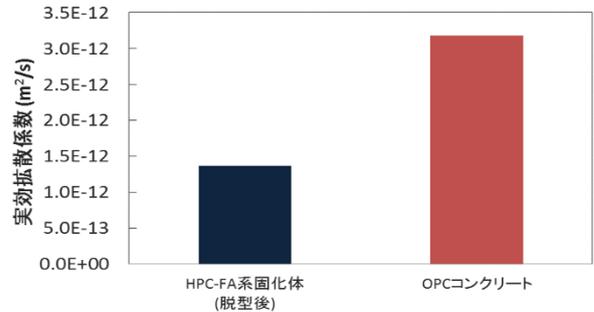


図2 電気泳動拡散試験による実効拡散係数

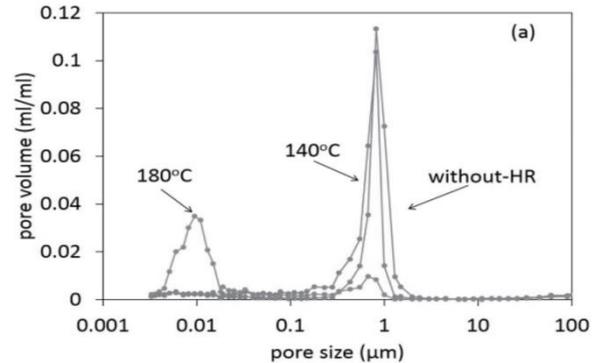


図3 人工ゼオライトの細孔径分布(180℃)¹⁾

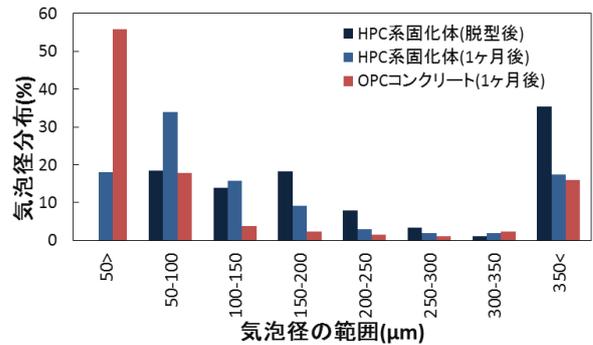


図4 リニアトラバース法による気泡径分布

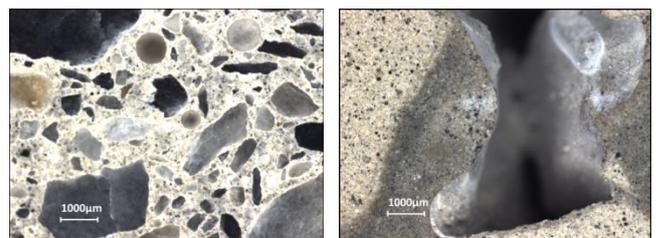


図5 各供試体断面

5. 謝辞

本研究で用いた人工ゼオライトは、電力中央研究所より提供を受けたものである。電力中央研究所の山本武志氏をはじめとする関係者の皆様に深く感謝いたします。

6. 参考文献

1) 杉山友明, 井野場誠治, 大塚拓, 日恵井佳子, 山本武志: ゼオライト高含有硬化体の微細組織と陽イオン交換能, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 64, No.8, pp.634-640, Aug.2015