

スメクタイト溶解へのアルカリ溶液の種類の影響

背景

低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分施設を安全で合理的に設計するためには、人工バリアの長期耐久性評価を精度良く行う必要がある。余裕深度処分施設で低透水層として使用されるベントナイト系材料は、セメント系材料の溶脱に伴って生成するアルカリ性の溶液の影響で、ベントナイトの構成鉱物が溶解し、期待される特性が変化することが懸念されている。特に、スメクタイトはベントナイトの低透水性や膨潤力と密接に関係する主成分鉱物であるから、セメント系材料の溶脱水の組成を考慮した条件でのスメクタイトの溶解挙動を評価することは、低透水層の長期耐久性評価においても処分施設の合理的な設計・性能評価を実施するためにも重要である。

目的

セメント系材料の溶脱水の組成を考慮した条件でフロースルー溶解実験(図 1、写真 1)を実施し、スメクタイトの溶解挙動を実験的に評価する。

主な成果

1. スメクタイトの溶解に及ぼすアルカリ溶液の種類の影響評価

これまでに報告されているスメクタイトの溶解速度は、NaOH-NaCl や KOH-KCl 溶液中で得られたものしかない。しかし、処分施設で生成するアルカリ溶液はセメント系材料の溶脱に起因する。そのため、セメントの主成分(Ca(OH)₂)を含む Ca(OH)₂-CaCl₂ 溶液中で溶解実験を実施し、既往の結果と比較した。Ca(OH)₂-CaCl₂ 溶液中でのスメクタイトの溶解に起因する SiO₂ の溶出挙動は、既往のものと同様に反応初期に高い溶出を示すものの、その後溶出量は減少し、一定の値を示すようになった(図 2)。一定の値を示すようになった状態(定常状態)における SiO₂ 濃度や Al 濃度を用いてスメクタイトの溶解速度を算出した。その結果、SiO₂ 濃度から算出した溶解速度も Al 濃度から算出した溶解速度もほぼ同様の値を示した。このことは、スメクタイトの溶解が化学量論的に進行していることを示唆している。また、既往の溶解速度と本研究での溶解速度を図 3 に示した。この結果から、アルカリ溶液の種類はスメクタイトの溶解速度の pH 依存性に大きく影響しないことが明らかとなった(図 3)。

2. コンクリート溶脱水中でのスメクタイトの溶解挙動評価

実際のセメント系材料の溶脱水中でのスメクタイトの溶解挙動を評価した。溶脱水の作成に使用したセメント系材料は、フライアッシュ混合低熱セメント(LPC-FA)である。溶解実験の結果、溶脱水の組成によっては液固比が大きな条件下でも二次生成物の沈殿が示唆された。一方で、二次生成物の沈殿が生じなかった溶解実験における溶解速度は、Ca(OH)₂-CaCl₂ 溶液中での溶解速度よりも遅い結果となった(図 4)。このことは、溶脱水中に SiO₂ や Al が含まれることで、溶液組成がスメクタイトの溶解平衡に近づいているために、溶解速度が遅くなったものと推測される。上記の成果により、余裕深度処分施設の環境条件を考慮した溶解速度は、既往の溶解速度(溶解平衡から離れた条件での溶解速度)よりも遅い可能性があることが明らかとなった。

なお、本研究は、東電設計株式会社からの受託研究として実施した。

今後の展開

余裕深度処分施設での人工バリア間(ベントナイト系材料とセメント系材料)の相互作用を評価する。

主 担 当 者 地球工学研究所 バックエンド研究センター 特別契約研究員 横山 信吾

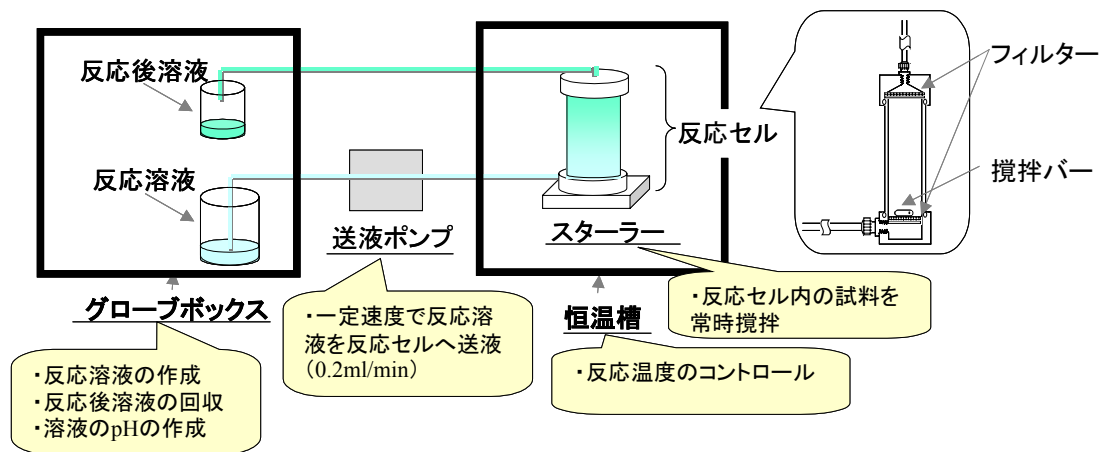


図1 フロースルー溶解実験の概略図

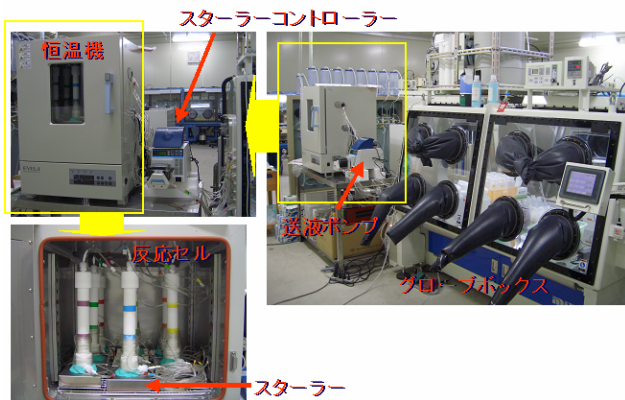


写真1 フロースルー実験装置

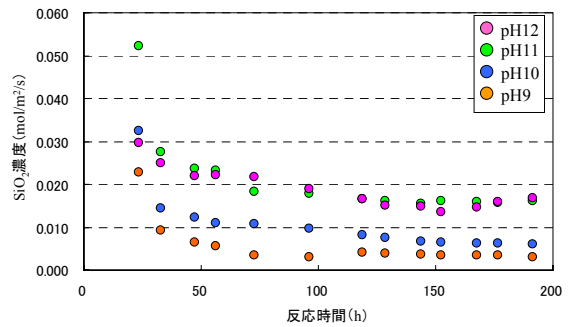


図2 反応後溶液中の溶出 SiO₂ 濃度の経時時変化

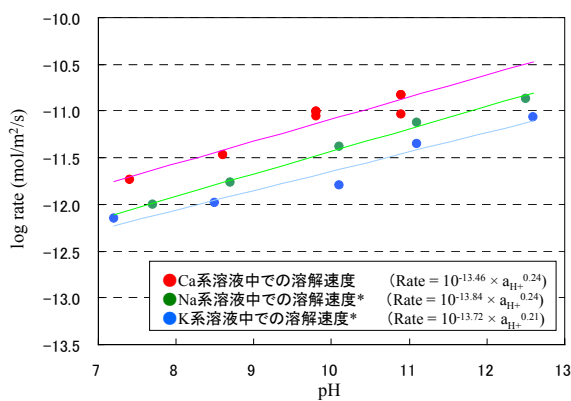


図3 Ca(OH)₂-CaCl₂ 溶液中での溶解速度と pH の関係

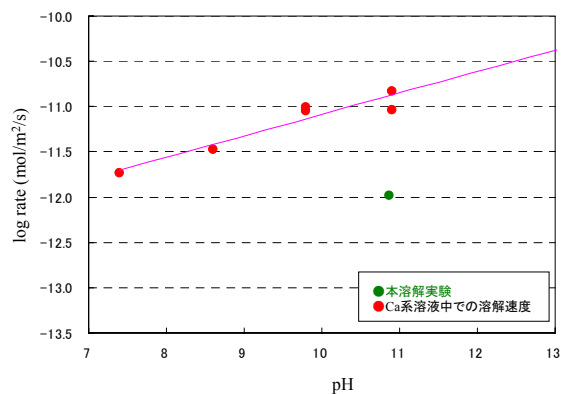


図4 フライアッシュ混合低熱セメント溶脱水中での溶解速度と Ca(OH)₂-CaCl₂ 溶液中での溶解速度

注) 実線の傾きが、溶解速度の pH 依存性を表わす。いずれのアルカリ溶液中の溶解速度もほぼ同様の傾きを示す。*: 既往の成果 (Sato et al. (2004))