海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究(第2報)*

—モルタル試料の透水および拡散(1)—

佐々木 忠 義** 岡 崎 守 良*** 渡 辺 精 一***
大 柴 五八郎*** 岸 野 元 彰***

Studies on the Container for Disposing Radioactive Wastes into the Sea—II

—On the Permeability and Diffusion in Mortar Samples (1)—

Tadayoshi SASAKI, Moriyoshi OKAZAKI, Seiichi WATANABE,
Gohachiro OSHIBA and Motoaki KISHINO

Abstract : The investigation on the hydraulic strength of the mortar container and the corrosion resistance of the metal covering, with reference to the disposal of radioactive wastes into the sea have been described in the previous report.

As the sea water easily permeates into the concrete container in the conditions of high hydraulic pressure on the deep sea floor, it is feared that the water soluble radioactive wastes may leak out from the container by the action of the molecular diffusion and then may contaminate the surrounding sea water. In order to investigate the above-mentioned problem, studies were carried out on the diffusion in the container wall made of mortar. "The results on diffusion in mortar" which are obtained from experiments using NaCl solution as a tracer at the first step, will be reported in this paper. The concentration of chloride ion was determined by the method of titration by silver nitrate according to F. MOHR. In the investigation, the authors define that "the diffusion coefficient in mortar" is the physical constant which is mainly attributed to two factors, namely, the diffusing energy of solution and the porosity of the mortar.

As for chloride ion, the diffusion coefficient in the mortar of standard proportion is about 1.4×10^{-9} to 5.4×10^{-9} (cm^2/sec). Moreover, we obtained the following relationship between the diffusion coefficient (D) and the coefficient of permeability (P), i.e. D is equal to $\alpha \times P^{1.5}$, where α is 3.16×10^{-5} , when D and P are larger than 10^{-9} (cm^2/sec , cm/sec respectively), and we estimated that D is equal to P when both D and P are smaller than 10^{-9} (cm^2/sec , cm/sec respectively).

Considering only about the present results with respect to chloride ion, we could not neglect the contamination of sea water resulting from the diffusion in mortar. We, however, are continuously carrying out the similar studies on the diffusion making use of water-soluble radio-isotope as a tracer, for the purpose of getting more details about the diffusion in mortar.

* 1964年7月31日受理

** 東京水産大学, 理化学研究所 Tokyo University of Fisheries, The Institute of Physical and Chemical Research

*** 理化学研究所 The Institute of Physical and Chemical Research

1. ま え が き

海洋投棄用放射性廃棄物容器の耐圧性, ならびに外被金属の腐食性についてはすでに第1報¹⁾で報告した。引き続きモルタル容器の拡散性ならびに透水(透過)性に関する実験を行なった。

コンクリートの透水性（水密性）に関してはすでに土木工学において多くの研究がなされているが、^{2)~9)} 一般にコンクリート容器に放射性廃棄物を充填し深海底に投棄した場合、高水圧のため容易にコンクリート容器内部へ海水が透水するであろう。透水現象が終了しコンクリートの空隙を通して容器内外の水がつながり、また容器内外の圧力差も消失した後、水溶性の放射性廃棄物は分子拡散力によってコンクリート容器内と外との濃度差のために外部へ滲出し始め、遂には海水を汚染することが懸念される。コンクリート（モルタル）の拡散に関しても水の場合、土木工学的に研究が行なわれている。⁷⁾¹⁰⁾ これらの研究は比較的ち密なコンクリートに相当の圧力で水を圧入する際、コンクリート内の水の流れ方を拡散的流れと考えているのであって、圧入に特色を有する。他方においてコンクリート壁の両面における圧力が平衡を保っている時には、ただ水溶液中の溶質等の分子運動力のみで均一分布過程として拡散滲透することが考えられる。本報告中、「モルタル内の拡散係数」とは、透水係数が空隙率の関数であるのと同様にモルタルの物理的性質、特に空隙率に関する量の関数で主に溶液の分子拡散係数とモルタルの空隙率的量により定まり、また溶液とモルタルの化学的性質によっても規定される定数と考える。以下これを単に「拡散係数」と書き表わすことにする。本実験では小型の試料を使用するから、試料による実験値の「ばらつき」等を少なくするために小骨材のみを用いて試料を製作し均質であるようにした。したがってコンクリートではなくモルタルでもって実験試料を製作した。モルタルの各種特性を考察する際に注意しなければならないことは、同一配合のモルタルを使用した実験においても製作の際の材料の混合・締め固め具合、また養生の方法および期間の差等によって、特性に相当の変動がみられることである。

したがってモルタルの特性を表わすためにモルタルの配合を規定するだけでは不十分であって、混合、養生等の結果として現われる透水係数をモルタルの基本的特性の一つと考え、「拡散係数」との関係を検討した。

本報告では前記の耐圧性試験に使用した廃棄物容器¹⁾と同一配合のモルタルを含む広い範囲にわたる数種の配合モルタル試料を使用して行なった溶液の「拡散性」に関する実験の結果をのべるが、放射性物質の代りにまず、NaCl 溶液を用いて拡散した塩素イオンを定量してモルタル試料内の拡散量を決定した。また実験にあたっては拡散実験に先立って、まず透水実験を行なった。

2. モルタル試料

実験に使用したモルタル試料の形は、直径28cmの円板で厚さは3.4cm ないし5.7cm の範囲で変えて9種類製作した。

モルタルの配合は第1報に報告したモルタル円筒および端蓋の耐圧性試験¹⁾の場合と同様の標準配合(重量比)“セメント：砂：水＝1：2：0.65”のほかに4種類の配合のモルタル試料を作り、一般的傾向を調べた。標準配合以外のモルタル試料はセメントに対する砂の割合を変えて製作し、水・セメント比(W/C)はすべて65%とした。したがって非常に固ネリのモルタル試料も含まれている。セメントの量に関する表現には土木工学で用いられる「単位セメント量」がある。これはコンクリートの1m³ 当りに使用された「セメント重量(kg)」であるが、本実験はモルタル試料であるし、配合の範囲が広く少し不便なので別の表現を用いた。モルタル試料の製作時の「モルタル全重量」（セメントと砂と水の重量和）に対する「使用セメントの重量」の百分率を「セメント百分率」とし、これを用いることにする。すなわち、前記耐圧試験に使ったモルタルの「セメント百分率」は27%に相当し、本実験の各種モルタル試料の「セメント百分率」は10～27%の範囲にわたっている。モルタル試料の配合、その他の性質に関する資料をまとめて Table 1 に示す。モルタル試料の内「セメント百分率」の小さいモルタルは強度試験結果からみてわかるように、非常に弱いもので実用上は無価値であるが、この弱いモルタル試料の実験によって実験誤差の入りやすい「セメント百分率」の高いモルタル試料の実験結果を検討することが可能である。また短い期間の実験では検出不

Table 1. Proportion and several constants of test pieces (mortar).

Test piece (mortar)	Cement percentage	Proportion C : S : W	Curing age	Bending strength	Compressive strength	Absorption	Remarks
	weight %		days	kg/cm ²	kg/cm ²	weight %	
1—8	27	1 : 2 : 0.65	33	64.37	295.0	10.5	h. s. p.
1—9	〃	〃	67	69.14	375.0	—	〃
5—1	23	1 : 2.7 : 0.65	35	46.26	192.5	7.9	〃
2—1	20	1 : 3.35 : 0.65	31	(24.0)	120.0	—	p.
2—2	〃	〃	64	38.61	182.5	8.4	〃
2—3	〃	〃	34	47.88	253.7	9.5	h. s. p.
3—2	15	1 : 5 : 0.65	30	19.66	75.0	12.3	p.
3—3	〃	〃	38	23.98	87.5	11.0	h. s. p.
3—4	〃	〃	76	29.02	137.5	14.1	〃
4—1	10	1 : 8.35 : 0.65	38	13.46	41.5	—	〃
4—2	〃	〃	85	16.97	60.0	—	〃
4—3	〃	〃	67	15.15	42.4	11.8	〃

C : cement S : sand W : water
h. s. p. : high-early-strength portland cement
p. : portland cement

Table 2. Sieve analysis data of the sand.

Screen opening (mm)		Weight percentage (%)
Pass	Retained	
1.2	0.6	13.4
0.6	0.3	48.7
0.3	0.15	32.1
0.15	—	5.8
Sum		100.0

Fig. 1. The size distribution of the sand.

可能な、一層大きい「セメント百分率」のモルタル試料の拡散量を推定出来る。このような理由から、広い範囲にわたる「セメント百分率」のモルタル試料について実験を行なった。

使用したセメントは一般のポルトランド・セメントおよび早強ポルトランド・セメントである。砂は市販の建築用砂を用いたが、試料を均質にするため最大骨材寸法を小さめにとって、フルイ目の開き 1.2mm の標準規格フルイを用いて使用前に粗粒子をフルイ分けして取り除いて粒度分布を統一した。Fig. 1 に砂の粒度曲線、Table 2 にフルイ分け試験結果を示す。砂の重量測定には砂

の含水率が影響するから同一状態の砂を用いた。砂の状態は「表面乾燥飽和状態」すなわち砂粒は表面水を持たないが砂粒の内部のすべての空隙は水によって飽和されている状態を規準とした。そのためフルイ分けした砂を水洗いし、1 昼夜水に浸した後、上記状態になるまで室内で乾燥した。製作はセメントと砂が均一になるまで十分混合し規定の水を加えてかくはんした後、2 度に分けて型枠に流し込み、つき棒を用いてそれぞれ 100 回以上つき固めた。試料の製作と同時に曲げ、お

よび圧縮強度試験を行なうために同一材料で、角柱形試験片 ($4 \times 4 \times 20 \text{ cm}$) を製作した。このモルタル試験片によって行なった曲げと圧縮の強度を Table 1 に示す。

モルタル成形後1～2日経過してから、モルタル試料と角柱形試験片を型枠からはずし、共にそのまま水温 20°C 程度の水槽中で実験日まで30～85日間水中養生を行なった。実験開始直前に試料の両端面をと石でみがきニート・ペースト層を除去すると共に、面を平滑にして実験の際の漏水を防いだ。透水および拡散の両実験の終了後、モルタル試料の「湿重量」を量り、その後十分乾燥させて、「乾重量」を量った。両者の差からモルタル試料の含水率を求めた (Table 1)。

3. 透水実験装置および透水実験

Fig.2. The apparatus for measuring the permeability (made of stainless steel, 250 kg/cm^2 max.).

Fig. 2 は透水実験用耐圧装置の断面図である。装置は化学的耐性を有するようステンレス・スチールで製作した。装置内部を観察するための窓、測定器を取り付け得る台座、および注水口、加圧用逆止弁が取り付けられている。加圧水槽に付い

ている圧力計は透水のため水圧が減じた場合5%以内の変動に制限して一定水圧を加えられるように、自動制御用電気接点が組み込まれていて、加圧ポンプを作動させることが出来る。

耐圧装置の最大使用水圧は 250 kg/cm^2 である。架台は耐圧装置の回転軸を支え、装置を鉛直、水平いずれの方向にも保持出来るようにしてあるが、本実験では主に鉛直にして使用した。上記装置にモルタル試料を水平に取り付け、試料上端面より水圧を加えモルタル試料を透過した水の量を一定時間毎に採水し、メス・シリンダーまたは天秤にて秤量した。実験時の水圧の範囲は $2 \times 10^{-3} \sim 6 \text{ kg/cm}^2$ であって、各モルタル試料について Table 4 にまとめて記してある。この水圧値はモルタル試料の強度を考慮してこわれない値に押えた。また「セメント百分率」の小さいモルタル試料は透水量が多すぎるので実験に都合の良い透水量を得るように水圧を減じて実験した。漏水を防ぐためにモルタル試料の側面と装置との間にガラス・パテを詰め、モルタル試料の上下端面にもゴム・シートを詰めた。単位時間当りの透水量は一般に時間と共に減少の傾向を見せている。実験にはすべてイオン交換樹脂を通して精製した純水を使用した。モルタル試料を透過した水は炭酸カルシウムを含んでいて白濁しており、漏水ではないことを明らかに示していた。透水実験は4～10日間にわたって行ない、透水量がほぼ一定になったと認められる日に終了し、直ちに拡散実験を始めた。

4. 拡散実験装置および実験方法

透水実験に引き続きモルタル試料を、Fig.3 に示す硬質塩化ビニール製の拡散実験用装置の中央に縦位置に置き、ボルトで固定した。ゴム・パッキング、パラフィンおよびガラス・パテを用いて水密にした。モルタル試料を中に介して一方の水槽に NaCl 溶液、他方の水槽に純水を満たし両方の水頭を等しくする。装置の容量はモルタル試料の厚さによって多少異なるが、NaCl 溶液は約 10.5 l 、純水は 9.8 l 程度である。モルタル試料を通して純水槽に向かう塩素の拡散によって、NaCl 溶液の塩素量は減少し、純水側の塩素量は次第に増

Fig. 3. The apparatus for measuring the diffusion (made of hard vinyl-chloride plastics).

加する。二つの水槽内で水塊が静止のままならば当然各水塊中に塩素量濃度の勾配が出来る。同様に深海底に投棄された廃棄物容器から放射性物質が滲出すれば、容器周囲には放射性物質の濃度勾配が時間の経過と共に形成されるだろう。しかし最近の報告(たとえば CARRUTHERS¹¹⁾, LAFOND¹²⁾など)で深海底においても流れの存在が確められていることから見て、滲出した放射性物質は流れ去り容器の内外の濃度差は相当長期間ほぼ一定と考えられる。したがって実験において、ひんぱんに両水槽内をかくはんし各水槽内では常に濃度が

均一になるよう努めた。このかくはんによる水塊中の乱流のためにモルタル内の拡散が促進される懸念があるが、それはモルタル試料内の空隙が小さいことから考えて、乱流は空隙のごく入口近傍のみに影響する程度であって無視出来ると考える。

使用した NaCl 溶液の濃度は 0.56 モル (塩素量濃度は 20 ‰) であるが、「セメント百分率」の大きいモルタル試料は塩素拡散量が少なく検出し難いので、NaCl 溶液の濃度を 1.68 モル程度に増して実験を行なった。NaCl 溶液の塩素減少量、純水側の塩素増加量の測定は、1 日 1 回約 24 時間間隔で両水槽から採水して塩素量を検定した。

塩素量の検定は規定¹³⁾にしたがって硝酸銀滴定法を採用し、ウラニンを吸着指示薬として使用した。純水側は塩素量が非常に稀薄であるために、湖水の塩素量検定に用いられるクロム酸カリを指示薬に採用した¹⁴⁾。また硝酸銀溶液の濃度も NaCl 溶液と純水側との二種類に変えて検定した。検定精度は NaCl 溶液の場合 0.01 ‰、純水側の場合 0.002 ‰ (2 mg/l) 程度である。しかし「セメント百分率」の大きいモルタル試料では、24 時間毎の塩素量変化率は測定精度と同じ程度の場合が多かった。したがってその 1 日当りの塩素量変化率が測定誤差を多く含む恐れも考えられるが、

Table 3. An example on the chlorine concentrations of NaCl solution and of fresh water (Test piece No.1-8).

The time elapsed	Concentration of NaCl solution	Decrease	Concentration of fresh water	Increase
days	‰ Cl	‰ Cl	‰ Cl	‰ Cl
0	62.47	—	0.026	—
1	62.45	0.02	0.038	0.012
3	62.33	0.12	0.058	0.020
4	62.23	0.10	0.063	0.005
6	62.18	0.05	0.070	0.007
7	62.07	0.11	0.073	0.003
10	62.01	0.06	0.082	0.009
13	61.90	0.11	0.086	0.004
Sum		0.57		0.060
Average variation per day		0.04 ₃		0.004 ₆

たとえば Table 3 のごとく13日間の全変化量は明らかに誤差よりも十分大きい。この全変化量を平均して求めた24時間当りの塩素量変化率は測定誤差でなく、拡散の結果と考えられる。故に、これら実測値は実験資料として十分信頼出来よう。滴定の際、モルタル試料がアルカリ性であるから水槽内の水は水素イオン濃度 (pH) が高くなりがちであり、またカルシウム・イオンも溶け出すらしく指示薬の発色が悪くなり滴定困難な場合があった。その時には酢酸アンモン等を添加して滴定を行なった。なお予備実験において、これらの薬品を添加しても塩素量検定に何ら影響を与えないことを確めた。

5. 実験結果とその考察

1) 透水実験結果

モルタルの透水は Darcy の法則にしたがうものとする。3. に述べた実験から得られた透水量と、次の一次元の流れに関する Darcy の式とより、透水係数を計算した。

$$\frac{Q}{A} = P \cdot \frac{H}{L} \quad (1)$$

ここに P は透水係数 (cm/sec), Q は単位時間当りの透水量 (cm³/sec), A は水の流れの向きに垂直な断面積 (cm²), H は水頭 (圧力) 差 (cm) および L はモルタル試料の厚さ (cm) である。毎日、いくつか測定された透水量より各々透水係数を求め、その平均値をその日の透水係数とした。Fig. 4 に透水係数の日変化の1例を示す。図のごとく透水係数は一般に実験開始時に大きく、時間の経過と共に減少して次第に一定値に近づく。したがって透水係数がほぼ一定になったと認められる日の値をとって、そのモルタル試料の透水係数とした。各モルタル試料について測定された透水係数は、他の資料と共にまとめて Table 4 に示す。

1. に述べたようにモルタルの透水性 (水密性) は種々の条件で変化するものであるがそれらの内、養生期間と透水量との関係は Fig. 5 のごとくである¹⁵⁾。

Fig. 5 にしたがって透水係数に養生期間の補正を行ない、全モルタル試料について30日間養生後の透水係数を計算した。各モルタル試料の「セメント百分率」と養生30日の透水係数との関係を Fig. 6 に示す。同一配合のモルタル試料であっても点の分布に「ばらつき」が見られるが、「セメント百分率」の増加に対し透水係数はほぼ一様に減少する傾向がみられる。標準配合のモルタル試料 (27%) の透水係数はおおよそ $10^{-9} \sim 10^{-8}$ (cm/sec) である。なお Fig. 6 の点の分布から、より大きい「セメント百分率」のモルタルの透水係数を推定することも可能である。

2) 拡散実験結果

4. の拡散実験から得られた NaCl 溶液および純水側の塩素量の時間変化を各々、Fig. 7, Fig. 8 にモルタル試料 (No. 3-2) を1例として示した。黒丸は毎日の塩素量であって、白丸は塩素量の24時間の変化量である。NaCl 溶液 (Fig. 7) では実験開始当初には24時間の変化量が大きい。このモルタル試料 (No. 3-2) のような空隙の多いモルタル試料においては、数日間で塩素量の24時間の変化はほぼ一定になって 0.12% 程度に落ち着く。NaCl 溶液の塩素量が実験開始後すぐに減少し始めているのに比べ、純水側 (Fig. 8) は最初は徐々に塩素量が増加してやはり数日間で24時間変化量はほぼ一定となる。この時の純水側の24

Fig. 4. An example of the coefficient of permeability determined from the day to day variation, graphically. (Test piece No.3-2)

Fig. 5. A relation between the curing age and the permeability (volume percentage) in mortar (after ONO (1959)¹⁵⁾).

Fig. 6. An experimental relation between the cement percentage and the coefficient of permeability of test pieces (mortar).

時間変化量は0.12%前後で、NaCl 溶液の24時間変化量に一致している。このように「セメント百分率」の小さいモルタル試料は実験期間内に NaCl 溶液の塩素イオン減少量と純水側の塩素イオン増加量が等しくなるが、「セメント百分率」の大きいモルタル試料は、一般に実験期間中には両者が一致するまでに至らなかった。(この点の詳細は後に述べる)。このようなモルタル試料については、

Fig. 7. An example of the day to day variations in chlorinity of NaCl solution (Test piece No.3-2).
● indicates chlorinity.
○ indicates the decrease of chlorinity per day.

塩素イオンの減少量および増加量から二つの拡散係数を計算した。

「モルタルの拡散係数」は上述の塩素イオン変化量，すなわち塩素イオンの拡散量から計算される。

モルタル試料の両端面の NaCl 溶液と純水側との間の塩素量の差のために均等化過程として，塩素がモルタル試料を通して純水側へ拡散して行くが，両水塊に接しているモルタル試料の表面積 dA (cm²) を通して， dt (sec) 時間内に，厚さの方向 (x 軸) に拡散する塩素イオンの量 (拡散量) dF (g) を考えると，定常状態では

$$dF = -D \cdot \frac{dS}{dx} \cdot dA \cdot dt \quad (2)$$

である。ここに S はモルタル内の塩素イオン濃度 (g/cm³)， D は拡散係数 (cm²/sec) である。こ

Fig. 8. An example of the day to day variations in chlorinity of the fresh water (Test piece No. 3-2).
● indicates chlorinity.
○ indicates the increase of chlorinity per day.

ここで (dS/dx) はモルタル試料内の 1 点における塩素イオン濃度勾配でなく、モルタル試料の厚さ L (cm) を隔てた両水塊間の平均塩素濃度勾配とする。すなわち、

$$\frac{dS}{dx} = \frac{S_s - S_f}{L} \quad (3)$$

S_s は NaCl 溶液側の塩素イオン濃度, S_f は純水側の塩素イオン濃度である。

両水槽の NaCl 溶液および純水側の体積を各々 v (cm³) とすると, dt 時間内に, dF なる塩素イオン拡散量によって変化する塩素イオン濃度 dS は、

$$dS = \frac{dF}{v} \quad (4)$$

で表わされる。実験によって得られる両水塊の塩素イオン濃度の変化分 dS から, (4)式と(2)式に従って拡散係数が計算される。Fig. 9 はモルタル試料 (No. 3-2) の塩素イオン濃度の 24 時間の変化量 (Fig. 7, Fig. 8) から求めた拡散係数の変化を示す図である。図中黒丸は NaCl 溶液の「塩素イオン減少量」より求めた拡散係数であり, 白丸は純水側の「塩素イオン増加量」から求めた拡散係数であって, Fig. 7, Fig. 8 におけると同様に時間の経過と共に両者は一致している。この値を原則的にモルタルの「拡散係数」とした。このようにし

Fig. 9. Examples of the diffusion coefficient determined graphically from the day to day variations.
a) Test piece No. 3-2. b) Test piece No. 4-2.
● indicates the diffusion coefficient calculated from the chlorinity decrease of NaCl solution.
○ from the chlorinity increase of the fresh water.

Table 4. The results and the conditions of the experiments on the permeation and the diffusion in test pieces (mortar).

Test piece (mortar)	Thickness	Pressure at permeability test	Coefficient of permeability (age 30 days)	Coefficient of permeability	Concentration of NaCl solution	Diffusion coefficient	
						from Cl ⁻ decrease of NaCl solution	from Cl ⁻ increase of fresh water
	cm	g/cm ²	cm/sec	cm/sec	% Cl	cm ² /sec	cm ² /sec
1—8	4.9	10 ³	3.02×10 ⁻⁸	2.67×10 ⁻⁸	60	8 ×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻⁹
1—9	5.2	6 ×10 ³	4.47×10 ⁻⁹	2.10×10 ⁻⁹	〃	5 ×10 ⁻⁹	5 ×10 ⁻¹⁰
5—1	4.5	10 ³	4.75×10 ⁻⁸	3.93×10 ⁻⁸	20	1.4×10 ⁻⁸	5 ×10 ⁻⁹
2—1	3.4	3 ×10 ³	1.13×10 ⁻⁷	1.13×10 ⁻⁷	〃	8.5×10 ⁻⁹	—
2—2	3.7	6.8×10 ³	3.98×10 ⁻⁷	1.93×10 ⁻⁷	〃	1.7×10 ⁻⁸	6.5×10 ⁻⁹
2—3	5.7	10 ³	6.56×10 ⁻⁹	5.61×10 ⁻⁹	60	5 ×10 ⁻⁹	2 ×10 ⁻⁹
3—2	4.6	10	4.86×10 ⁻⁵	4.86×10 ⁻⁵	20	2.4×10 ⁻⁷	2.4×10 ⁻⁷
3—3	5.0	15	2.05×10 ⁻⁵	1.59×10 ⁻⁵	〃	2 ×10 ⁻⁷	10 ⁻⁷
3—4	5.1	10	2.09×10 ⁻⁵	8.98×10 ⁻⁶	〃	8 ×10 ⁻⁸	8 ×10 ⁻⁸
4—1	5.1	2	2.89×10 ⁻⁴	2.31×10 ⁻⁴	〃	5 ×10 ⁻⁷	5 ×10 ⁻⁷
4—2	5.1	2	5.52×10 ⁻⁴	2.20×10 ⁻⁴	〃	5.0×10 ⁻⁷	5.0×10 ⁻⁷
4—3	5.0	2	4.45×10 ⁻⁴	2.09×10 ⁻⁴	〃	4 ×10 ⁻⁷	4 ×10 ⁻⁷

Fig. 10. The experimental relation between the coefficient of permeability and the diffusion coefficient.

- indicates the diffusion coefficient calculated from the chlorinity decrease of NaCl solution, ○ from the chlorinity increase of fresh water, for the same coefficient of permeability.

- indicates the diffusion coefficient with which the result from NaCl solution and that from fresh water coincide.

The broken lines indicate the distribution limits of the values, and the full line does the deducible terminal value of the diffusion coefficient for each coefficient of permeability.

て得られた各モルタル試料の拡散係数を Table 4 に示す。

3) ま と め

モルタルの透水係数と拡散係数が普遍的関係を持つならば、一般的な透水係数から拡散係数を推定計算することが可能であるし、また透水、拡散現象のより深い理解への手がかりにもなるであろう。各々のモルタル試料について透水係数と拡散係数との間の関係を図にまとめたのが Fig. 10 である。図中、各モルタル試料毎に一つの透水係数、二つの拡散係数が得られている（モルタル試料一つだけは例外で、一つの拡散係数しか求められていない）。この二つの拡散係数の内、黒丸は NaCl 溶液の塩素減少量より計算されたもので、白丸は純水側の塩素増加量より求めた拡散係数である。2本の破線は、これらの拡散係数の分布のおおよその範囲を表わしている。

一見してわかるように、2本の破線は透水係数の大きいモルタル試料では一致し、透水し難くなるに従いその間隔が増している。これは透水係数が小さくなると共に NaCl 溶液側の塩素イオン減少量に比べ、純水側の塩素イオン増加量が少ないためであるが、この理由としてモルタル試料内に

おける塩素イオンの貯溜が考えられる。補充実験として、全実験を終了したモルタル試料の一部を砕いてモルタル試料内に貯溜している塩素イオンの量を測定したが、その結果、透水係数の小さい密なモルタル試料は透水係数の大きいモルタル試料よりも塩素イオンの貯溜量が多かった。それに加えて、透水係数の小さいモルタル試料はみかけの拡散速度が小さいから、20日間前後の実験期間ではモルタル試料内における塩素イオン勾配がまだ定常に達していないと考えられる。また補充実験結果から推定される貯溜塩素イオン量が、NaCl 溶液の塩素量とモルタル試料の含水率との積で表わされる貯溜塩素イオン量よりも大きい事実がわかった (モルタル試料のNaCl 溶液側の1/3体積に関して)。

このことから考えてモルタル試料内に塩素イオンが貯溜される時の形について、NaCl 溶液がそのままモルタル試料内の空隙に貯溜しているのみでなく、ち密なモルタル試料ではみかけ上塩素イオンが濃縮されて貯溜しているようである。

濃縮貯溜とは、たとえばモルタルの構成物質と塩素イオンが結合して塩化物になるとか、またモルタルの空隙の壁に塩素イオンが吸着されること等が考えられるが現在十分な解明はまだ行っていない。いずれにせよ「セメント百分率」の大きいち密なモルタル試料は、内部の塩素イオン濃度勾配が定常状態に達していないために、純水側について小さい塩素イオン増加量しか得られないのであって、十分長期にわたる実験を行えばモルタル試料内の塩素イオン濃度勾配は定常になるであろう。そしてその時の拡散係数はこの2本の破線のほぼ中間に得られると考えてよい。図中の直線がその傾向を表わしているが、透水係数と拡散係数の関係は、両者が $10^{-9}(\text{cm/sec}, \text{cm}^2/\text{sec})$ より大きい範囲では次の実験式で表わされる。

$$D = a \times P^{0.5} \quad a = 3.16 \times 10^{-5} \quad (5)$$

$$P > 10^{-9}$$

sec) の時、拡散係数もまた $D = 10^{-9}(\text{cm}^2/\text{sce})$ であって等しい。すなわちこの程度に「セメント百分率」の大きいち密なモルタル試料では、モルタル試料の厚さが数 cm 以上あれば圧入水圧の影響が完全に消失して、水または溶質は分子拡散力によって滲透して行くことを示している。したがって透水係数が $10^{-9}(\text{cm/sec})$ より小さいモルタルでは、拡散係数は前者に等しく、

$$D = P \quad P < 10^{-9} \quad (6)$$

と推定される。Fig. 10 では 45° の勾配の直線により表わされている。

ここに得られた関係によれば、比較的測定しやすい透水係数から容易に拡散係数を求めることが出来る。特に放射性廃棄物容器に用いられるような「セメント百分率」の大きいモルタルのおおよその拡散係数を知ることが出来る。ただし、モルタル試料が乾燥していたり、鉛直方向に拡散する場合等は、表面張力、重力加速度等の要素が加わるであろうし、またモルタルは素焼のフィルターのようなものであるから塩素以外の物質の拡散の場合は、前記の吸着等の問題が大きな要素となるであろうから、多少異なる関係が得られることは考えられる。しかしながら、この塩素による実験結果から考えれば、モルタル内の拡散を全く無視することは出来ない。

研究の次の段階として、その後金属イオンを含む放射性物質を用いて同様の実験を実施しているが、金属イオンのモルタル試料への吸着が大きく、その点を勘案して実験を継続していることを付記しておく。

最後に、本研究に有益な助言を頂いた東京教育大学教授三宅泰雄博士ならびに気象研究所地球化学研究部の猿橋勝子博士、杉浦吉雄博士、杉村行勇博士、また理化学研究所の片山駿三研究員に深く感謝の意を表する。

なお本研究は科学技術庁原子力平和利用委託研究費によって行なっている、「海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究」の一部である。

Fig. 10 および(5)式から、透水係数 $P = 10^{-9}(\text{cm}/$

文 献

- 1) 佐々木忠義, 渡辺精一, 大柴五八郎, 岡見 登, 梶原昌弘 (1963): 海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究. (第1報). 日本海洋学会誌, **19** (1), 16—26.
- 2) 近藤 実, 中条金兵衛 (1955): 各種セメントの透水性および凍結融解の試験. セメント技術年報, **Rep. No. 27**, 167—175.
- 3) 中村静麿, 藤本義人, 鈴川昭三 (1955): 混和材を用いたセメント・モルタルの透水性. セメント技術年報, **Rep. No. 54**, 329—335.
- 4) 近藤 実 (1956): コンクリートの透水機構について. セメント技術年報, **Rep. No. 49**, 300—307.
- 5) 吉井豊藤丸, 神田 衛 (1956): シリカ・セメントとポルトランド・セメントのコンクリート透水性比較試験. セメント技術年報, **Rep. No. 50**, 307—312.
- 6) 村田二郎 (1958): 中空円筒形供試体を用いる透水試験方法. 土木学会論文集, 第63号, 1—7.
- 7) 栗山 寛, 重倉祐光 (1958): 透水時におけるモルタル中の水の拡散 (とくに表面仕上方法および透水方向の影響). セメント技術年報, **Rep. No. 22**, 128—132.
- 8) 鈴木健夫 (1958): 塩類水溶液の透水吸水について. セメント技術年報, **Rep. No. 23**, 132—135.
- 9) 吉井豊藤丸, 森 仁明, 神田 衛 (1958): コンクリートの透気性に関する研究. セメント技術年報, **Rep. No. 57**, 339—343.
- 10) 村田二郎 (1961): コンクリートの水密性の研究. 土木学会論文集, 第77号, 69—99.
- 11) CARRUTHERS, J. N. (1962): Measurement of ocean bed currents, a new cheap method and suggested plan. *Nature*, **195** (4845), 976—981.
- 12) LaFOND, E. C. (1962): Deep current measurements with the Bathyscaph Trieste. *Deep Sea Res.*, **19**, 115.
- 13) 日本海洋学会 (1955): 海洋観測指針. 136.
- 14) 西条八東 (1957): 湖沼調査法. 古今書院, 109.
- 15) 小野竹之助 (1959): コンクリート工学 (材料篇). 森北出版, 199.