

JAERI-Review

97-009



低レベル放射性廃棄物処分用コンクリート構造物の
劣化速度の評価方法に関する調査及び試算

1997年8月

大越 実

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Nakagun, Ibarakiken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 ニッセイエプロ株式会社

低レベル放射性廃棄物処分用コンクリート構造物の
劣化速度の評価方法に関する調査及び試算

東海研究所バックエンド技術部

大越 実

(1997年7月15日受理)

低レベル放射性固体廃棄物の埋設処分施設の人工バリア材として使用される鉄筋コンクリートの劣化要因及び劣化速度の評価方法について、文献調査を実施するとともに、その調査結果を基に劣化速度の試算を行った。また、耐久性の強い鉄筋コンクリートの作製方法についても、文献調査を実施した。

その結果、低レベル放射性廃棄物処分施設用のコンクリート構造物の主要な劣化要因としては、鉄筋の腐食、水酸化カルシウムの溶出、硫酸塩による浸食、凍結融解及びアルカリ骨材反応を考慮すれば十分であることがわかった。また、アルカリ骨材反応を除いて、劣化速度の定量的評価手法が米国等において提案されていた。さらに、今回調査を実施したこれらの研究結果及び試算結果によれば、製作時における品質保証及び品質管理が十分に実施されれば、コンクリート構造物は、相当長期間にわたってその健全性を維持することができるものと考えられ、米国等において要求されている処分施設としての寿命期間の500年を十分満足するものと判断された。

Review and Estimation of Degradation Rates for Concrete Barriers
Used in Low-level Radioactive Waste Disposal

Minoru OKOSHI

Department of Decommissioning and Waste Management
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 15, 1997)

The processes and models of concrete degradation used as engineered barriers in low-level radioactive waste disposal were reviewed. Example calculations were performed to illustrate the degradation rates. And also, the preparation methods to make durable concrete were reviewed.

In conclusion, the concrete degradation processes to be considered for the safety performance assessment for low-level radioactive waste disposal facilities are as follow :

- (a) reinforcement corrosion,
- (b) calcium hydroxide leaching,
- (c) sulfate attack,
- (d) freeze-thaw attack, and
- (e) alkali aggregate reaction.

The models to estimate the degradation rates due to main degradation processes except for alkali aggregate reaction were developed in the USA, etc. Example calculations show that concrete barriers prepared under the good quality control and assurance will maintain the performance for more than 500 years which is the requirement for the service life of low-level radioactive waste disposal facilities in the USA.

Keywords : Low-level Radioactive Waste, Disposal, Engineered Barrier, Reinforcement Concrete, Degradation, Reinforcement Corrosion, Calcium Hydroxide Leaching, Sulfate Attack, Freeze-thaw Attack, Alkali Aggregate Reaction

目 次

1. はじめに	1
2. コンクリートの主要な劣化要因	2
3. コンクリートの長期健全性の評価手法	3
3.1 鉄筋の腐食評価モデル	3
3.1.1 酸素存在下での腐食に関する評価モデル	3
3.1.2 水の還元反応による腐食に関する評価モデル	8
3.1.3 コンクリートのひびわれ評価	9
3.1.4 鉄筋の腐食膨張比に関する考察	11
3.1.5 試算結果	11
3.2 水酸化カルシウムの溶出	12
3.2.1 評価式	12
3.2.2 試算結果	14
3.3 硫酸塩による浸食	14
3.3.1 評価式	14
3.3.2 試算結果	16
3.4 凍結融解	16
3.4.1 評価式	17
3.4.2 試算結果	18
3.5 アルカリ骨材反応	18
4. 長期健全性を考慮したコンクリートの作成方法	19
5. まとめ	19
参考文献	21

Contents

1. Introduction	1
2. Review of Concrete Degradation Processes	2
3. Concrete Degradation Models	3
3.1 Degradation Models Due to Reinforcement Corrosion	3
3.1.1 Corrosion Models Due to Oxygen	3
3.1.2 Corrosion Models Due to Hydrogen Evolution	8
3.1.3 Concrete Cracking Analysis	9
3.1.4 Volumetric Expansion Ratio of Corrosion Products	11
3.1.5 Example Calculations	11
3.2 Calcium Hydroxide Leaching	12
3.2.1 Model of Calcium Hydroxide Leaching	12
3.2.2 Example Calculations	14
3.3 Sulfate Attack	14
3.3.1 Model of Sulfate Attack	14
3.3.2 Example Calculations	16
3.4 Freeze-thaw Attack	16
3.4.1 Model of Freeze-thaw Attack	17
3.4.2 Example Calculations	18
3.5 Alkali Aggregate Reaction	18
4. Preparation Methods for Durable Concrete	19
5. Summary	19
References	21

1. はじめに

我が国においては、低レベル放射性固体廃棄物は浅地中に埋設処分することが基本方針とされている¹⁾。この方針に基づいて、「原子炉、核原料物質及び核燃料物質の規制に関する法律」において、廃棄物埋設事業が規定されている。また、「核燃料物質等の埋設に関する措置等に係る技術的細目を定める告示」(以下「埋設告示」という。)の第2条において、埋設処分を行うに当たって、放射性物質を閉じ込めるために人工構築物を設置する場合には、鉄筋コンクリート(以下「コンクリート」という。)を使用することが規定されている。また、諸外国においても、コンクリートが強度・耐久性に優れていること、入手が容易なこと及び比較的安価であること等の理由により、低レベル放射性廃棄物の処分用施設の人工バリア材として、コンクリートが採用又は検討されている例が多い^{例えば、2-4)}。

このようなコンクリートに期待されるバリア機能としては、物理的バリアと化学的バリアの二種類がある⁵⁾。物理的バリアとは、コンクリートの止水性により、廃棄物が地下水等と接触することを防止することにより、放射性物質が環境中に移行していくことを防止又は減少させる機能である。また、化学的バリアとは、コンクリートによって局部的に作りだされた環境条件によって、放射性物質の吸着能力を増加させたり、溶解度を減少させることによって、環境への移行を遅らせる機能である。

このような人工バリア施設に対する具体的な寿命期間を規定している例としては、米国⁶⁾、カナダ⁷⁾及びフィンランド⁸⁾があり、いずれの場合も寿命期間として500年間を要求している。これに対して、我が国の場合には、人工バリアに要求される寿命期間は具体的に規定されていないが、周辺環境に及ぼす放射線学的な影響を考えた場合には、長期にわたって放射性物質を閉じ込めておくことが望ましいことは言うまでもない。

また、原子力安全委員会が定めた「放射性廃棄物埋設施設の安全審査の基本的考え方」⁹⁾において、人工バリアの劣化を考慮にいたした安全評価を実施することが要求されており、人工バリアの寿命期間を定量的に把握することが必要となる。さらに、長期にわたる人工バリアの劣化に関する定量的な評価を実施することによって、処分にかかる費用を軽減することが可能になると考えられる。

しかしながら、現在、一般に使用されているセメント(ポルトランドセメント)の使用実績は150年程度、鉄筋コンクリートの使用実績は100年程度しかないことから、廃棄物処分の安全評価において考慮すべき期間(数百年～数千年)に比べて短く、長期にわたるコンクリートの劣化評価を行う上でのデータが十分にあるとはいえない。また、古代のコンクリート類似物から現代のコンクリートの長期耐久性を推定することについても、セメントの化学組成が異なるため、無理があると考えられている⁵⁾。従って、現時点においては、コンクリートの長期健全性に関する知識が十分にあるといえる状況にはない。

このため、処分施設用コンクリート構造物の寿命期間を推定するための研究が、米国、英国及びカナダで幅広く実施されている^{5,7,10-15)}。これらの研究成果は、今後埋設処分を実施するに際して、低レベル放射性廃棄物処分施設の安全評価を実施する上でたいへん有用であると考えられる。このため、今回、コンクリートを材料として使用した低レベル放射性廃棄物処分施設の長期耐

久性に関する文献調査を実施し、1)コンクリートの主要な劣化要因、2)劣化要因別の寿命予測モデル及び 3)劣化予防対策について調査するとともに、4)寿命予測モデルを用いたコンクリート構造物の劣化速度の試算を行った。以下にその結果を報告する。

2. コンクリートの主要な劣化要因

コンクリート構造物の耐久性に影響を与える主要な要因として、

- (1) コンクリート構造物が置かれる環境条件
- (2) コンクリート構造物を作製するに当たって使用した材料の品質及び配合比
- (3) 通常時に受ける荷重並びに地震又は液状化現象のような異常時に受ける荷重により生じる内部応力

が挙げられる。すなわち、コンクリート構造物は、製作に当たって十分な配慮がなされたとしても、使用される環境条件に応じて、徐々に劣化していくこととなる。このようなコンクリートの劣化要因は多数存在するが、主要な内的劣化要因及び外的劣化要因を Table 1 に挙げる。

Table 1 に示した劣化要因の中で、低レベル放射性廃棄物処分施設の長期耐久性を考慮する上で、どのような要因が重要であるかの検討結果が種々報告されている^{5,7,10,11,14}。このうち、英国ハーウェル研究所の Atkinson ら⁵によれば、処分施設が置かれる環境(浅地中の粘土層及び地下数百メートルの無水石膏層)を考慮した場合に、コンクリートの劣化要因としては、

- (a) 硫酸塩による浸食
- (b) 水酸化カルシウムの溶出

が最も重要であるとしている。その次に重要な劣化要因としては、長期間にわたる影響についての知識が現時点においてないことから、

- (c) 鉄筋の腐食
- (d) アルカリ骨材反応

であるとしている。上記以外の劣化要因、

- (e) 硫酸塩による浸食以外の化学的な作用
- (f) 微生物による浸食
- (g) ゲルの結晶化、
- (h) 環境変化(乾湿及び凍結融解)の繰り返し
- (i) 処分された廃棄物からの放射線

の影響は無視できるとしている。

一方、米国エネルギー省(DOE)の委託により、コンクリートの長期耐久性に関する検討を行った Chang ら¹⁰は、(a)硫酸塩による浸食、(b)塩化物イオンによる浸食、(c)水酸化カルシウムの溶出、(d)アルカリ骨材反応、及び、(e)凍結融解の 5 種類の劣化要因が、一般的に最もコンクリートの長期耐久性に対して有害であるとしている。また、米国原子力規制委員会(NRC)の委託により、処分施設の劣化に関する評価モデルの検討を実施した Seitz ら¹⁴によれば、最も考慮されるべきコンクリートの劣化要因は、(a)鉄筋の腐食、(b)硫酸塩による浸食、(c)凍結融解、及び、(d)

久性に関する文献調査を実施し、1)コンクリートの主要な劣化要因、2)劣化要因別の寿命予測モデル及び 3)劣化予防対策について調査するとともに、4)寿命予測モデルを用いたコンクリート構造物の劣化速度の試算を行った。以下にその結果を報告する。

2. コンクリートの主要な劣化要因

コンクリート構造物の耐久性に影響を与える主要な要因として、

- (1) コンクリート構造物が置かれる環境条件
- (2) コンクリート構造物を作製するに当たって使用した材料の品質及び配合比
- (3) 通常時に受ける荷重並びに地震又は液状化現象のような異常時に受ける荷重により生じる内部応力

が挙げられる。すなわち、コンクリート構造物は、製作に当たって十分な配慮がなされたとしても、使用される環境条件に応じて、徐々に劣化していくこととなる。このようなコンクリートの劣化要因は多数存在するが、主要な内的劣化要因及び外的劣化要因を Table 1 に挙げる。

Table 1 に示した劣化要因の中で、低レベル放射性廃棄物処分用施設の長期耐久性を考慮する上で、どのような要因が重要であるかの検討結果が種々報告されている^{5,7,10,11,14}。このうち、英国ハーウェル研究所の Atkinson ら⁵によれば、処分施設が置かれる環境(浅地中の粘土層及び地下数百メートルの無水石膏層)を考慮した場合に、コンクリートの劣化要因としては、

- (a) 硫酸塩による浸食
- (b) 水酸化カルシウムの溶出

が最も重要であるとしている。その次に重要な劣化要因としては、長期間にわたる影響についての知識が現時点においてないことから、

- (c) 鉄筋の腐食
- (d) アルカリ骨材反応

であるとしている。上記以外の劣化要因、

- (e) 硫酸塩による浸食以外の化学的な作用
- (f) 微生物による浸食
- (g) ゲルの結晶化、
- (h) 環境変化(乾湿及び凍結融解)の繰り返し
- (i) 処分された廃棄物からの放射線

の影響は無視できるとしている。

一方、米国エネルギー省(DOE)の委託により、コンクリートの長期耐久性に関する検討を行った Chang ら¹⁰は、(a)硫酸塩による浸食、(b)塩化物イオンによる浸食、(c)水酸化カルシウムの溶出、(d)アルカリ骨材反応、及び、(e)凍結融解の 5 種類の劣化要因が、一般的に最もコンクリートの長期耐久性に対して有害であるとしている。また、米国原子力規制委員会(NRC)の委託により、処分施設の劣化に関する評価モデルの検討を実施した Seitz ら¹⁴によれば、最も考慮されるべきコンクリートの劣化要因は、(a)鉄筋の腐食、(b)硫酸塩による浸食、(c)凍結融解、及び、(d)

アルカリ骨材反応であるとしている。

このように、コンクリートの劣化要因として考慮すべき事項は、必ずしも完全には一致していない。その最も大きな理由としては、処分施設の置かれる環境(土壌及び地下水の成分、気象条件等)、処分施設の構造(処分施設と地下水面の位置関係等)の想定の違いによるものと考えられる。

しかしながら、既往の検討結果を要約すると、低レベル放射性廃棄物処分用施設の安全評価上は、

- (a) 鉄筋の腐食
- (b) 水酸化カルシウムの溶出
- (c) 硫酸塩による浸食
- (d) 凍結融解
- (e) アルカリ骨材反応

の5種類の劣化要因について検討すれば十分であると判断された。

3. コンクリートの長期健全性の評価手法

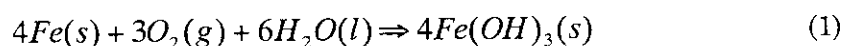
第2章で抽出した5つの主要なコンクリートの劣化要因について、各々の劣化要因ごとに、劣化速度の評価方法の調査結果及び試算結果を以下に述べる。

3.1 鉄筋の腐食評価モデル

コンクリート構造物中に埋め込まれた鉄筋が腐食すると、その結果生成するさびは、鋼の体積よりも大きな体積を有するので、被覆しているコンクリートに膨張圧を発生させ、この値がある限界値に達すると、鉄筋に沿ったひびわれを発生させる。このような鉄筋の腐食反応は、酸素の存在の有無によって異なることが知られており、以下に、腐食反応別に評価モデルの概要を述べる。

3.1.1 酸素存在下での腐食に関する評価モデル

コンクリートが健全な間は、鉄筋が高アルカリ環境下(pH12.5以上)に置かれるため、鉄筋表面に不動態である γ 酸化第二鉄の薄い皮膜が形成され、鉄筋が腐食することはない。しかしながら、炭酸化、又は、塩化物イオンによる γ 酸化第二鉄の不動態皮膜の破壊又は貫通が生じると、鉄筋の腐食が発生することが知られており、酸素及び水が存在している場合には、以下の化学反応によって鉄筋の腐食が進行することが知られている¹¹⁾。



アルカリ骨材反応であるとしている。

このように、コンクリートの劣化要因として考慮すべき事項は、必ずしも完全には一致していない。その最も大きな理由としては、処分施設の置かれる環境(土壌及び地下水の成分、気象条件等)、処分施設の構造(処分施設と地下水面の位置関係等)の想定の違いによるものと考えられる。

しかしながら、既往の検討結果を要約すると、低レベル放射性廃棄物処分用施設の安全評価上は、

- (a) 鉄筋の腐食
- (b) 水酸化カルシウムの溶出
- (c) 硫酸塩による浸食
- (d) 凍結融解
- (e) アルカリ骨材反応

の5種類の劣化要因について検討すれば十分であると判断された。

3. コンクリートの長期健全性の評価手法

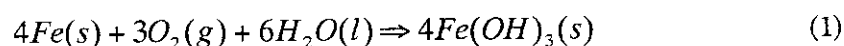
第2章で抽出した5つの主要なコンクリートの劣化要因について、各々の劣化要因ごとに、劣化速度の評価方法の調査結果及び試算結果を以下に述べる。

3.1 鉄筋の腐食評価モデル

コンクリート構造物中に埋め込まれた鉄筋が腐食すると、その結果生成するさびは、鋼の体積よりも大きな体積を有するので、被覆しているコンクリートに膨張圧を発生させ、この値がある限界値に達すると、鉄筋に沿ったひびわれを発生させる。このような鉄筋の腐食反応は、酸素の存在の有無によって異なることが知られており、以下に、腐食反応別に評価モデルの概要を述べる。

3.1.1 酸素存在下での腐食に関する評価モデル

コンクリートが健全な間は、鉄筋が高アルカリ環境下(pH12.5以上)に置かれるため、鉄筋表面に不動態である γ 酸化第二鉄の薄い皮膜が形成され、鉄筋が腐食することはない。しかしながら、炭酸化、又は、塩化物イオンによる γ 酸化第二鉄の不動態皮膜の破壊又は貫通が生じると、鉄筋の腐食が発生することが知られており、酸素及び水が存在している場合には、以下の化学反応によって鉄筋の腐食が進行することが知られている¹¹⁾。



上記の過程は、Tuutti¹⁶⁾によって、Fig. 1 のようにモデル化されている。すなわち、炭酸化、又は、塩化物イオンによる γ 酸化第二鉄の不動態皮膜の破壊又は貫通が生じると、酸素濃度に比例して腐食が進行していくこととなる。

米国オークリッジ国立研究所(ORNL)は、Tuutti のモデルを基にした鉄筋の腐食モデルを取り込んだ、低レベル放射性廃棄物処分施設の長期にわたる劣化の程度及び劣化に伴う放射性物質の漏出量を評価するための計算コード SOURCE^{17,18)}を開発している。本コードは、米国電力研究所の委託により開発された計算コード BARRIER¹⁹⁾を ORNL にある処分施設に適用するため、及び、最新のコンクリートの劣化に関する検討結果を基に改良した計算コードである。以下に、SOURCE における鉄筋腐食の評価式を述べる。

(1) 炭酸化による不動態皮膜の破壊に係る評価式^{17,18)}

埋設されたコンクリートの炭酸化は、水中に溶存した二酸化炭素がコンクリート中に拡散することにより発生し、鉄筋コンクリート中での炭酸化の先端の位置は、次式で求められることが知られている。

$$X = kt^{0.5} \quad (2)$$

ここで、

X = 炭酸化の深さ (cm)

k = 炭酸化係数 (cm²/sec)

t = 時間 (s)

である。なお、炭酸化係数は、次式によって与えられるとしている。

$$k^2 = \frac{4D_{CO_2}C_1}{(C_x - 1)\pi^{0.5}} \quad (3)$$

ここで、

C_x = コンクリートと結合している二酸化炭素濃度 (mol/cm³)

C_1 = コンクリート表面の二酸化炭素濃度 (mol/cm³)

D_{CO_2} = コンクリート中での二酸化炭素の拡散係数 (cm²/s)

である。

Tuutti のモデルでは、コンクリート中に拡散していった二酸化炭素の一部は、コンクリート成分と結合して不動態皮膜の破壊に関与しなくなるが、コンクリートと結合した二酸化炭素の量と水和した石灰の量が等しくなったときに、余剰の二酸化炭素が生じ、不動態皮膜の破壊が開始するとしている。なお、水和した石灰の量は、コンクリート中の CaO の量と水和の程度の積で求

められるとしている。また、水和の程度は、ポルトランドセメントでは、次式により水・セメント比により求められるとしている。

$$H_f = 0.4 + 0.5WCR \quad (4)$$

ここで H_f は水和した CaO の割合、 WCR は水・セメント比である。

なお、SOURCE においては、(2)式によって計算された炭酸化の深さが鉄筋の深さまで到達したときに、不動態皮膜の破壊が始まるとともに、鉄筋の腐食が開始することを仮定している。

(2) 炭酸化速度の試算結果

水中に溶存している二酸化炭素濃度の相違によるコンクリートの炭酸化の進行速度を把握するために、試算を行った。試算に当たっては、水中に溶存している二酸化炭素濃度を、10℃及び20℃で1気圧の大気と平衡状態にある水への二酸化炭素の溶解度²¹⁾を基に、0.6及び0.8 ppmとした。また、水・セメント比を0.4、コンクリート中のCaO濃度を 2.21×10^{-6} mol/cm³、二酸化炭素の拡散係数を 1.92×10^{-6} cm²/sとした¹⁷⁾。Fig. 2に、炭酸化深さの経時変化と二酸化炭素濃度との関係を示す。

本試算結果によると、500年後における炭酸化深さは、二酸化炭素の濃度が0.6 ppmの場合で、約0.8 cm、0.8 ppmの場合で約1 cmであった。これに対して、埋設告示において人工バリアの施工方法として規定されている「JASS5 鉄筋コンクリート工事標準仕様書」²²⁾によると、鉄筋の最小かぶり厚さは、直接土に接する柱、梁、床スラブ又は耐力壁にあっては4 cm以上、基礎及び擁壁にあっては6 cm以上としなければならないとされている。

以上のことから、二酸化炭素による鉄筋の腐食は500年程度では始まらないと判断される。

(3) 塩化物イオンによる不動態皮膜の破壊に係る評価モデル^{17,18)}

地下水中の塩化物イオン又は製作時にコンクリート中に取り込まれた塩化物イオンによる鉄筋の不動態皮膜の破壊は、鉄筋位置におけるコンクリート中の塩化物イオン濃度が閾値を超えたときに発生することが知られている。鉄筋位置におけるコンクリート中の塩化物イオンの濃度は、フィックの拡散式の標準解により求めることが出来る。すなわち、

$$CL_s = CL_i + (CL_{gw} - CL_i) \left[1 - \operatorname{erf} \frac{C_c}{2(D_{ct})^{0.5}} \right] \quad (5)$$

ここで

CL_s = 鉄筋位置における塩化物イオンの濃度 (mol/cm³)

CL_i = コンクリート中の塩化物イオンの初期濃度 (mol/cm³)

CL_{gw} = 地下水中の塩化物イオン濃度 (mol/cm³)

C_c = コンクリートのかぶり厚さ (cm)

D_{Cl} = コンクリート中の塩化物イオンの実効拡散係数 (cm²/s)

t = 時間 (s)

である。

不動態皮膜の破壊が発生する条件 (閾値) については、種々の調査結果があるが、水酸化物イオン濃度と塩化物イオン濃度の比によって不動態皮膜の破壊が支配されていることが認められており、その濃度比は、金属表面の仕上げ状態、溶接点の有無等によって左右されるが、モル比で 0.1~1 であることが分かっている。SOURCE では、Hausmann の研究結果¹⁶⁾を採用しており、塩化物イオン濃度と水酸化物イオン濃度の比が 0.61 を超えると不動態皮膜の破壊が開始するとしている。

なお、塩化物イオンによる腐食の開始のみを考慮した経験式として、以下の式がある¹⁹⁾。

$$t_c = \frac{129x_c^{1.22}}{(WCR)[Cl]^{0.42}} \quad (6)$$

ここで、

t_c = 腐食の開始する時間 (yr.)

x_c = 鉄筋のかぶり厚さ (in.)

WCR = 水-セメント比 (質量比)

Cl = 地下水中の塩化物イオン濃度 (ppm)

である。

本式は、塩化物イオン濃度に対する閾値を含んでいないことから、保守側の仮定になっていると考えられる。しかしながら、この式は、融雪剤(塩化カルシウム)が頻繁に使用されている橋の調査結果に基づいて誘導されているので、処分施設が置かれている土中環境への適用には問題があるとされている¹⁵⁾。

(4) 塩化物イオンによる鉄筋の腐食開始時期の試算結果

「JASS5 鉄筋コンクリート工事標準仕様書」²²⁾において、コンクリート用練混ぜ水の塩化物イオン量を 200 ppm 以下にするように規定されていることから、コンクリート中の遊離の塩化物イオン濃度は 200 ppm 以下に抑えられることになる。なお、この塩化物イオン濃度の基準は、水道法に定められた塩素イオンの基準と同一である。これに対して、日本の河川水の塩素イオン

の全国平均値は 5.8 ppm²¹⁾であることから、河川水と同程度の塩化物イオンを含む地下水に接しているコンクリートでは、コンクリート中の遊離の塩化物イオン濃度が減少することはあっても、増加することはない。ただし、地下水が海水の影響を受けているような場所では、塩化物イオン濃度が増加して、腐食が問題となる場合がある。そのため、塩化物イオンによる鉄筋の腐食開始時期を(5)式に基づいて試算を行った。

試算に当たっては、鉄筋のかぶり厚さを 4 cm、コンクリート中の遊離の塩化物イオン濃度を 200 ppm、コンクリート中の塩化物イオンの拡散係数を $5.08 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ ¹⁷⁾とし、地下水中の塩化物イオン濃度を 250、500 及び 750 ppm と変化させて鉄筋の腐食が始まる時期を求めた。Fig. 3 に鉄筋表面での塩化物イオン濃度の経時変化を示す。

Atkinson の計算結果²³⁾によれば、コンクリートの空隙水中の pH は、約 1 万年間以上は 12.5 以上を維持するという結果が得られているので、Fig. 3 より、鉄筋の腐食が開始する時期としては、鉄筋のかぶり厚さが 4 cm の場合、地下水中の塩化物イオン濃度が 500 ppm 以下では鉄筋の腐食が約 1 万年間以上は発生することがない。ただし、水中の塩化物イオン濃度が増加すると、急激に鉄筋表面での塩化物イオン濃度が増加するため、750 ppm の場合では、約 24 年後に鉄筋の腐食が開始すると推定される。

次に、地下水中の塩化物イオン濃度を 750 ppm とし、鉄筋のかぶり厚さを 4 から 12 cm まで、2 cm 刻みで変化させた場合の鉄筋の腐食開始時期を Fig. 4 に示す。この場合に、鉄筋の腐食開始時期は、約 24 年から約 200 年まで遅くなることがわかった。

(5) 腐食速度の計算方法^{17,18)}

腐食開始後の酸化速度を推定するための最も簡単な方法は、酸素の拡散によって腐食の速度が制限されると仮定した次元拡散計算である。この場合、鉄筋への酸素の拡散束は、フィックの拡散式より求めることが出来る。すなわち、

$$J_o = -D_o A \frac{d[O_2]}{dx} \quad (7)$$

ここで、

J_o = 鉄筋への酸素の流束 (mole/s·cm²)

D_o = コンクリート中での酸素の実効拡散係数 (cm²/s)

$\frac{d[O_2]}{dx}$ = 溶存した酸素の濃度勾配 (mole/cm⁴)

である。

この評価方法においては、(a)鉄筋周囲の反応生成物層の成長は、その層を通る酸素の拡散速度よりも遅い。(b)生成物層を通る酸素の拡散速度は、コンクリート中での拡散速度に比べて速い。

という仮定に基づいている。従って、もし、腐食反応による酸素の消費速度が反応表面への酸素の拡散速度よりも大きければ、腐食速度は、酸素の流束によって制限されることとなる。

また、本検討においては、簡略化のため、以下の化学反応によって鉄筋の腐食が進行するものとする。



本反応においては、鉄1モルの酸化に 3/4 モルの酸素が消費されることになるので、鉄の密度 ρ_{Fe} を 7.8g/cm^3 、鉄の原子量 M_{Fe} を 55.8g/mol とすると、鉄筋の腐食速度 $R_{corrosion}$ (cm/s) は、

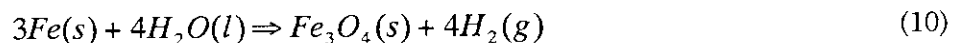
$$R_{corrosion} = \frac{4}{3} J_O \frac{M_{Fe}}{\rho_{Fe}} = 9.4 D_O \frac{d[O_2]}{dx} \quad (9)$$

で求められる。

いま、地下水中の溶存酸素濃度を $3.44 \times 10^{-7}\text{ mol/cm}^3$ ²¹⁾、鉄筋のかぶり厚さを 4 cm 、コンクリート中への酸素の拡散係数を $1 \times 10^{-6}\text{ cm}^2/\text{s}$ ¹⁷⁾ とすると、鉄筋の腐食速度は、年間、 $2.5 \times 10^{-5}\text{ cm}$ と評価された。

3.1.2 水の還元反応による腐食に関する評価モデル

鉄筋に対するコンクリートのかぶり厚さが酸素の接近を防止できるぐらい十分に厚い場合、また、コンクリートが水分で飽和されている場合のように、鉄筋表面への酸素の供給が不十分な場合には、鉄筋の腐食は次の化学反応によって進むと考えられている ²⁴⁾。



(10)式による腐食は均一腐食であり、反応速度は、発生した水素の系外への移行速度、pH、温度等に依存することが知られている ²⁴⁾。すなわち、仮に、コンクリートからの水素の移行速度が、生成速度よりも小さい場合には、腐食速度は、水素の移行速度によって抑制されることになる。従って、(10)式による腐食速度は、コンクリートからの水素の移行速度をフィックの法則より計算することによって求められることになる。

$$N = -D_{H_2} A \frac{dC_{H_2}}{dz} \quad (11)$$

ここで、

N = 水素のフラックス (mol/s)

D_{H_2} = コンクリート中での水素の実効拡散係数 (cm²/s)

A = 鉄筋の断面積 (cm²)

$\frac{dC_{H_2}}{dz}$ = 溶存している水素の濃度勾配 (mol/cm⁴)

である。

なお、文献調査結果²⁵⁾によると、通常のコンクリートで、pHが高い間の腐食速度は、 $1.5 \times 10^{-4} \sim 1 \times 10^{-5}$ cm/年のオーダーである。pHが9を下回るようになると、腐食速度は $1 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-4}$ cm/年のオーダーに増加するとしている。

なお、Atkinson²⁶⁾によると、コンクリート中にアルカリ成分であるNaOH及びKOHが存在している間は、pHは12.5以上に維持されるが、アルカリ成分は非常に溶出しやすく、完全に溶出してしまうと、pHは12.5に減少する。しかし、その後は、コンクリートからCa(OH)₂が完全に溶出して無くなるまでの間は、pHが12.5に維持される。コンクリートからのCa(OH)₂の溶出速度は、地下水のpHが非常に酸性であったり、流速が速い場合を除けば、3.2.2に述べるように非常に遅いことが知られている。Atkinson²⁶⁾の試算結果によると、10万年間以上、pHが12.5以上に維持されるとしている。

従って、コンクリートが健全な間は、鉄筋が高アルカリ環境下(pH12.5以上)に置かれるため、500年間での腐食速度は、 $5 \times 10^{-3} \sim 7.5 \times 10^{-2}$ cmと極めて遅いと予想される。

3.1.3 コンクリートのひびわれ評価

コンクリート構造物の寿命期間を推定する方法として、Atkinsonら⁵⁾は、コンクリートの厚さが最初の厚さの半分に減少するまでの期間を人工バリアの寿命期間と定義している。しかしながら、実際のコンクリートの劣化はひびわれであり、コンクリートの透水性は、ひびわれが発生することによって大きく変化することが知られている¹⁴⁾。透水性が増加することにより、廃棄物と接触する地下水の量が増え、処分施設からの放射性物質の漏出量が増加することになる。このため、安全評価を実施する上では、コンクリートバリアのひびわれの発生時期、ひびわれの規模を予測することが重要となる。本項では、SOURCE^{17,18)}で使用されている腐食膨張によるコンクリート構造物のひびわれ評価手法について述べる。

(1) 鉄筋の腐食膨張による内部圧の評価式

鉄筋が腐食して膨張することにより発生する圧力は、次式によって求められる。

$$P_i = \frac{\Delta}{r_0} \frac{1}{\left\{ (1 - \mu_r) / E_r + \left[(1 - \mu_c) r_0^2 + (1 + \mu_c) d_{cv}^2 \right] / E_c (d_{cv}^2 - r_0^2) \right\}} \quad (12)$$

ここで、

P_i = 腐食による内部圧力 (kg/cm²)

d_{cv} = 鉄筋の中心からコンクリート表面までの距離 (cm)

r_o = 初期の鉄筋の半径 (cm)

Δ = 自由膨張層の厚さ (cm)

μ_r = 腐食生成物のポアソン比 (-)

E_r = 腐食生成物の弾性モジュール (kg/cm²)

μ_c = コンクリートのポアソン比 (-)

E_c = コンクリートの弾性モジュール (kg/cm²)

である。

なお、自由膨張層の厚さは、次式によって与えられる。

$$\Delta = r_e + C_f - r_o \quad (13)$$

ここで、 r_e は残存している鉄筋の半径(cm)、 C_f は自由膨張条件下での腐食層の厚(cm)さである。

(2) 応力の計算式

鉄筋の腐食膨張によってコンクリート内部に生じる応力の最大値 σ_{\max} (kg/cm²) は、次式により計算することができる。

$$\sigma_{\max} = \frac{4P_i r_o^2}{d_{cv}^2 - r_o^2} \quad (14)$$

(3) ひびわれの評価式

(14)式によって求めた最大応力が、次式によって求められるコンクリートの引っ張り力 f_t (kg/cm²) を超えた場合には、鉄筋に沿って貫通クラックが発生することとなる。

$$f_t = 4f_c(t)^{0.5} \quad (15)$$

ここで、 $f_c(t)$ は時刻 t におけるコンクリートの圧縮強度(kg/cm²)であり、次式によって求められる。

$$f_c(t) = \frac{t}{\alpha + \beta t} f_{c,28} \quad (16)$$

ここで、

$f_{c,28}$ = コンクリートの 28 日圧縮強度 (kg/cm²)

α, β = 定数

である。

3.1.4 鉄筋の腐食膨張比に関する考察

鉄筋が腐食すると、腐食生成物の生成によって体積が膨張し、その膨張圧によってかぶりコンクリートにひびわれが発生することになるので、腐食生成物の種類がひびわれ評価において重要な因子となり得る。文献調査を実施したところ、酸素が十分に存在している場合には、コンクリート中の鉄筋の腐食生成物として FeO が生成する可能性は低く、Fe₂O₃、 α 及び γ -FeOOH、Fe(OH)₃ 等が生成する可能性が高いことが分かった^{23,27)}。また、その組成は、pH、共存イオン等の環境条件に依存しており、塩化物イオン又は硫酸イオンが存在し、酸素が十分に存在する場合には、 α -FeOOH が発生する可能性が高いことから (Table 2 参照²⁸⁾)、腐食生成物として α -FeOOH を想定することが良いと考えられた。なお、 α -FeOOH の密度が一定していないため、鉄筋の腐食膨張率を一義的に決めることは出来ないが、評価結果が保守側となるように評価する場合には、鉄筋の腐食による体積膨張比を 3.8 とすることが良いと判断された (Table 3 参照^{27,29)})。

3.1.5 試算結果

鉄筋の腐食膨張比を変化させて、コンクリートに貫通ひびわれが発生する最小の腐食層の厚さを評価した。評価に当たっては、鉄筋のかぶり厚さを 6 cm とし、体積膨張率を FeO が生成した場合の体積膨張率である 1.77 から 3 及び 4 と変化させてみた。なお、計算に使用したその他のパラメータ及びその数値を Table 4 に示す。

評価結果によると、コンクリートの引っ張り力 f_t は 5.03×10^2 kg/cm² となり、これを上回るような最大応力を生じる鉄筋の腐食層の厚さ、すなわち、コンクリートに貫通ひびわれの発生する鉄筋の腐食層の厚さは、約 0.015 cm から約 0.045 cm まで増加した (Fig. 5 参照)。

また、鉄筋の腐食生成物の体積膨張率を 4 とおいて、鉄筋のかぶり厚さを変化させた場合の評価結果を Fig. 6 に示す。本評価結果によると、鉄筋のかぶり厚さを 6 cm から 10 cm に変化させてみると、貫通ひびわれが発生する鉄筋の腐食層の厚さは、約 0.045 cm から約 0.15 cm まで増加した。

今回の試算で得られた貫通ひびわれを生じる最小の腐食層の厚さである 0.045 cm に達するまでの時間を 3.1.1 及び 3.1.2 の鉄筋の腐食速度の計算結果を基に推定してみた。その結果、酸素が存在する場合には、約 1,800 年後に腐食速度が 0.045 cm に達すると推定された。これに対し

て、酸素が存在しない場合には、約 300 から 4,500 年後に腐食速度が 0.045 cm に達すると推定された。

3.2 水酸化カルシウムの溶出

コンクリートの主成分である水酸化カルシウムは、拡散現象により、また、地下水が浸透することによって移流現象により、地下水中に溶出してくる。その結果、コンクリートは、強度及び pH が低下し、物理的バリア及び化学的バリア機能が損なわれることになる。

3.2.1 評価式^{17,18)}

水酸化カルシウムは、コンクリートから拡散及び移流によって失われると考えられる。SOURCE においては、先ず、拡散による水酸化カルシウムの溶出は、以下の式を解くことによって求めることが出来るとしている。

$$\frac{\partial f_t}{\partial t} = -D \frac{\partial^2 f_t}{\partial^2 y^2} \quad (17)$$

ここで、

f_t = コンクリートに残存している Ca(OH)_2 の割合

t = 時間 (s)

D = コンクリート中で Ca(OH)_2 の固有拡散係数 (cm^2/s)

y = コンクリートの中心から端までの長さ (cm)

である。

境界条件は、

$$\begin{aligned} f_t(y, t = 0) &= 1 & |y| < \frac{W}{2} \\ f_t(y, t = 0) &= 0 & |y| > \frac{W}{2} \end{aligned}$$

ここで、 W はコンクリートの幅(cm)である。

以上より、 f_t は、

$$f_t = 0.5 \operatorname{erf} \frac{(y + W/2) R_f^{0.5}}{2(D_y t)^{0.5}} - 0.5 \operatorname{erf} \frac{(y - W/2) R_f^{0.5}}{2(D_y t)^{0.5}} \quad (18)$$

ここで、

$D_y =$ コンクリート中で $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の実効拡散係数 (cm^2/s)

$R_f =$ 遅延係数

である。

次に、移流により、水酸化カルシウムが地下水に溶出する可能性は、地下水が炭酸カルシウムでどの程度飽和しているかに関係している。もし、地下水が炭酸カルシウムで飽和していれば、水酸化カルシウムの溶出は起こらない。反対に、炭酸カルシウムで飽和していない地下水がコンクリートに浸透すれば、水酸化カルシウムの溶出が起こることになる。

地下水の炭酸カルシウムによる飽和の程度は、Langelier 指数³⁰⁾によって表すことが出来る。この指数は、温度、全溶存固形物量、アルカリ度及びカルシウム含有量の影響を考慮に入れて、地下水の炭酸カルシウムの飽和度を表している。もし、Langelier 指数が零よりも大きければ、地下水は炭酸カルシウムで飽和しており、水酸化カルシウムの溶出は起こらないことになり、拡散によってのみ水酸化カルシウムは溶出することになる。

地下水が炭酸カルシウムで飽和していないときに、水酸化カルシウムが移流によって失われる割合は、次式によって求めることが出来る。

$$Ca_i = I \frac{Ca_p}{C_i Ca_c} \quad (19)$$

ここで、

$Ca_i =$ 地下水への水酸化カルシウムの溶出率 (s^{-1})

$I =$ 処分施設への地下水の浸透率 (cm/s)

$Ca_p =$ コンクリートの空隙水中の水酸化カルシウムの濃度 (mol/cm^3)

$C_i =$ コンクリート構造物の厚さ (cm)

$Ca_c =$ コンクリート中の水酸化カルシウムの濃度 (mol/cm^3)

である。

また、地下水中の他のイオンの存在も、コンクリートからの水酸化カルシウムの溶出速度に影響を与えることが知られている。特に、マグネシウムと炭酸が溶出に影響を与える可能性がある。上記の式において、 Ca_p をコンクリート空隙水中の水酸化カルシウムの濃度と地下水中のマグネシウムと炭酸イオン濃度との合計と置き換えることによって、この可能性を考慮に入れることができる。

以上に述べた拡散及び移流によって失われる水酸化カルシウムの量を合計することによって、コンクリートから溶出する水酸化カルシウムの量が求められる。水酸化カルシウムがコンクリートから溶出することによって、pH が低下するとともに、強度も低下する。pH の低下する割合は、コンクリートから水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムが完全に失われた後は(この時点で

pH=12.5)、水酸化カルシウムの存在量の関数として表すことが出来る。また、強度の低下する割合としては、実験結果に基づき、水酸化カルシウムが1.0%溶出する毎に約1.5%低下している³¹⁾。

3.2.2 試算結果

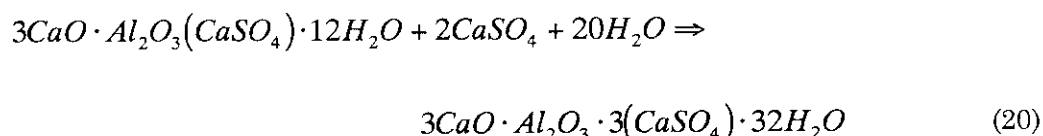
コンクリートからの水酸化カルシウムの溶出割合を評価するために使用したパラメータをTable 5に、また、試算結果をFig. 7に示す。なお、試算に使用したコンクリート構造物の厚さは、「埋設告示」に規定されている外部仕切設備の最小の厚さ25cmを使用した。

この試算結果からは、コンクリートからの水酸化カルシウムの溶出は、拡散によって生じ、移流による漏出は殆どないことがわかった。また、500年間で水酸化カルシウムが約9%溶出するので、コンクリートの強度が約13.5%減少するという結果になった。

3.3 硫酸塩による浸食

Atkinson 及び Hearne²⁸⁾の研究によると、硫酸塩によるコンクリートの浸食は、次の3段階で起こると考えられている。

- ① 環境中に存在する硫酸塩イオンが、通常は拡散によってコンクリート中に侵入する。
- ② 硫酸塩イオンは、コンクリート中のアルミニウムを含む成分と反応して、(13)式に従ってエトリンガイトを生成する。



- ③ エトリンガイトの生成によって生じた内部膨張が、応力を生じ、ひびわれ及びコンクリート表面の剥離を生じる。

3.3.1 評価式

Atkinson 及び Hearne³²⁾によると、硫酸塩による浸食は、コンクリートの組成、物質の移動速度、及び反応速度に依存しており、その反応速度は以下の式によって推定されるとしている。

$$m = m_0 \log_{10} \left(\frac{t_{spall} C_0}{t_r C_k} \right) \quad m < m_c \quad (21)$$

$$m = m_c \quad m > m_c \quad (22)$$

ここで、

m = セメントと反応した硫酸塩の量 (mol/kg・未水和セメント)

m_c = 反応が完了した時の m の値

m_0 = m に関する反応定数

c_0 = 地下水中の硫酸塩濃度 (mol/cm³)

t_r = 固有反応時間 (s)

c_k = 反応実験時の硫酸塩濃度 (mol/cm³)

t_{spall} = 剥離が起こる時間 (s)

次に、エトリンガイトの生成に関与する硫酸塩濃度 (C_e (mol/cm³)) は、以下の式によって求められる。

$$C_e = m \left(\frac{\text{セメントの重量}}{\text{コンクリートの容積}} \right) \quad (23)$$

本評価モデルでは、コンクリートと硫酸塩イオンによる反応領域の厚さが、次式で表される臨界厚さに達したときにコンクリート表面の剥離が起こるとされている。

$$X_{spall} = \frac{2\alpha\gamma(1-\mu_c)}{E(\beta C_e)} \quad (24)$$

ここで、

X_{spall} = 剥離が起こる反応領域の厚さ (cm)

α = ひびわれの粗さ係数

γ = コンクリートのひびわれ表面エネルギー (J/cm²)

μ_c = コンクリートのポアソン比

E = ヤングモジュール (Pa)

β = 1 モルの硫酸塩によって 1 cm³ 当りに生じる歪み

である。

このような臨界厚さに到達する時間は、

$$t_{spall} = \frac{X_{spall}^2 C_e}{2D_i c_0} \quad (25)$$

ここで、

D_i = 固有拡散係数 (cm²/s)

であるので、上記2式より、浸食速度 R (cm/s)は、

$$R = \frac{E\beta^2 c_0 C_e D_i}{\alpha\gamma(1-\mu_c)} \quad (26)$$

によって求められる。

なお、Atkinson ら⁵⁾は、実験結果に基づく経験式として、以下の式を別途提案している。

$$X = 0.55C_s(Mg^{2+} + SO_4^{2-})t \quad (27)$$

ここで、

X = 浸食深さ(cm)

C_s = 未水和のセメント中のトリカルシウムアルミネートの重量パーセント

Mg^{2+}, SO_4^{2-} = 溶液中の Mg^{2+} 及び SO_4^{2-} 濃度 (mol/l)

t = 時間 (yr.)

である。

3.3.2 試算結果

(26) 式及び(27)式に基づいて、地下水中の硫酸イオン濃度を我が国の河川中の平均濃度 10.6 ppm²⁾とした場合の、普通ポルトランドセメントを用いたコンクリートの剥離厚さの時間経過を Fig. 8 に示す。なお、試算に使用したその他のパラメータの値をまとめて Table 6 に示す。

本試算結果によると、(26)式によって求めた浸食速度は、(27)式によって得られた浸食速度に比べて、一桁以上大きいことがわかったが、(27)式で求めた浸食速度であっても、その剥離厚さは、500年間で約 5.4 cm であった。

3.4 凍結融解

処分施設が、その設置場所における凍結深度以下に設置されていない場合には、凍結融解の作用を受ける可能性がある。また、処分施設が凍結深度以下に設置される場合であっても、覆土が完了するまで(建設期間中及び操業期間中)は、凍結融解の作用を受ける可能性がある。凍結融解によるコンクリートの劣化のメカニズムは以下のように説明することが出来る¹⁾。

- ・外気温が氷点下まで降下すると、コンクリート中の毛細管水が凍結し、水から氷への相変化の結果として9%の体積膨張が生じる。

- ・この体積膨張に見合うだけの空間がその毛細管空隙内に存在しない場合には、氷の周囲に存在する水が空隙から押し出される。
- ・凍結した毛細管空隙からの水分移動は、緻密なコンクリート組織を通過するにあたって、組織の緻密さ、移動距離及び移動速度に比例する圧力を周壁に及ぼす。
- ・この移動圧(水圧)がコンクリートの引っ張り強度以上になると、コンクリートの損傷はひびわれから表面剥離を経て、崩壊へと進行する。

3.4.1 評価式¹⁹⁾

実験結果から、コンクリートの凍結融解に対する耐久性は、コンクリートの動弾性係数の減少割合をコンクリート中に混入した空気のパーセント、凍結融解の回数及び水-セメント比と関係付けることによって表すことができることがわかっている。また、この場合のコンクリートの動弾性係数の変化は、実験結果より、凍結融解の回数が 50 回を超えると直線的に変化すると見なせることができることがわかっている。

以上のことから、BARRIER¹⁹⁾においては、コンクリートの動弾性係数の減少割合をコンクリート中に混入した空気のパーセント、凍結融解の回数及び水-セメント比と関係付けることによって、次式によって表している。

$$Y1 = \frac{(N - 50)}{((275 * AIR) * (1.0 + 0.43 * AIR) * F(WCR) - 100.0)} \quad (28)$$

ここで、

$$F(WCR) = 4.2 - 8.0 * WCR * (1.0 - 0.4 * WCR)$$

Y1 = コンクリートの動弾性係数の減少割合

N = 凍結融解の回数

AIR = コンクリート中に混入した空気のパーセント

WCR = 水-セメント比

である。

また、BARRIER コードにおいては、Y1=0.5 になった時点で、凍結融解によってコンクリートに著しいひびわれ又は崩壊が起こるとしている。なお、このレベルまでに到達するのに要する時間 T_c は、

$$T_c = (138 * AIR) / N * (1.0 + 0.43 * AIR) * f(WCR)$$

で求めることが出来る。従って、年間の崩壊割合 R_f は、

$$R_f = (N / T_c) * \left(\frac{0.05}{\sqrt{(\theta)}} - 0.21 * T_r \right) \quad (29)$$

で表すことが出来る。ここで、

θ = 水分含有量

T_r = 残留水分含有量(0.09 と置かれている。)

である。

3.4.2 試算結果

上記のモデルを用いて、凍結融解の繰り返しによるコンクリートの劣化の程度を評価したところ、水-セメント比を 0.4、コンクリートの空隙率を 15 % とし、コンクリート中に混入した空気のパーセントを 3、5 及び 7 % と変化させた場合の試算結果を Fig. 9 に示す。本評価結果によると、空気の混入率が低いほど凍結融解の影響を受けやすく、混入率が 3 % の場合には、100 回の凍結融解の繰り返しにより表面から約 1 cm、200 回で約 4 cm、500 回では約 25 cm もの剥離が起こると推定された。また、空気混入率が 7 % の場合でも、200 回の凍結融解の繰り返しにより約 1 cm、500 回では約 6 cm の剥離が起こると推定された。

これに対して、日本では、日射による融解を加えた全凍結融解日数は、年間 20~140 日、水戸で 60 日とされていることから²⁹⁾、空気混入率が少なく、凍結融解に対する特別の対策を講じない場合には、廃棄物の定置完了後はなるべく速やかに覆土をすることが望ましいと考えられる。

3.5 アルカリ骨材反応

アルカリ骨材反応とは、セメント中のアルカリ成分と骨材中の成分の反応によって生成したゲル状の化合物が水分を吸収して膨張することにより、内部圧を生じ、その結果コンクリートにひび割れを生じる現象である。アルカリ骨材反応は、他の劣化反応と異なって、反応成分が全てコンクリート中に含まれていることから、適切な骨材を選択することによって、反応の生成を防止することができる。

アルカリ骨材反応による劣化速度は、Clifton と Knab¹¹⁾によれば、

$$X = t_0 + kt^a \quad a > 1 \quad (30)$$

で表されるとしている。ここで、

k = 反応定数

t = 時間

t_0 = 開始時間

である。

しかしながら、現時点においては、アルカリ骨材反応はその反応機構が完全には明らかにされていないため、今回の文献調査においては、アルカリ骨材反応によるコンクリートの劣化を定量的に評価するためのモデルを見いだすことは出来なかった。

4. 長期健全性を考慮したコンクリートの作成方法

コンクリートの主要な劣化要因は、アルカリ骨材反応及び凍結融解を除いて、硫酸イオン等の化学物質のコンクリート内への拡散現象及びその後の化学反応に基づくものであることから、基本的には、密実で、透水性の小くなるようなコンクリートを製作する配合比を用いることによって、耐久性の高いコンクリートを作製することが可能となる。Table 7に、本報告書において検討した5つの主要なコンクリートの劣化要因を低減させるための方法について、文献調査をした結果のまとめを示す^{10~12)}。

5. まとめ

低レベル放射性廃棄物処分施設の人工バリア材として使用される、コンクリート構造物の劣化原因及び劣化速度の評価手法について、文献調査を実施した。その結果、今回文献調査を実施した範囲では、米国及び英国を中心として、コンクリート構造物の長期耐久性を定量的に評価するための研究が盛んに実施されていた。また、調査結果によれば、低レベル放射性廃棄物処分施設に使用されるコンクリート構造物の主要な劣化要因としては、鉄筋の腐食、水酸化カルシウムの溶出、硫酸塩による浸食、凍結融解及びアルカリ骨材反応を考慮すれば十分であることがわかった。さらに、今回調査を実施したこれらの研究結果及び本報告書における試算結果によれば、製作時における品質保証及び品質管理が十分に実施されれば、コンクリート構造物は、相当長期間にわたってその健全性を維持することができるものと考えられ、米国等において要求されている寿命期間の500年を十分満足するものと判断された。

しかしながら、本報告書に示した試算結果は、個々の劣化現象を別々に評価したものであり、実際の現象は、凍結融解を除いて（ただし、十分な覆土厚さがある場合）、同時に進行することから、総合的な劣化速度を評価できるような計算コードを開発する必要があると考える。また、現在のコンクリートは長期にわたる使用実績がなく、短期間の実験結果を外挿したものであり、長期の予測を実施するためには限界があるとする意見³⁴⁾もあることから、今後も一層のデータの蓄積等を図ることにより、安全審査等に耐えうるような定量的な評価手法を開発していく必要がある。さらに、埋設処分した放射性物質の環境中への移行量を定量的に把握するためには、コンクリート構造物の劣化に伴って生じるひびわれからの放射性物質の漏出を、定量的に評価するための手法についても検討する必要がある。

我が国においては、埋設処分に関する歴史が浅いこともあり、現在のところ、人工バリアの劣

である。

しかしながら、現時点においては、アルカリ骨材反応はその反応機構が完全には明らかにされていないため、今回の文献調査においては、アルカリ骨材反応によるコンクリートの劣化を定量的に評価するためのモデルを見いだすことは出来なかった。

4. 長期健全性を考慮したコンクリートの作成方法

コンクリートの主要な劣化要因は、アルカリ骨材反応及び凍結融解を除いて、硫酸イオン等の化学物質のコンクリート内への拡散現象及びその後の化学反応に基づくものであることから、基本的には、密実で、透水性の小さくなるようなコンクリートを製作する配合比を用いることによって、耐久性の高いコンクリートを製作することが可能となる。Table 7に、本報告書において検討した5つの主要なコンクリートの劣化要因を低減させるための方法について、文献調査をした結果のまとめを示す^{10~12)}。

5. まとめ

低レベル放射性廃棄物処分施設の人工バリア材として使用される、コンクリート構造物の劣化原因及び劣化速度の評価手法について、文献調査を実施した。その結果、今回文献調査を実施した範囲では、米国及び英国を中心として、コンクリート構造物の長期耐久性を定量的に評価するための研究が盛んに実施されていた。また、調査結果によれば、低レベル放射性廃棄物処分施設に使用されるコンクリート構造物の主要な劣化要因としては、鉄筋の腐食、水酸化カルシウムの溶出、硫酸塩による浸食、凍結融解及びアルカリ骨材反応を考慮すれば十分であることがわかった。さらに、今回調査を実施したこれらの研究結果及び本報告書における試算結果によれば、製作時における品質保証及び品質管理が十分に実施されれば、コンクリート構造物は、相当長期間にわたってその健全性を維持することができるものと考えられ、米国等において要求されている寿命期間の500年を十分満足するものと判断された。

しかしながら、本報告書に示した試算結果は、個々の劣化現象を別々に評価したものであり、実際の現象は、凍結融解を除いて（ただし、十分な覆土厚さがある場合）、同時に進行することから、総合的な劣化速度を評価できるような計算コードを開発する必要があると考える。また、現在のコンクリートは長期にわたる使用実績がなく、短期間の実験結果を外挿したものであり、長期の予測を実施するためには限界があるとする意見³⁴⁾もあることから、今後も一層のデータの蓄積等を図ることにより、安全審査等に耐えうるような定量的な評価手法を開発していく必要がある。さらに、埋設処分した放射性物質の環境中への移行量を定量的に把握するためには、コンクリート構造物の劣化に伴って生じるひびわれからの放射性物質の漏出を、定量的に評価するための手法についても検討する必要がある。

我が国においては、埋設処分に関する歴史が浅いこともあり、現在のところ、人工バリアの劣

である。

しかしながら、現時点においては、アルカリ骨材反応はその反応機構が完全には明らかにされていないため、今回の文献調査においては、アルカリ骨材反応によるコンクリートの劣化を定量的に評価するためのモデルを見いだすことは出来なかった。

4. 長期健全性を考慮したコンクリートの作成方法

コンクリートの主要な劣化要因は、アルカリ骨材反応及び凍結融解を除いて、硫酸イオン等の化学物質のコンクリート内への拡散現象及びその後の化学反応に基づくものであることから、基本的には、密実で、透水性の小さくなるようなコンクリートを製作する配合比を用いることによって、耐久性の高いコンクリートを製作することが可能となる。Table 7に、本報告書において検討した5つの主要なコンクリートの劣化要因を低減させるための方法について、文献調査をした結果のまとめを示す^{10~12)}。

5. まとめ

低レベル放射性廃棄物処分施設の人工バリア材として使用される、コンクリート構造物の劣化原因及び劣化速度の評価手法について、文献調査を実施した。その結果、今回文献調査を実施した範囲では、米国及び英国を中心として、コンクリート構造物の長期耐久性を定量的に評価するための研究が盛んに実施されていた。また、調査結果によれば、低レベル放射性廃棄物処分施設に使用されるコンクリート構造物の主要な劣化要因としては、鉄筋の腐食、水酸化カルシウムの溶出、硫酸塩による浸食、凍結融解及びアルカリ骨材反応を考慮すれば十分であることがわかった。さらに、今回調査を実施したこれらの研究結果及び本報告書における試算結果によれば、製作時における品質保証及び品質管理が十分に実施されれば、コンクリート構造物は、相当長期間にわたってその健全性を維持することができるものと考えられ、米国等において要求されている寿命期間の500年を十分満足するものと判断された。

しかしながら、本報告書に示した試算結果は、個々の劣化現象を別々に評価したものであり、実際の現象は、凍結融解を除いて（ただし、十分な覆土厚さがある場合）、同時に進行することから、総合的な劣化速度を評価できるような計算コードを開発する必要があると考える。また、現在のコンクリートは長期にわたる使用実績がなく、短期間の実験結果を外挿したものであり、長期の予測を実施するためには限界があるとする意見³⁴⁾もあることから、今後も一層のデータの蓄積等を図ることにより、安全審査等に耐えうるような定量的な評価手法を開発していく必要がある。さらに、埋設処分した放射性物質の環境中への移行量を定量的に把握するためには、コンクリート構造物の劣化に伴って生じるひびわれからの放射性物質の漏出を、定量的に評価するための手法についても検討する必要がある。

我が国においては、埋設処分に関する歴史が浅いこともあり、現在のところ、人工バリアの劣

化を定量的に評価した安全評価は実施されていない。しかしながら、今後、このようなコンクリート構造物の劣化及び放射性物質の漏出に関する定量的な評価を実施することによって、低レベル放射性廃棄物の処分に対する安全評価の過度の保守性及び費用を減少させることが可能になるとともに、廃棄物処分に関する社会的受容性を得ることが容易になると判断される。したがって、コンクリート構造物の劣化に関する定量的評価手法の早急な確立が望まれる。

参考文献

- 1) 原子力委員会, “原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画”, (1994).
- 2) Chevrier, G. and M. Dutzer, “The Centre De L'Aube Low-Level Waste Disposal Facility,” Proceedings from Waste Management '92, Vol. 2, pp. 1345-1351, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1992).
- 3) Lopez, M.C.R., P. Zuloaga and J. Alonso, “Design and Licensing of the El Cabril L/LLW Disposal Facility,” Proceedings from Waste Management '93, Vol. 1, pp. 131-136, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1993).
- 4) Rattan, D. S., “Performance Assessment for LLRW Disposal in a Near Surface Repository,” Proceedings from Waste Management '93, Vol. 1, pp. 395-399, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1993).
- 5) Atkinson, A. and J. A. Hearne, “An Assessment of the Long-Term Durability of Concrete in Radioactive Waste Repositories”, AERE-R 11465, AERE Hawell, October, (1984).
- 6) Nuclear Regulatory Commission (NRC), “10 CFR Part 61 : Licensing Requirements for Land Disposal of Radioactive Waste”, (1982).
- 7) Philipose, K. E., “500 Year Concrete for a Radioactive Waste Repository,” Proceedings from Waste Management '88, Vol. 1, pp. 995-999, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1988).
- 8) Finnish Centre for Radiation and Nuclear Safety, “Disposal of Reactor Waste”, YVL-guide 8.1, (1992).
- 9) 原子力安全委員会, “放射性廃棄物埋設施設の安全審査の基本的考え方”, (1993).
- 10) Chang, W. and B. Morreale, “Concrete Longevity Overview,” Proceedings from Waste Management '91, Vol. 2, pp. 461-465, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1991).
- 11) Clifton, J. R. and L. I. Knab, Service Life of Concrete, NUREG/CR-5466, NISTIR 89-4086, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, Md, November, (1989).
- 12) Cowgill, M. G. and D. R. MacKenzie, “Materials and Degradation Modes in an Alternative LLW Disposal Facility,” Proceedings from Waste Management '89, Vol. 2, pp. 689-696, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1989).
- 13) MacKenzie, D. R., B. Siskind, B. S. Bowerman, and P. L. Piciulo, Preliminary Assessment of Concrete as a Structural Material for Alternative Low-Level Radioactive Waste Disposal Technologies, NUREG/CR-4714, BNL-NUREG-52016, Brookhaven National Laboratory, Upton, N. Y., December, (1986).
- 14) Seitz, R. R. and J. C. Walton, Modeling Approaches for Concrete Barriers Used in Low-Level Waste Disposal, NUREG/CR-6070, EGG-2701, Idaho National Engineering Laboratory, Idaho Falls, Ida., November, (1993).

- 15) Walton, J. C., L. E. Plansky and R. W. Smith, Models for Estimation of Service Life of Concrete Barriers in Low-Level Radioactive Waste Disposal, NUREG/CR-5542, EG&G Idaho, Inc., Idaho Falls, Ida., September, (1990).
- 16) Tuutti, K. Corrosion of Steel in Concrete, Swedish Cement and Concrete Research Institute, Stockholm, (1982).
- 17) ORNL (Oak Ridge National Laboratory), Performance Assessment for Continuing and Future Operations at Solid Waste Storage Area 6, ORNL-6783, Martin Marietta Energy Systems, Inc., Oak Ridge, Tenn., February, (1994).
- 18) Shuman, R., N. Chau, and E. A. Jennrich, The Source Computer Codes: Models for Evaluating the Long-Term Performance of SWSA & Disposal Units, Version 1.0: User's Manual, RAE-9005/8-1, Rogers and Associates Engineering Corporation, Salt Lake City, UT., April, (1992).
- 19) Shuman, R., V. C. Rogers, N. Chau, G. B. Merrell, and V. Rogers, Performance Assessment for Low-Level Waste Disposal Facilities, prepared by Rogers and Associates Engineering Corporation for Electric Power Research Institute, NP-5745M and SP, Palo Alto, Calif., April, (1988).
- 20) Hausmann, D. A., "Steel Corrosion in Concrete," Material Protection, November 19-23, (1967).
- 21) 地下水ハンドブック編集委員会編, "地下水ハンドブック", (株) 建設産業調査会, (1979), 1537.
- 22) (社) 日本建築学会編, "建築工事標準仕様書・同解説 JASS 5 鉄筋コンクリート工事", (株) 技報堂, (1994), 721.
- 23) 小林一輔. 鋼材腐食によるコンクリート構造物の劣化機構, 土木施工, Vol. 25(9), pp. 20-26, (1984).
- 24) Walton, J. C. and B. Sagar, "A Corrosion Model for Nuclear Waste Containers," Scientific Basis for Nuclear Waste Management X (Material Research Symposium Proceedings, Vol. 84, pp. 271-282), Material Research Society, Pittsburgh, Pa., (1987).
- 25) Brandstetter, E.R., Lolcama, J.L., and Reed, S. R., "An Integrated Degradation and Structural Model for Predicting the Service Life of Buried Reinforced Concrete Structures for low- and Intermediate-Level Radioactive Waste Disposal," Proceedings from Waste Management '94, Vol. 1, pp. 89-97, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1994).
- 26) Atkinson, A., The Time Dependence of pH within a Repository for Radioactive Waste Disposal, AERE-R 11777, AERE Hawell, April, (1985).
- 27) Suda, K., S. Misra, and K. Motohashi, "Corrosion Products of Reinforcing Bars Embedded in Concrete," Corrosion Science, Vol. 35, Nos. 5-8, pp. 1543-1549, (1993).
- 28) Verbeck, G. J., "Mechanism of Corrosion of Steel in Concrete," Corrosion of Metals in Concrete, ACI Publication SP 49-3, pp. 27-38, American Concrete Institute, Detroit, Mich., (1975).

- 29) Perry, R. H. and C. H. Chilton, *Chemical Engineer's Handbook*, 5th ed., McGraw Hill Book Company, New York, (1973).
- 30) Langelier, W.F., "The Analytical Control of Anti-Corrosion Water Treatment," *J. Amer. Water Works Assoc.* 28(10), 1500-21, (1936).
- 31) Lea, F. M., *The Chemistry of Cement and Concrete*, 3rd ed., Edward Arnold, Ltd., London. (1970).
- 32) Atkinson, A. and J. A. Hearne, "Mechanistic Model for the Durability of Concrete Barriers Exposed to Sulphate-Bearing Groundwaters," *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIII (Material Research Symposium Proceedings, Vol. 176, pp. 149-156)*, Material Research Society, Pittsburgh, Pa., (1990).
- 33) 長谷川寿夫, 藤原忠司. "コンクリート構造物の耐久性シリーズ: 凍害", 技報堂出版, (1988), 144.
- 34) Kozak, M. W. and M. S. Y. Chu, "Overview of a Performance Assessment Methodology for Low-Level Radioactive Waste Disposal Facilities," *Proceedings from Waste Management '91, Vol. 2, pp. 773-777*, R. G. Post (editor), Tucson, Ariz., (1991).

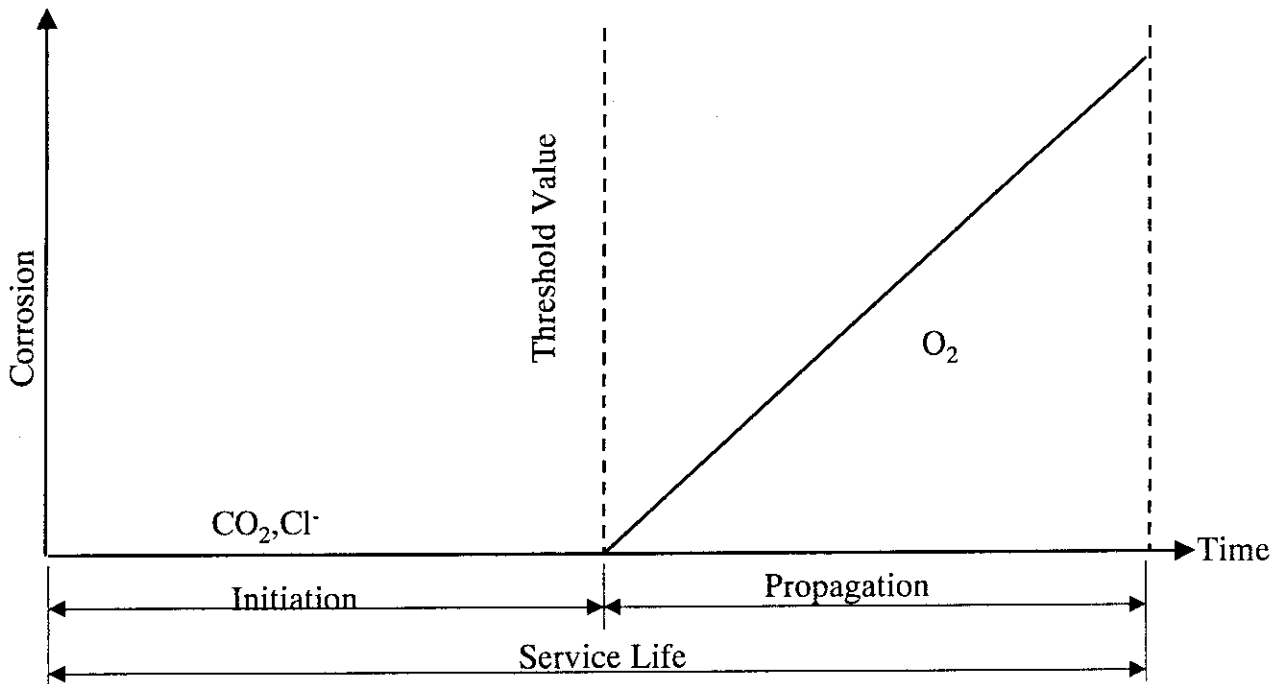


Fig. 1 Schematic of conceptual model of corrosion of steel reinforcement in concrete¹⁶⁾

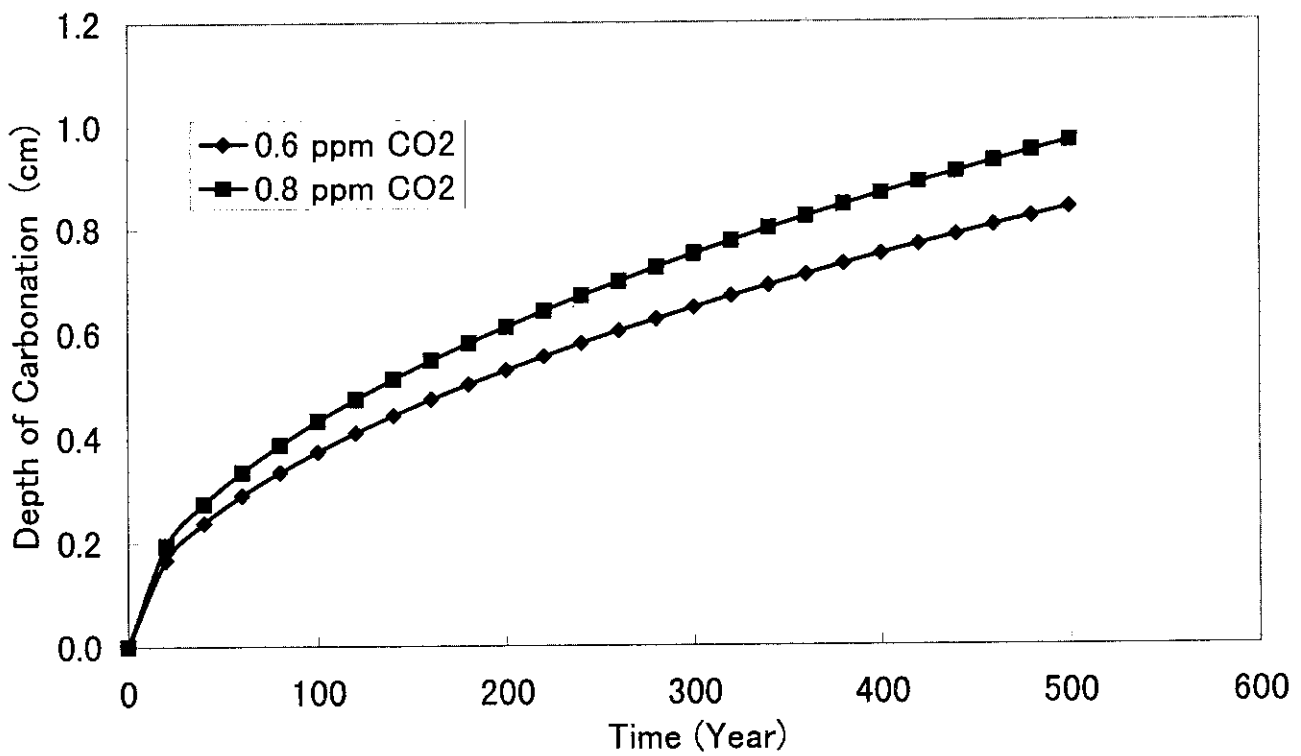


Fig. 2 Relationship between the depth of carbonation and the concentration of carbon dioxide as a function of time

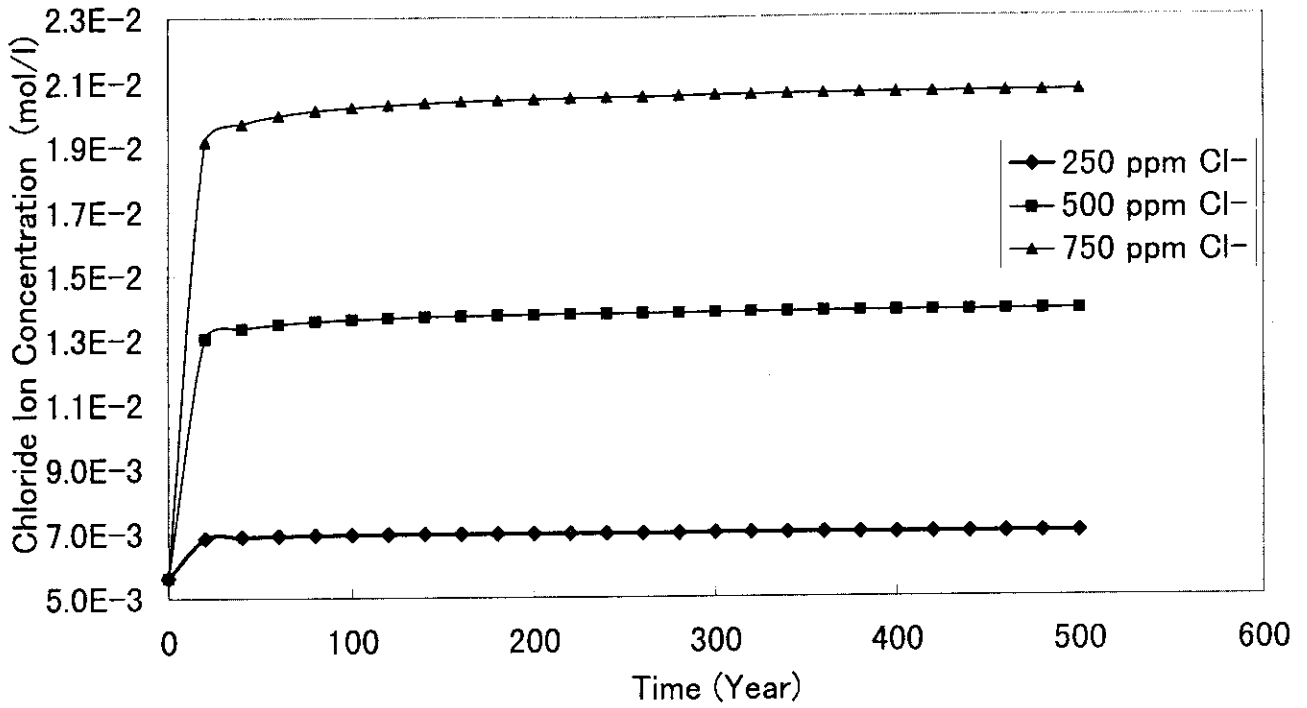


Fig. 3 Chloride ion concentration at steel reinforcement as a function of time

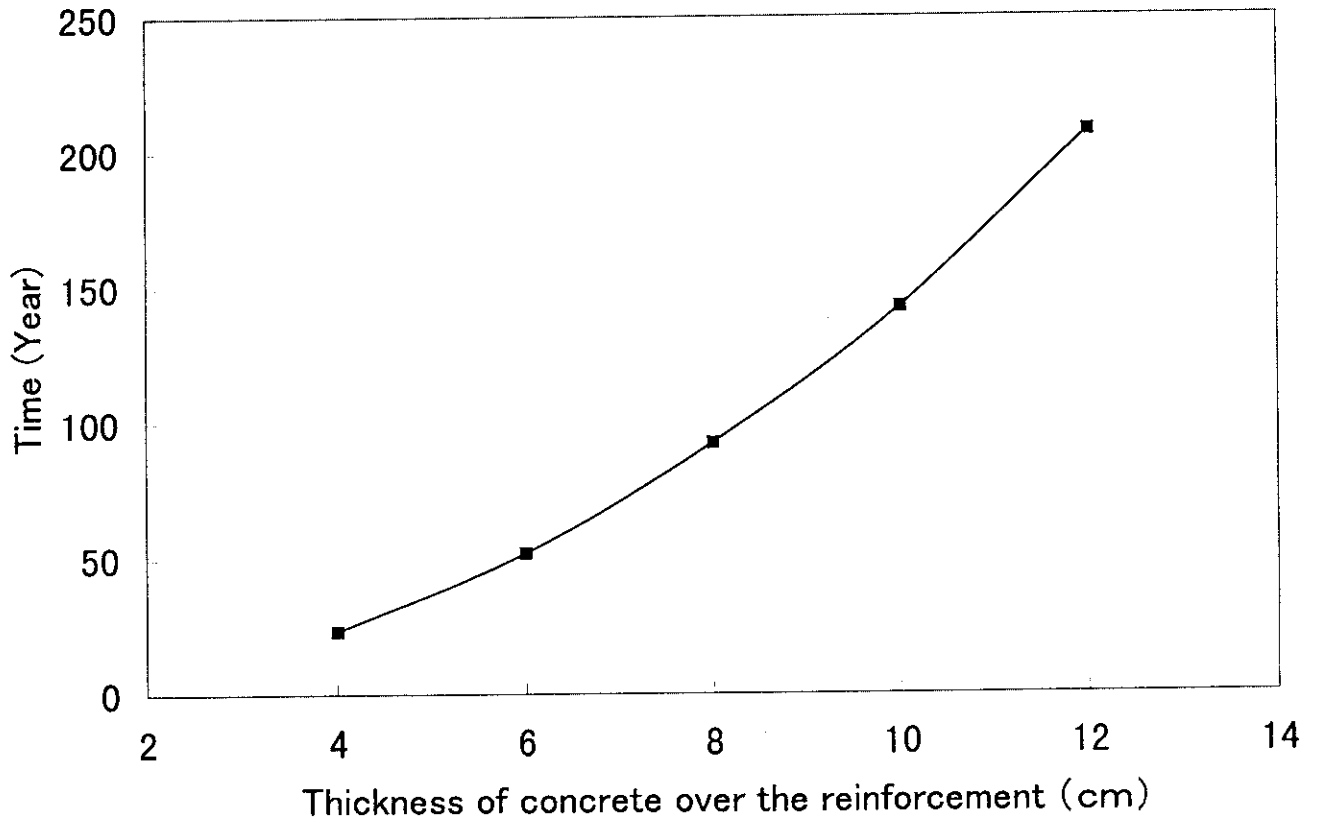


Fig. 4 Relation between time to initiation and thickness of concrete over the reinforcement

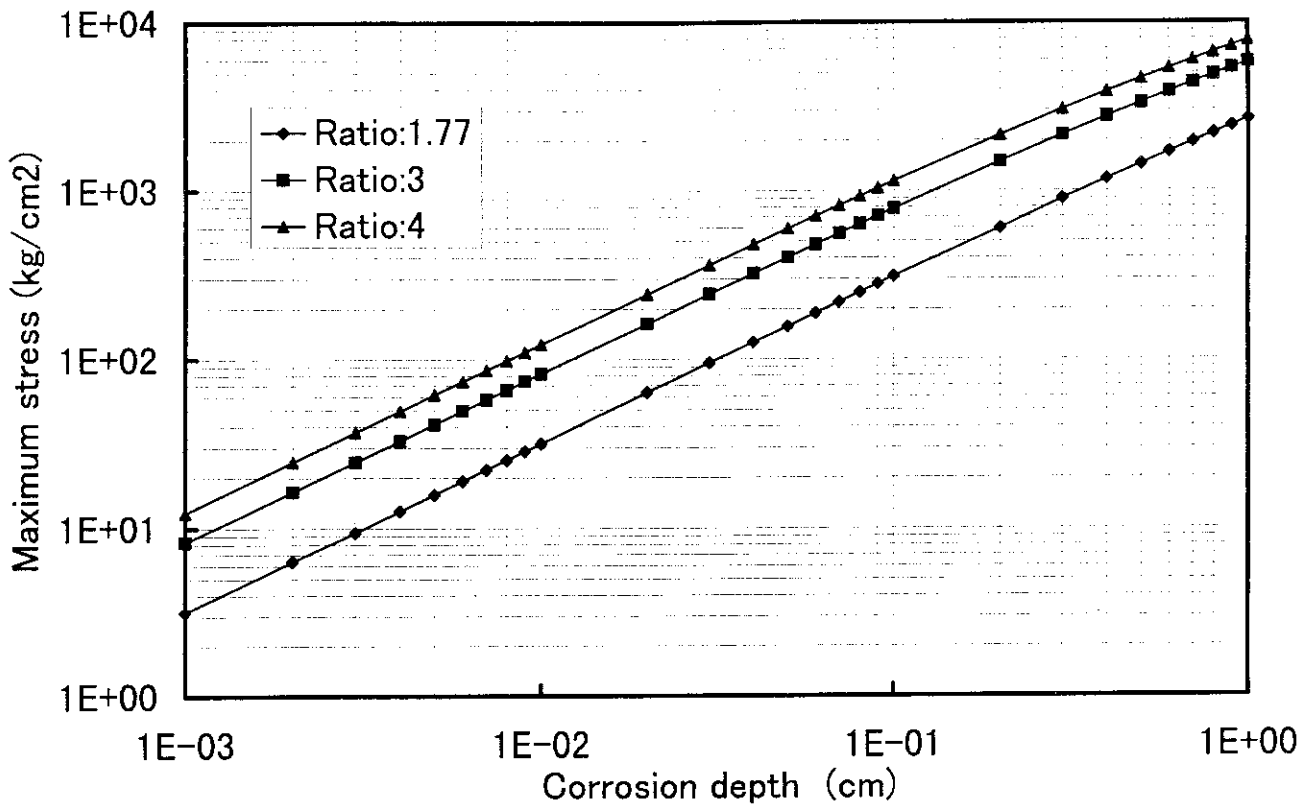


Fig. 5 Maximum stress against corrosion depth of the reinforcement embedded in concrete for three different volumetric expansion ratios

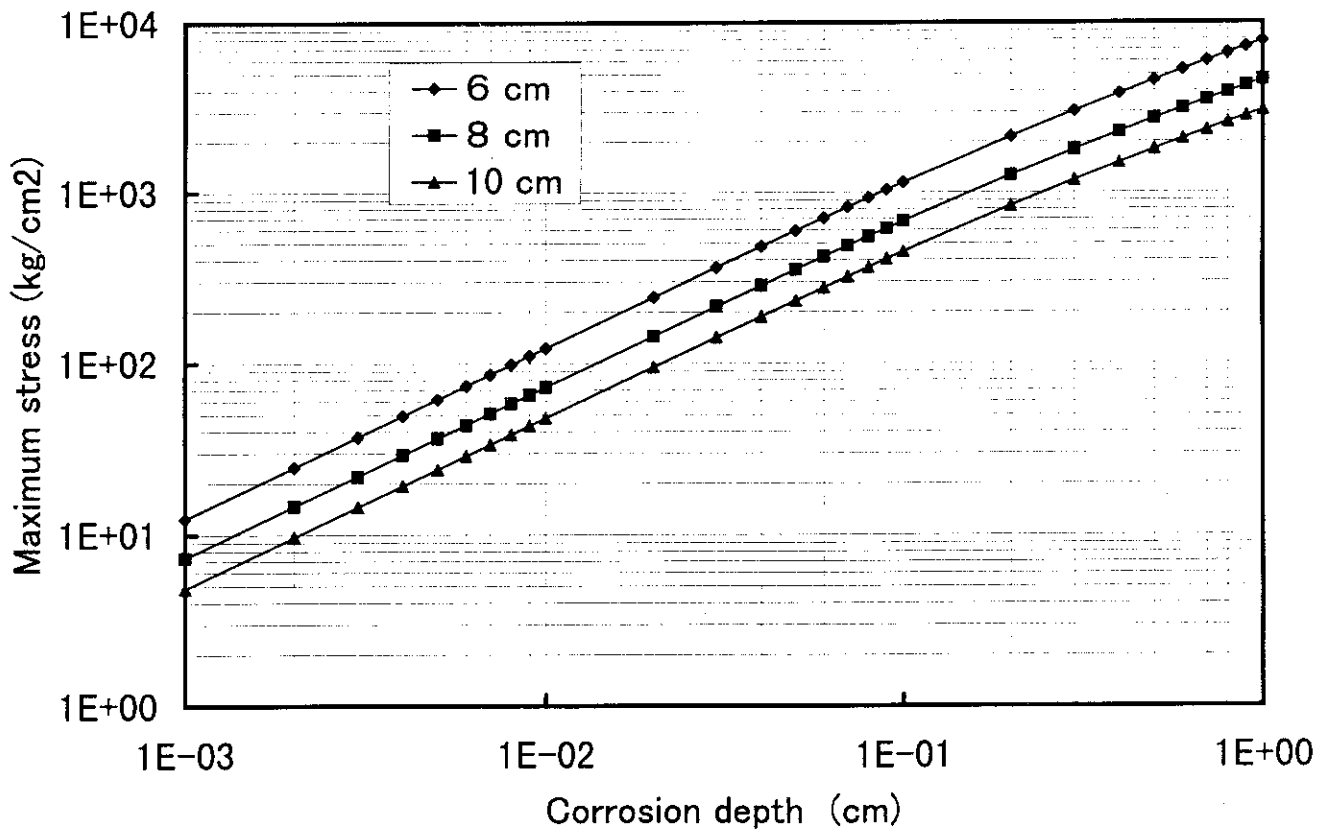


Fig. 6 Maximum stress against corrosion depth of the reinforcement embedded in concrete for three different thickness of concrete cover

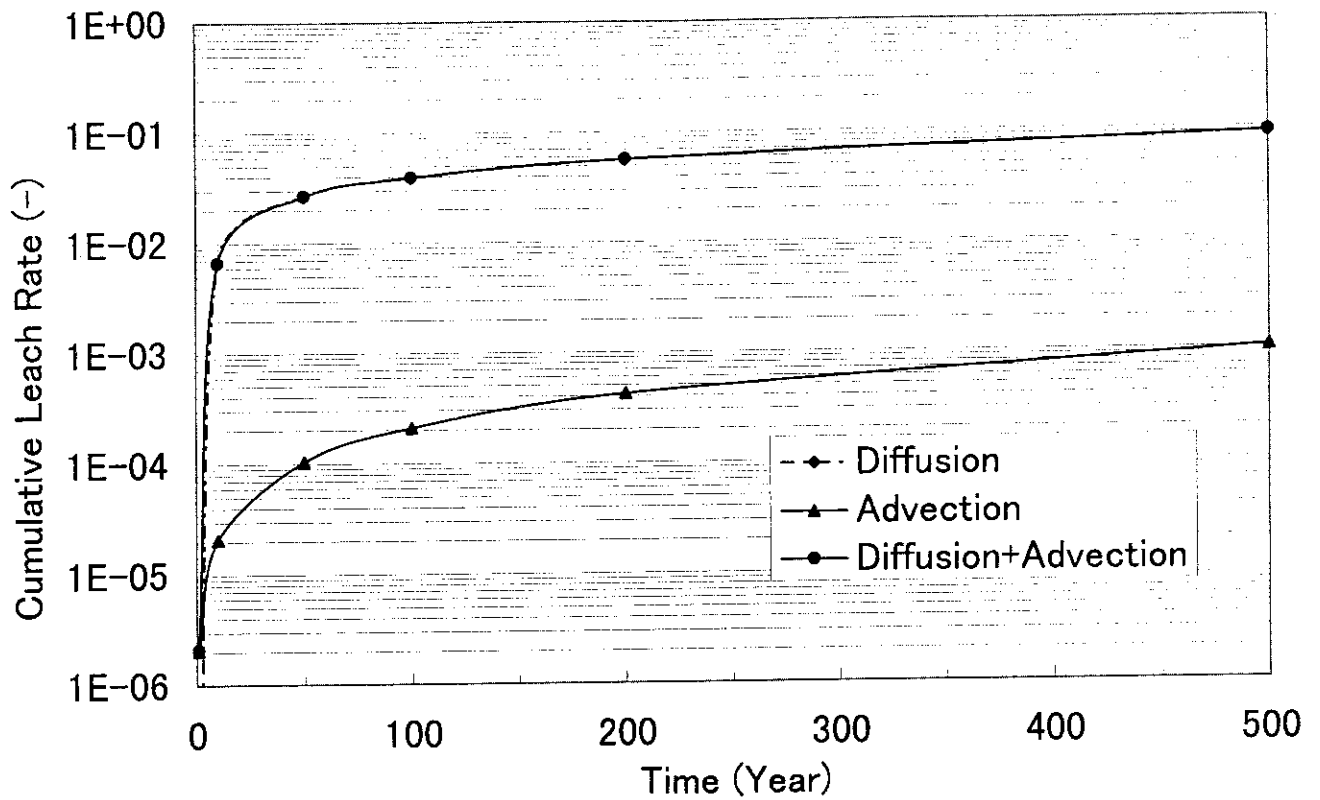


Fig. 7 Cumulative leach rate of calcium hydroxide due to diffusion and advection as the function of time

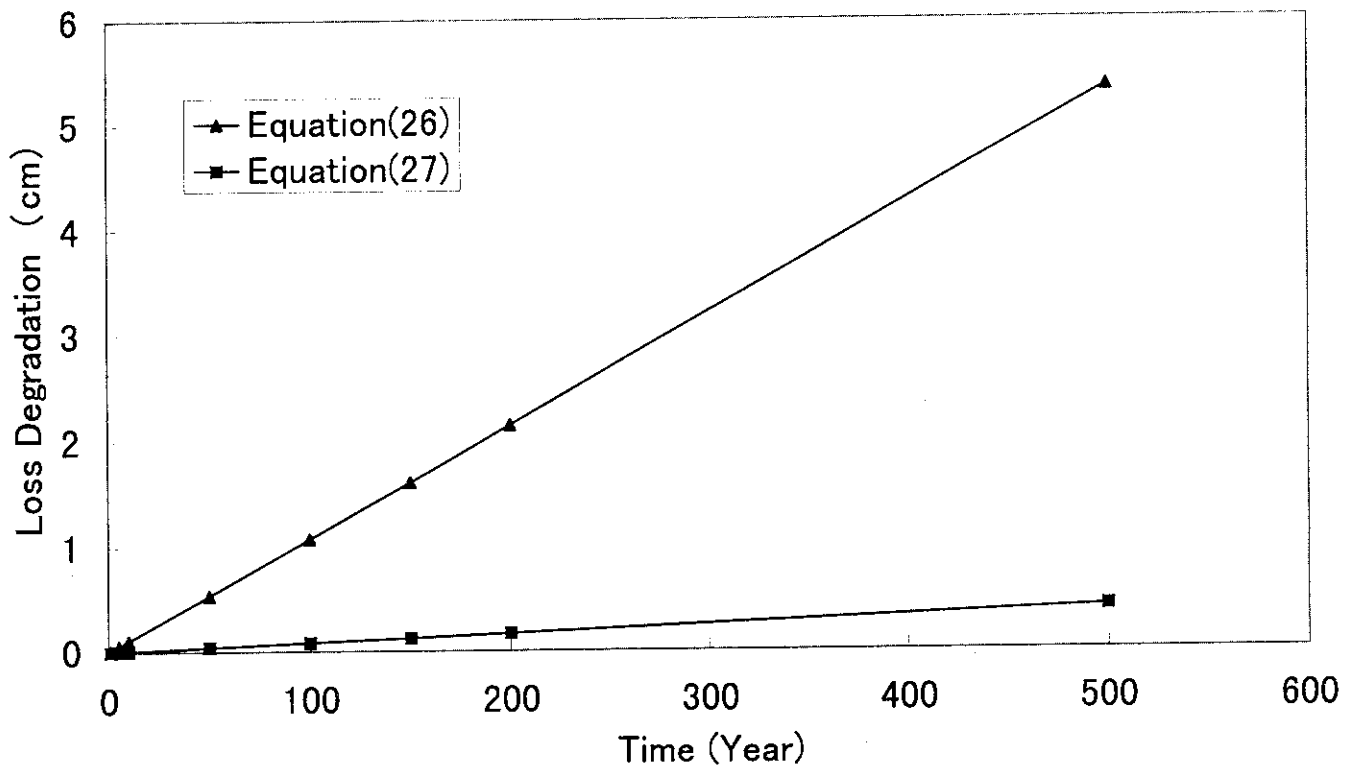


Fig. 8 Estimation of sulfate attack rate based upon equation (26) and (27)

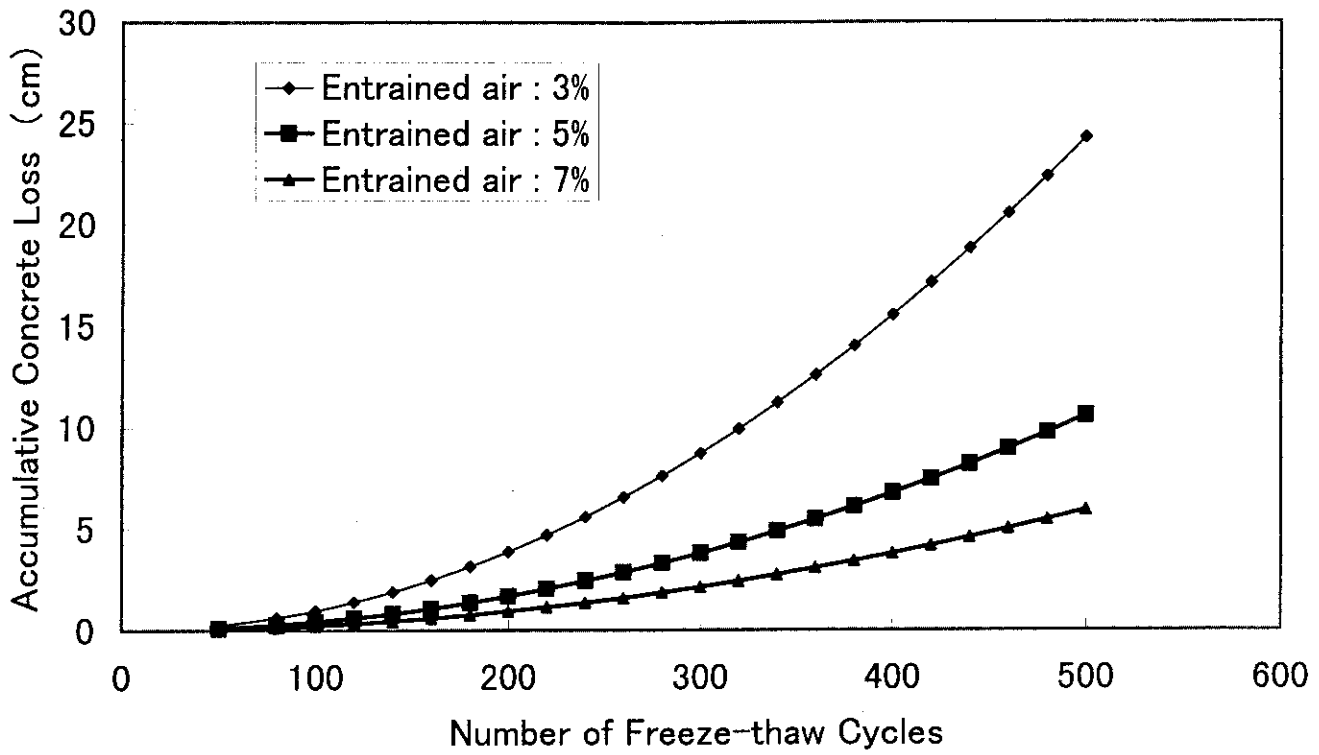


Fig. 9 Loss from freeze-thaw attack in different percents of entrained air in concrete

Table 1 Major degradation causes for concrete structures

Internal causes	External causes
<ul style="list-style-type: none"> • Chemical causes <ul style="list-style-type: none"> Alkali aggregate reaction • Physical causes <ul style="list-style-type: none"> Drying shrinkage • Thermal causes <ul style="list-style-type: none"> Design loads, Creep • Gel crystallization 	<ul style="list-style-type: none"> • Chemical degradation processes <ul style="list-style-type: none"> Chloride attack Sulfate attack Carbonation Corrosion of reinforcement Organic acid attack • Freeze-thaw cycling • Leaching of $\text{Ca}(\text{OH})_2$ • Effects of radiation • Action of micro-organisms

Table 2 Constituents of corrosion products resulting from the different atmospheric conditions²⁸⁾

Region	Major anion	α -FeOOH	β -FeOOH	γ -FeOOH	Fe_3O_4
City & industrial region	SO_4^{2-}	30 - 65 %	0	20 - 30 %	0 - 20 %
Seashore region	Cl	15 - 80 %	<30 %	0 - 10 %	10 - 85 %

Table 3 Volumetric expansion ratio and other properties of different corrosion products^{27, 29)}

Compound	Density (g/cm ³)	Molecular weight	Molar volume (cm ³ /mol)	Volumetric expansion ratio
Iron(Fe)	7.86	55.85	7.11	—
Ferrous oxide(FeO)	5.70	71.85	12.61	1.77
Ferric oxide(Fe ₂ O ₃)	5.12	159.7	31.19	2.19
Magnetite(Fe ₃ O ₄)	5.2	231.55	44.53	2.09
Goethite(α -FeOOH)	3.3 - 4.3	88.85	20.66 - 26.92	2.91 - 3.79
Akaganeite(β -FeOOH)	3.0	88.85	29.62	4.17
Lepidocrocite(γ -FeOOH)	4.1	88.85	21.67	3.05
Ferrous hydroxide(Fe(OH) ₂)	3.4	89.85	26.43	3.72
Ferric hydroxide(Fe(OH) ₃)	3.4 - 3.9	106.87	27.40 - 31.43	3.85 - 4.42

Table 4 Summary of numerical data used by the cracking analysis¹⁷⁾

Parameters	Values
Original radius of steel reinforcement	6.35×10^{-1} cm
Poisson's ratio of corrosion product	0.3
Poisson's ratio of concrete	0.15
Modulus of elasticity of corrosion product	2.04×10^{10} kg/m ²
Concrete cover thickness	6, 8, 10 cm
Specific compressive strength of concrete at 28 days	3.52×10^2 kg/cm ²
Constant α	8
Constant β	0.67
Time	3650 days

Table 5 Summary of numerical data used by the Ca(OH)₂ leaching analysis

Parameters	Values	Ref.
Density of concrete	2.40×10^3 kg/m ³	17)
Porosity of concrete	1.5×10^{-1}	17)
Water permeability of concrete	1.00×10^{-12} m/s	17)
Effective diffusion coefficient of Ca(OH) ₂ in concrete	1.82×10^{-11} m ² /s	17)
Ca(OH) ₂ concentration in concrete	1.75×10^6 mol/m ³	17)
Ca(OH) ₂ concentration in concrete pore solution	2.00×10^4 mol/m ³	17)
Ca ²⁺ concentration in groundwater	8.8×10^{-9} kg/m ³	21)
CO ₃ ²⁻ concentration in groundwater	3.10×10^{-8} kg/m ³	21)
Mg ²⁺ concentration in groundwater	1.9×10^{-9} kg/m ³	21)
Total dissolved solids in groundwater	3.49×10^{-7} kg/m ³	17)
Groundwater pH	6.75	17)
Groundwater temperature	15.0	17)

Table 6 Summary of numerical data used by the sulfate attack analysis

Parameters	Values	Ref.
Quantity of cement in concrete	0.385 g/cm ³	17)
Value of m for complete reaction	1.24	32)
Kinetic constant for m	0.32	32)
Sulfate concentration in groundwater	1.10×10^{-7} mol/cm ³	21)
Characteristic time for reaction	3577 s	32)
Concentration in kinetic experiments	1.22×10^{-5} mol/m ³	32)
Roughness factor for fracture path	1.0	32)
Fracture surface energy of concrete	1×10^{-3} J/cm ²	32)
Poisson's ratio of concrete	1.50×10^{-1}	17)
Young's modules	2.0×10^{10} Pa	32)
Linear strain caused by one mole of sulfate reacted in 1 cm ³	1.8×10^{-12} mol/cm ³	32)
Intrinsic diffusion coefficient of Mg ²⁺ in concrete	1.06×10^{-7} cm ² /s	17)
Mg ²⁺ concentration in groundwater	7.82×10^{-8} mol/cm ³	32)
Percentage by weight of C ₃ A in the unhydrated cement	8 %	17)

Table 7 Concrete formulations suitable for mitigating the effects of the five major degradation factors^{10,11)}

Degradation factors	Mitigative measures
1. Sulfate attack	(1) There is evidence that the contents of tricalcium alminate (C_3A) in Portland cement greatly affected its sulfate resistance. Use moderate heat Portland cement (max. C_3A <8%) for negligible or moderate exposure. Use sulfate resisting Portland cement (max. C_3A <5%) plus pozzolans (ex. Silica fume, flyash, furnace slag) for very severe exposure. (2) There is also evidence that the aluminoferrite (C_4AF) phase of Portland cement may participate in delayed sulfate attack and, thus, limits have been placed on its contents. (3) Maximum water-cement ratio should not exceed 0.50 for moderate exposures and 0.45 for severe and very severe exposure. (4) Decreasing the $Ca(OH)_2$ contents will reduce the amount of concrete expansion caused by the formation of gypsum.
2. Corrosion of re-inforcement (Chloride attack)	(1) Use ordinary Portland cement with tricalcium alminate less than 10 %. (2) Use pozzolans to reduce of water permeability. (3) Maximum water-cement ratio should not exceed 0.40. (4) Set concrete cover over reinforcement 7.5 cm in minimum. (5) Limit chlorides to 0.15 % by weight of cement. (6) Use epoxy-coated reinforcement.
3. Calcium hydroxide leaching	In addition to the mitigative measures (1) to (3) for chloride attack, use limestone aggregates if the groundwater is acidic but stagnant. If the groundwater is highly acidic, an appropriate surface coating must be used.
4. Alkali aggregate reaction	(1) Methods for preventing alkali-silica reaction are as follows: 1) not to use a reactive aggregate, 2) use of low-alkali cement (maximum of 0.60% equivalent sodium oxide), and 3) use of pozzolans. (2) Unlike with alkali-silica reactions, pozzolans are not effective in mitigating alkali-carbonate reactions except for diluting the alkali content of concrete.
5. Freeze-thaw cycling	(1) Measures should be implemented during construction and filling stages to minimize uptake of water. For example, the geometry of the construction site should promote drainage away from the structure. (2) Maximum water-cement ratio should not exceed 0.4 for thin sections and sections less than 25 mm of cover over the reinforcement. For all other structures, maximum water-cement ratio should not exceed 0.45. (3) Use air entrainment 4 to 6 % for moderate exposure and 5 to 7 % for severe exposure. (4) Concrete should attain a compressive strength of 28 MPa before being subjected freezing and thawing exposure. If the exposure is moderate, then a compressive strength of 21 MPa should be adequate.