

放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究

(13) C-A-S-H に対する Cs、Sr の収着挙動のモデル化

Study on the Radionuclide Contamination Mechanisms of Concrete and the Estimation of Distribution of Radionuclides

(13) Modeling of sorption behavior of Cs and Sr for C-A-S-H

*富田 さゆり¹, 芳賀 和子¹, 小林 佑太朗¹, 山田 一夫², 細川 佳史³, 五十嵐 豪⁴,
駒 義和⁵, 丸山 一平^{4,6},

¹太平洋コンサルタント, ²国環研, ³太平洋セメント株式会社, ⁴東大, ⁵JAEA, ⁶名大

福島第一原子力発電所の廃炉時に発生する大量のコンクリート廃棄物の処分計画において、事故後から廃炉時までの放射性核種の移行予測が必要である。本報では、セメント系材料中の Cs、Sr 移行予測のため、セメント系材料中の主要な水和物であり、Cs、Sr の収着に大きく影響を及ぼす C-A-S-H に対して、Cs、Sr の収着試験を行い、その結果を基にモデル化した。

キーワード：福島第一原子力発電所, 廃炉, セメント, C-A-S-H, 収着, Cs, Sr, 溶脱, 炭酸化, モデル化

1. 緒言

セメント系材料中の主要な水和物である C-A-S-H ($w\text{CaO}\cdot x\text{Al}_2\text{O}_3\cdot y\text{SiO}_2\cdot z\text{H}_2\text{O}$) の CaO(SiO₂+Al₂O₃)モル比 (C/(S+A)比) は、材料や配合、および溶脱や炭酸化等の経年変化によって変化し、この C/(S+A)比は Cs、Sr の収着に大きく影響する。また、Cs、Sr の収着にはセメント系材料の間隙水に含まれるアルカリ金属元素の存在が影響することも知られている。したがって、本研究では、Na、K が共存する条件で、C/(S+A)比=0.7~1.2 の C-A-S-H を合成し、Cs、Sr 収着試験を行った。また、これらの結果を基に、相平衡を考慮した C-A-S-H の Cs、Sr 収着モデルを構築した。

2. 収着試験

2-1. 試料の作製

水酸化カルシウム、非晶質シリカ、アルミン酸ナトリウム、もしくはアルミン酸カリウム三水和物を原料として、C/(S+A)比が 0.7~1.2、Al/Si 比が 1.5、Na(K)/Al 比が約 1.5 になるよう秤量し、純水と液固比 30 で混合した後、50°C で 3 週間反応させた。Ar 雰囲気グローブボックス内で吸引ろ過を行い、固相を真空乾燥し、C-A-S-H 試料を作製した。試料名は、「CASH-C/(S+A)比 (原料のアルカリ元素)」と表記した。試料は、X 線回折試験で原料のピークはなくなっていたが、C-A-S-H 以外に Katoite や水準によっては Stratingite のピークが確認された。CASH-1.2(Na)は、室内環境 (20°C±10°C、湿度：50±30%、CO₂ 濃度：0.05±0.02%) で 4 週間もしくは促進炭酸化環境 (20°C、湿度：60%、CO₂ 濃度：5%) で 2 週間炭酸化させた試料も作製した。

2-2. 収着試験

2-1 で作製した試料に対して、(1)Cs もしくは Sr 単独溶液、(2)Cs、Sr 混合溶液、(3)(1)、(2)の Na、K 共存溶液を、液固比 10 で混合し、1 週間収着試験を行った。その結果、Ca/Si 比、および初期液相濃度が低いほど、分配比が大きくなること、共存イオン濃度が高い (0.1 M) 場合、分配比が小さくなることを確認した。また、炭酸化した試料は分配比が大きくなった。例として、CASH-1.2(Na)および炭酸化させた CASH-1.2(Na)の(1)Cs もしくは Sr 単独溶液の収着試験結果を表 1 に示す。

表 1 C-A-S-H の Cs、Sr 収着試験結果

試料名	収着液相濃度 (mol/L)	分配比(L/kg)	
		Cs	Sr
CASH-1.2(Na)	1.0×10^1	0.9	5.6
	1.0×10^3	1.9	43
	1.0×10^5	1.5	64
促進炭酸化 CASH-1.2(Na)	1.0×10^1	14	31
	1.0×10^3	8800	18000
	1.0×10^5	>15000	>14000
実環境炭酸化 CASH-1.2(Na)	1.0×10^1	6.3	11
	1.0×10^3	1400	3400
	1.0×10^5	>15000	>14000

3. モデル化

Haas ら (2015) は、C-S-H 内の層状ケイ酸塩構造とアルミン酸イオン Al(OH)₄⁻との反応を考慮した C-A-S-H の溶解平衡モデルを提唱している。Hosokawa ら (2019) は、Haas らの C-A-S-H 溶解平衡モデルを用いて、C-A-S-H の Na、K 収着試験を再現した C-A-S-H の Na、K 収着モデルを提唱している。本研究では、これらのモデルを熱力学的相平衡計算ツールである PHREEQC に実装し、2-2 の収着試験結果にフィッティングさせて、C-A-S-H の Cs、Sr 収着も考慮できるようモデル化した。

謝辞

本研究の一部は、JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 JPJA20P20333545 の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] J. Haas, et al., From C-S-H to C-A-S-H: Experimental study and thermodynamic modeling, Cement and Concrete Research, vol.68, pp.124-138, 2015.
[2] Y. Hosokawa, et al., Numerical modelling of the alkali penetration into cementitious materials using the coupled thermodynamic phase equilibrium mass transfer system, Proceedings of the 15th International Congress on the Chemistry of Cement, Prague, Czech Republic 16-20 September 2019.

*Sayuri Tomita¹, Kazuko Haga¹, Yutaro Kobayashi¹, Kazuo Yamada², Yoshifumi Hosokawa³, Go Igarashi⁴, Yoshikazu Koma⁵ and Ippei Maruyama^{4,6}

¹Taiheiyo Consultant, ²NIES, ³Taiheiyo Cement Corporation, ⁴UTokyo, ⁵JAEA, ⁶Nagoya Univ.