

2019A1659

BL28B2

非破壊 CT-XRD 連成法による長期浸漬試験に供した堆積岩とセメント硬化体境界の観察

Observation on Boundary of Cement Hardenings and Sedimentary Rocks in Long Term Immersion Test using Integrated CT-XRD Method

人見 尚
Takashi Hitomi

(株)大林組
Obayashi Co., Ltd.

放射性廃棄物処分場の多重バリアのうちコンクリートが母岩に接して施工された場合を想定し、地下水に接する環境下でのそれぞれの挙動やさらには相互作用の有無の検出を目的とした。母岩の例として、堆積岩の薄片をセメントペースト中に埋設したものを供試体として、幌延地下水を模擬した希釈海水からなる人工地下水を通水し、その前後での変化を X 線 CT と X 線回折を用いて観察した。

キーワード： 高レベル放射性廃棄物処分、岩盤、コンクリート、相互作用、CT-XRD 連成法

背景と研究目的：

大深度地下に建設が検討されている放射性廃棄物処分場では、廃棄体からの核物質の漏えい防止と、周辺地下水の廃棄体への作用を抑制するために、多重バリアが用いられている。

坑道安定性確保のための支保工として、コンクリートが母岩に接するように打設される。内部にはベントナイトが廃棄体を包むように設置され、廃棄体の止水材として用いられる。コンクリートは、母岩の割れ目を通じて地下水に接することになり、構成材料が長期的な観点からは水溶性であるため、徐々に劣化していくものと考えられる。

本報告は、多重バリアのうちコンクリートが母岩に接して施工された場合を想定し、地下水に接する環境下でのそれぞれの挙動やさらには相互作用の有無の検出を目的とする。母岩の例として、スイスで実際検討されている地域に存在する堆積岩である **Opalinus Clay** を対象とした。その薄片をセメントペースト中に埋設したものを供試体として、幌延地下水を模擬した希釈海水からなる人工地下水を通水し、その前後での変化を X 線 CT と X 線回折を用いて観察した結果についてまとめた。なお、幌延堆積岩についても供試体を作製したが、幌延堆積岩のサイズが小さく通水経路から大きく離れる状態であった。通水も実施したが、幌延堆積岩の変化は観察できず、対象から除外した。

実験：

供試体は、中心部に通水用の開口を持つ円筒状のセメント硬化体およびその内部に **Opalinus Clay** の薄片を包埋させたものとした。図 1 に供試体の仕様を示す。供試体全体の大きさは直径 3.6 mm、高さは 5 mm とした。**Opalinus Clay** は縦が 1.5 mm 横が 1.2 mm、高さが 3 mm とした。供試体は、写真 1 に示すアルミニウム製の格納セルのくびれ部分の内部に設置した。くびれ部分は、内径 3.6 mm のアルミパイプでパイプの厚さは 0.3 mm とした。

セメントは普通ポルトランドセメントを用い、水結合材比は 40% のペーストとした。供試体作製から観察までは 28 日間の水中養生を行った。観察は通水試験の前後で行い、通水前の供試体を初期状態として観察し、その後、60 日間の通水を行った後に再度観察した。通水には、海水系地下水を用い、人工海水をイオン交換水で 1/3 程度に希釈したものを用いた。これは、国内の幌延の大深度地下を模擬したものである。アルミニウム製の供試体格納セルの上下にシリコンチューブを接続し、ロータリーポンプで通水を継続した。通水量は 1 時間に 50 cc 程度とした。通水中は空気に触れないよう配慮した。ただし、X 線照射中は、白色光のため低エネルギーの X 線の吸収

が発生し供試体が若干発熱したため、X線照射中の観察において内部は乾燥状態となった。

X線CTの諸元は、エネルギーは25 keV、画素長が2.44 μm、画素数は水平方向に1960、鉛直方向に1440とした。このため断面の視野は、水平方向は4.78 mm、高さ方向は3.51 mmとなった。露光時間は0.4秒、投影数は1500枚で0.12°の角度刻みとした。

X線回折では、BL28B2の白色光源を用い、回折角は10°でエネルギー分散型XRDプロファイルを得た。回折X線のエネルギースペクトルの測定には半導体検出器GLP-16195/10-Pを用いた。エネルギーの分解能は、検出器の仕様上0.5 keV程度となった。入射X線は、水平方向の幅は0.15 mm、鉛直方向は0.05 mmのマイクロビームとした。測定時間は一点あたり5分として、測定期間内は供試体を回転させて多くの結晶情報を取り込むこととした。供試体の回転によって、測定領域は円盤状になり、ビームの強度分布を考慮しそのサイズを求めた結果、直径はおよそ0.2 mm程度となった。なお、従来の粉体を用いたX線回折の観察と異なり、非破壊での観察となるため、供試体内の結晶の方向性によって、ピークの欠落の恐れがある。

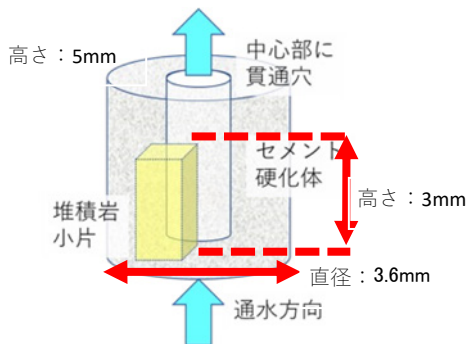


図 1. 供試体の構成

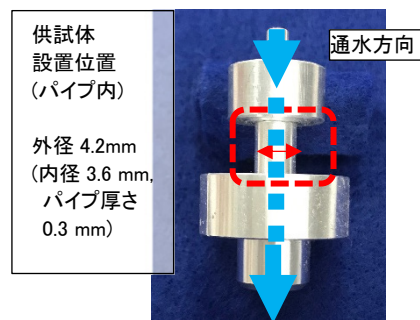


写真 1. 供試体格納セル

結果および考察：

図 2 に通水前の供試体断面、図 3 に通水 60 日後の供試体断面を示す。図 2 に示した点は、後節で記述する X 線回折の観察点を表し、通水試験前後で共通に観察を行った。

CT による断面図からは、供試体格納アルミニウム製セルの内部に充填されたセメントペーストによるセメント硬化体、セメントペーストの下部に Opalinus Clay の小片、中心部分には通水用の開口が確認できた。セメント硬化体部分では、密度の高い未水和のセメント鉱物や水酸化カルシウムの析出による白色の領域が点状に分布している様子が確認できた。

図 4 および図 5 に Opalinus Clay の拡大図に示す。Opalinus Clay は堆積岩で層状鉱物のため、上記の通り供試体は乾燥状態にあり、収縮によるものと思われる空隙が認められ、通水試験後にはその幅が狭くなる様子が確認された。

図 6 および図 7 の空隙の通水部の拡大図に示すように、通水試験後の供試体では、中心開口部の周囲に密度低下と思われる輝度の低い領域がみられた。XRD の観察は図 2 および図 3 に示した点 1～3 を観察対象とした。観察点 1 および 2 は通水試験前後で観察し、観察点 3 は試験後新たに観察した。図 4 および 5 にも測定点を示す。結晶データベースより求めた鉱物の X 線回折プロファイルと比較を行い、ピーク点の一致を調べた。Opalinus Clay には、市販の X 線回折装置による事前の測定で、Albite や Gypsum などの鉱物が含有されていた。

Opalinus Clay 中の観察点 1 では、セメント由来の鉱物の生成を調べた。その結果、図 8 の X 線回折プロファイル中の赤い三角形で示すように、通水後のプロファイルにおいて炭酸カルシウム (Calcite) のプロファイルといくつかのピーク点が一致し、わずかながら炭酸カルシウムが新たに析出したと推定された。すなわち Opalinus Clay の空隙の減少は、新たな炭酸カルシウムの生成による可能性が示唆された。

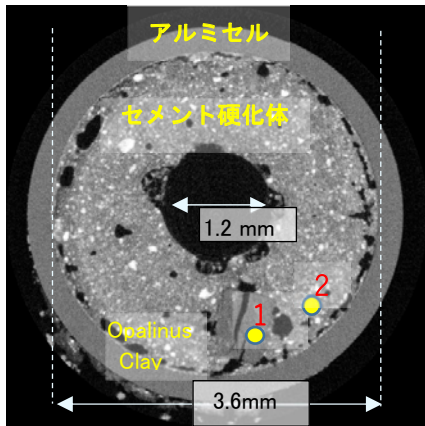


図 2. 通水試験前の供試体

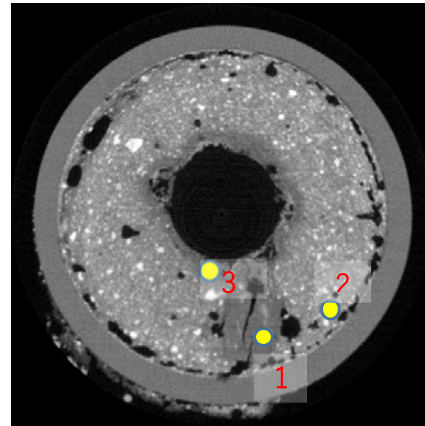


図 3. 通水 60 日後の供試体

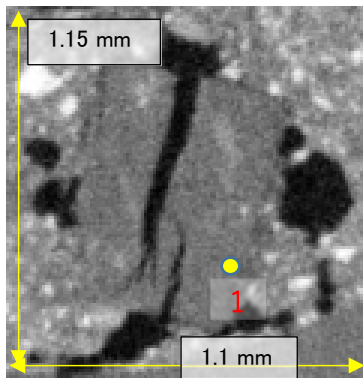


図 4. 通水試験前の供試体 (Opalinus Clay)

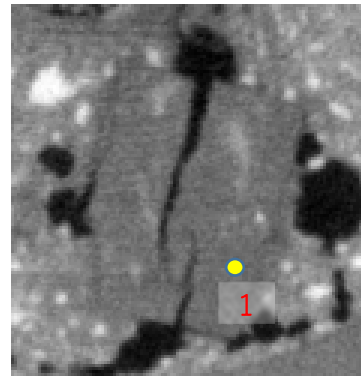


図 5. 通水 60 日後の供試体 (Opalinus Clay)

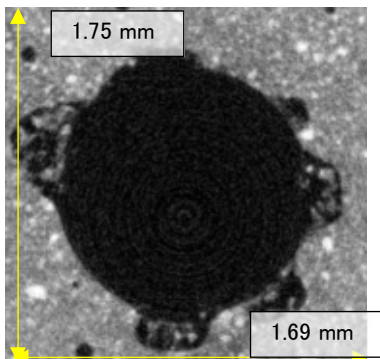


図 6. 通水試験前の供試体(通水穴)

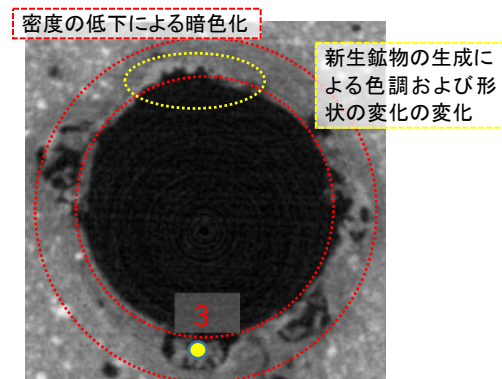


図 7. 通水 60 日後の供試体(通水穴)

セメント硬化体中の観察点 2 では、図 9 における赤い三角形で示すようなピークの一致を示すように、セメント硬化体の主要構成材である水酸化カルシウム(Portlandite)が含有されていることが確認された。また、図 10 に示すように観察点 1 と同様にセメント硬化体内部でも炭酸カルシウムとのピークの一致が多くみられ、生成の可能性が示唆された。また、図 11 に示すように新生鉱物である観察点 3 もまた炭酸カルシウムが主要鉱物であることがわかった。

通水により、セメント硬化体のみならず、Opalinus Clay にもセメント成分に由来するカルシウムイオンが到達し、炭酸カルシウムの生成が見られた。

今後の課題：

セメント由来成分が、一部 Opalinus Clay に浸透している現象は確認されたが、具体的な母岩側の鉱物組成の変化までは捉えられなかった。さらに長期の浸漬試験などを通じて、長期的な相互作用について明らかにする。

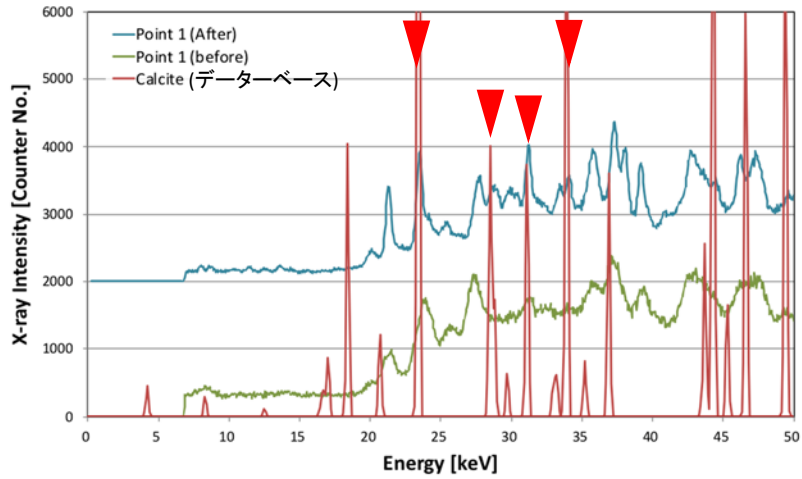


図 8. 観察点 1 堆積岩 (Opalinus Clay) 中の XRD プロファイル

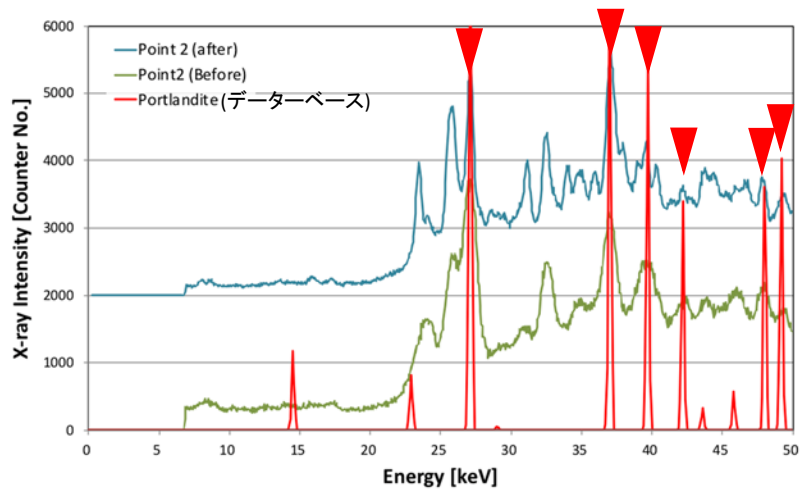


図 9. 観察点 2 セメント硬化体中の XRD プロファイル

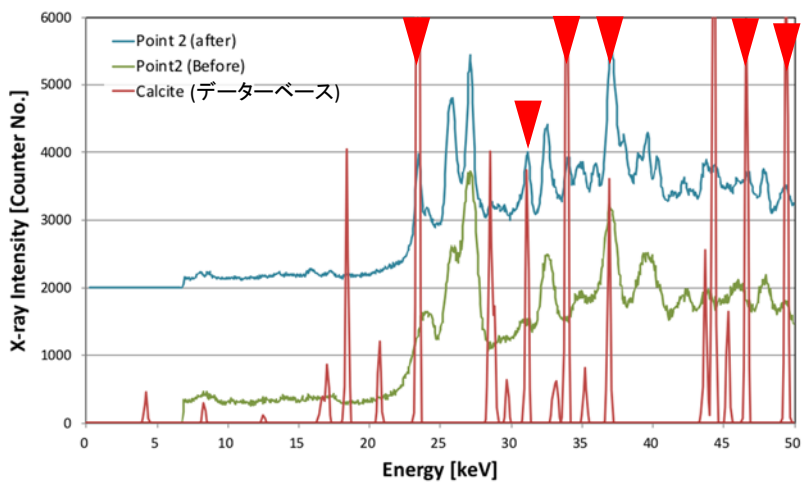


図 10. 観察点 2 セメント硬化体中の XRD プロファイル

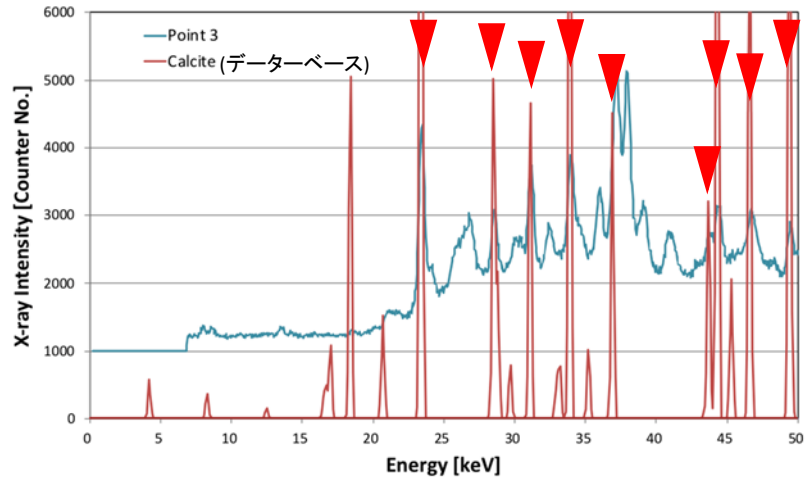


図 11. 観察点 3 新生鉍物中の XRD プロファイル

(Received: September 30, 2022; Accepted: April 4, 2023; Published: August 31, 2023)