

溶脱による変質を考慮した
汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討
(委託研究)

—令和3年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Study on Rational Treatment/Disposal of Contaminated Concrete Waste

Considering Leaching Alteration

(Contract Research)

-FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource

Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター
北海道大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Hokkaido University

January 2023

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討
(委託研究)

—令和3年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点
廃炉環境国際共同研究センター

北海道大学

(2022年9月14日受理)

日本原子力研究開発機構 (JAEA) 廃炉環境国際共同研究センター (CLADS) では、令和3年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 (以下、「本事業」という) を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、令和2年度に採択された「溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討」の令和3年度の研究成果について取りまとめたものである。

汚染水との接触により変質したと考えられる地下構造物コンクリートに焦点をあて、核種の移行挙動、変質コンクリートの特性に基づいて核種移行モデルを構築し、コンクリート廃棄物の物量推計及び廃棄物管理シナリオ評価を実施する。移行挙動は核種、化学形に依存し、I⁻の収着分配係数 K_d は C-S-H 及び C-A-S-H 試料ではセメントペーストより2桁低くなったのに対し、U では試料によらず 10^4 L kg^{-1} 以上と高くなった。¹⁴C の移行挙動は化学形によって大きく異なった。コンクリートの溶出挙動は非破壊 CT-XRD 連成法によって可視化でき、また、定量的に模擬できるよう既存モデルを改良した。合成 C-S-H、高 ²⁹Si 含有合成 C-A-S-H、劣化コンクリートから抽出した C-S-H を対象に NMR による微細構造評価を実施した。固体廃棄物保管施設のコンクリート瓦礫等の線量測定結果をもとに放射性核種濃度を統計的に推定する手法を開発した。滞留水に浸漬したコンクリートの性状や核種の水中濃度を与条件として不確実性を含めて多核種の放射能濃度分布を推計した。また、¹²⁹I の汚染水への移行モデル及び ¹⁴C のソースタームを検討した。さらに、廃棄物管理工程の潜在的な放射線リスクの分析のため、SED 指標の適用性を検討した。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、北海道大学が実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Study on Rational Treatment/Disposal of Contaminated Concrete Waste Considering Leaching Alteration
(Contract Research)

— FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

Hokkaido University

(Received September 14, 2022)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to “the Project”) in FY2021.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2020, this report summarizes the research results of the “Study on rational treatment/disposal of contaminated concrete waste considering leaching alteration” conducted in FY2021.

The present study aims to understand migration behaviors of radionuclides in relation to the properties of concrete altered by leaching, to develop a model to predict concentration profiles, and to analyze waste management scenarios, with a focus on underground concrete structures in contact with contaminated water. Migration behaviors depend on radionuclides and their chemical species. Sorption of I is less significant on C-S-H and C-A-S-H than on hardened cement paste with two orders of magnitude smaller distribution coefficient K_d , while K_d of U was the same and high around 10^4 L kg⁻¹ for all cement/altered cement materials. Diffusion of ¹⁴C depended on chemical species. Leaching of concrete can be visualized by non-destructive CT-XRD method, and quantitatively reproduced by an improved simulation model. Microstructures were analyzed by NMR for synthesized C-S-H and C-A-S-H with higher ²⁹Si content, and C-S-H extracted from degraded concrete. Radionuclide concentrations of concrete debris stored in solid waste storage facilities were statistically estimated based on radiation dose rate data. Concentration profiles of multiple radionuclides were modeled with uncertainty assuming the properties of concrete and radionuclide concentrations in water. Transfer models of ¹²⁹I into contaminated water, and the source term of ¹⁴C were considered. Application of SED index was considered to analyze potential radiological risks arising from waste management processes.

Keywords: Decommissioning, Concrete Altered by Leaching, Migration Behavior, Characterization of Altered Concrete, Concentration Profile Modeling, Waste Management Scenario Analysis

This work was performed by Hokkaido University under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2. 平成 30 年度 採択課題	2
3. 令和元年度 採択課題	5
4. 令和 2 年度 採択課題	8
5. 令和 3 年度 採択課題	10
付録 成果報告書	13

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
5. Accepted Proposal in FY2021.....	10
Appendix Result Report	13

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム	11 課題（若手研究 6 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム	6 課題
国際協力型廃炉研究プログラム	2 課題（日英共同研究）

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業 高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邊 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題（若手研究 2 課題、一般研究 5 課題）
- 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題（日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題）
- 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (~R2. 3. 31) 大曲 新矢 (R2. 4. 1~)	産業技術総合 研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島 2・3 号機ペダスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立GE ニュークリ ア・エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (～R3. 3. 31) 岡山大学 (R3. 4. 1～)

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (～R2. 3. 31) 竹下 健二 (R2. 4. 1～)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

4. 令和2年度 採択課題

令和2年度は、2つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和2年3月17日～令和2年5月14日（課題解決型）
令和2年5月13日～令和2年7月15日（国際協力型）

課題数：10 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題（若手研究 2 課題、一般研究 6 課題）
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英共同研究）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

令和2年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れの調査	楊 会龍 (~R4. 7. 31) 村上 健太 (~R4. 8. 1)	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料 研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー加速器研究機構
α / β / γ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邊 豊	東北大学
β 、 γ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・航空技術研究所

5. 令和3年度 採択課題

令和3年度は、2つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和3年3月16日～令和3年5月17日（課題解決型）
 令和3年4月13日～令和3年7月1日（国際協力型 日英共同研究）
 令和3年7月12日～令和3年8月18日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英）、2 課題（日露）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英・日露共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和3年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学

課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究	人見 啓太郎	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価	中瀬 正彦	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (~R4. 1. 31) 三輪 修一郎 (R4. 2. 1~)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御	浅間 一	東京大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化	小原 徹	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和3年度の研究成果を取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート 廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録
成果報告書

This is a blank page.

令和 3 年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート

廃棄物の合理的処理・処分の検討

(契約番号 R03I040)

成果報告書

令和 4 年 3 月

国立大学法人北海道大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人北海道大学が実施した「溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討」の令和3年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

1.	はじめに	1-1
2.	業務計画	2. 1-1
2.1	全体計画	2. 1-1
2.1.1	計画概要	2. 1-1
2.1.2	実施体制図	2. 1-2
2.2	令和3年度の成果の目標及び業務の実施方法	2. 2-1
2.2.1	汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動の解明	2. 2-1
2.2.2	汚染水との接触により変質したコンクリート材料の特性評価	2. 2-1
2.2.3	変質コンクリート材料中の放射性核種の移行挙動モデルの構築及び放射性廃棄物量の推計	2. 2-1
2.2.4	建屋解体から発生するコンクリート廃棄物の分別基準を含む管理シナリオの分析	2. 2-2
2.2.5	研究推進	2. 2-2
3.	実施内容及び成果	3. 1-1
3.1	汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動の解明	3. 1-1
3.1.1	令和2年度の成果概要	3. 1-1
3.1.2	^{125}I 、 ^{137}Cs 及び ^{14}C の移行挙動	3. 1-1
3.1.3	Uの収着挙動	3. 1-11
3.1.4	令和3年度の実施内容及び成果のまとめ	3. 1-17
3.2	汚染水との接触により変質したコンクリート材料の特性評価	3. 2-1
3.2.1	令和2年度の成果概要	3. 2-1
3.2.2	劣化・損傷コンクリートの安定性評価	3. 2-1
3.2.3	C-S-Hの合成・物性評価	3. 2-9
3.2.4	変質セメント系材料の物性評価	3. 2-16
3.2.5	令和3年度の実施内容及び成果のまとめ	3. 2-18
3.3	変質コンクリート材料中の放射性核種の移行挙動モデルの構築及び放射性廃棄物量の推計	3. 3-1
3.3.1	令和2年度の成果概要	3. 3-1
3.3.2	多核種移行モデルの構築・評価	3. 3-1
3.3.3	移行モデルの検討	3. 3-8
3.3.4	令和3年度の実施内容及び成果のまとめ	3. 3-14
3.4	建屋解体から発生するコンクリート廃棄物の分別基準を含む管理シナリオの分析	3. 4-1
3.4.1	令和2年度の成果概要	3. 4-1
3.4.2	廃棄物管理に係るデータ整備	3. 4-1

3.4.3	評価手法の検討	3.4-4
3.4.4	シナリオの構築・評価	3.4-6
3.4.5	令和3年度の実施内容及び成果のまとめ	3.4-15
3.5	研究推進	3.5-1
4.	結言	4-1
	参考文献	5-1

執筆者リスト

国立大学法人北海道大学	教授	小崎 完（事業代表者）
	教授	杉山 隆文
	准教授	橋本 勝文
	准教授	渡邊 直子
	助教	植松 慎一郎
国立大学法人福井大学	講師	川崎 大介
	客員教授	柳原 敏
一般財団法人電力中央研究所	主任研究員	湊 大輔
	上席研究員	長岡 亨
	主任研究員	森永 祐加
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	研究主席	香西 直文
	ディビジョン長	駒 義和

表一覧

表 3.1-1	硬化セメントペースト（粉末試料）の溶脱条件及び試料表面の Ca/Si 比...	3.1-5
表 3.1-2	硬化セメントペースト試料（w/c 比 0.36）中の ^{125}I の D_a	3.1-7
表 3.1-3	セメント等への U の収着.....	3.1-14
表 3.1-4	U 収着前後の固相の化学組成.....	3.1-15
表 3.2-1	コンクリートの主な入力値.....	3.2-5
表 3.2-2	遷移帯の入力値.....	3.2-5
表 3.2-3	^{29}Si の化学シフトの例.....	3.2-12
表 3.3-1	コンテナ、瓦礫、検出器の寸法.....	3.3-3
表 3.3-2	各単位強度の ^{137}Cs 線源からの線量への寄与.....	3.3-4
表 3.3-3	燃料中の I の生成.....	3.3-8
表 3.3-4	集中廃棄物処理施設汚染水の ^{129}I の分析値.....	3.3-10
表 3.3-5	R/B 及び T/B 汚染水の ^{129}I の分析値.....	3.3-11
表 3.3-6	汚染水発生量の推移.....	3.3-12
表 3.3-7	汚染の分析データに基づいて試算された核種の物質収支.....	3.3-12
表 3.3-8	^{14}C を生成する核反応.....	3.3-13
表 3.3-9	^{14}C の生成に関する材料不純物の寄与.....	3.3-13
表 3.3-10	燃料中の ^{14}C の生成に関する計算値.....	3.3-13
表 3.3-11	^{14}C の生成に関する燃料と構造材料の寄与.....	3.3-13
表 3.4-1	物量の推定.....	3.4-3
表 3.4-2	Kawamura らによる廃止措置に伴う廃棄物量の試算.....	3.4-7
表 3.4-3	汚染水を貯留するタンク類の仕様.....	3.4-8
表 3.4-4	建設中あるいは建設が計画されている施設・設備.....	3.4-8
表 3.4-5	放射性核種の放射能と燃料から放出された放射能の例（1F-3 号機）.....	3.4-11
表 3.4-6	領域ごとの放射性核種の移行割合と $\sum A_i \times P_i$ の計算結果.....	3.4-11
表 3.4-7	熱遮蔽体を対象とした廃棄物管理工程における RHP の計算（1F-3 号機）..	3.4-12
表 3.4-8	熱遮蔽体を対象にした廃棄物管理工程における SED 指標の計算（1F-3 号機）	3.4-13

図一覧

図-1	1Fにおける放射性廃棄物管理の枠組み.....	1-1
図-2	本研究の実施内容.....	1-2
図 2. 1-2	実施体制図.....	2. 1-2
図 3. 1-1	透過型拡散実験の体系の模式図.....	3. 1-4
図 3. 1-2	硬化セメントペースト（粉末試料）のSEM像（2次電子像）.....	3. 1-4
図 3. 1-3	硬化セメントペースト粉末への ¹²⁵ Iの吸着分配係数（ K_d ）の温度依存性....	3. 1-6
図 3. 1-4	¹²⁵ Iの吸着分配係数（ K_d ）の経時変化.....	3. 1-6
図 3. 1-5	硬化セメントペースト試料中の ¹²⁵ Iプロファイル.....	3. 1-7
図 3. 1-6	硬化セメントペースト試料中の ¹²⁵ Iの D_a の温度依存性.....	3. 1-8
図 3. 1-7	硬化セメントペースト試料中の ¹³⁷ Csプロファイル.....	3. 1-9
図 3. 1-8	硬化セメントペースト試料中の ¹⁴ Cの放射能分布.....	3. 1-10
図 3. 1-9	硬化セメントペースト試料中の ¹⁴ Cの放射能プロファイル.....	3. 1-11
図 3. 1-10	硬化セメントペースト試料の酢酸イオンの D_a の温度依存性.....	3. 1-11
図 3. 1-11	U吸着前後の固相のXRD分析.....	3. 1-16
図 3. 1-12	U吸着前後のC-A-S-H試料（Ca/Si=0.83）のSEM画像.....	3. 1-16
図 3. 2-1	CT断面画像（721層）.....	3. 2-3
図 3. 2-2	溶出による変質状況.....	3. 2-3
図 3. 2-3	関心領域におけるXRD解析結果.....	3. 2-4
図 3. 2-4	骨材の空間配置.....	3. 2-4
図 3. 2-5	遷移帯の抽出.....	3. 2-6
図 3. 2-6	ポルトランダイトの濃度分布.....	3. 2-6
図 3. 2-7	空隙率の増加.....	3. 2-7
図 3. 2-8	表乾密度の測定結果.....	3. 2-8
図 3. 2-9	絶乾密度の測定結果.....	3. 2-9
図 3. 2-10	吸水率の測定結果.....	3. 2-9
図 3. 2-11	合成C-S-HのXRDプロファイル.....	3. 2-11
図 3. 2-12	合成C-A-S-HのXRDプロファイル.....	3. 2-11
図 3. 2-13	合成C-S-Hの ²⁹ Si MAS NMRスペクトル.....	3. 2-12
図 3. 2-14	合成C-A-S-Hの(A) ²⁹ Si及び(B) ²⁷ Al MAS NMRスペクトル.....	3. 2-13
図 3. 2-15	合成C-S-Hの水蒸気吸脱着曲線.....	3. 2-13
図 3. 2-16	²⁹ Si高含有のSiO ₂ を用いて調製した合成C-A-S-Hの(A) ²⁹ Si及び (B) ²⁷ Al MAS NMRスペクトル.....	3. 2-14
図 3. 2-17	²⁹ Si高含有SiO ₂ を用いて調製した合成C-A-S-Hの二重NMRスペクトル....	3. 2-15
図 3. 2-18	健全コンクリートの骨材及びセメントペースト部分の分離による結晶相の変化	3. 2-16
図 3. 2-19	健全コンクリートの骨材及びセメントペースト部分の分離による非晶質の変化	3. 2-17
図 3. 3-1	コンテナ及びコンクリート瓦礫の幾何形状のモデル化.....	3. 3-2

図 3.3-2	コンテナ、瓦礫、及び検出器の平面図	3.3-3
図 3.3-3	側面の検出器の線量率に対する ^{137}Cs インベントリの分布	3.3-4
図 3.3-4	コンクリート中の ^{137}Cs 濃度分布の分配係数への依存性 (10 年後 (2021 年))	3.3-6
図 3.3-5	厚さ 1 m のコンクリート中の ^{137}Cs 平均濃度の分配係数及び滞留水中濃度への依存性	3.3-6
図 3.3-6	^{137}Cs 濃度がクリアランスレベルを下回る深さ (表面からの距離)	3.3-7
図 3.3-7	厚さ 1 m のコンクリート中の ^{90}Sr 平均濃度の分配係数及び滞留水中濃度への依存性	3.3-7
図 3.3-8	^{90}Sr 濃度がクリアランスレベルを下回る深さ (表面からの距離)	3.3-8
図 3.3-9	汚染水に含まれる ^{129}I 濃度の推移	3.3-12
図 3.3-10	瓦礫 (コンクリート) への ^{14}C と ^3H の輸送比の相関	3.3-14
図 3.4-1	領域区分の考え方	3.4-2
図 3.4-2	データ項目の分類と主要キーワード	3.4-4
図 3.4-3	SED 指標計算の流れ	3.4-5
図 3.4-4	シナリオ構築の基本的考え方	3.4-9
図 3.4-5	廃棄物管理シナリオの選択肢のフロー	3.4-10
図 3.4-6	1F-3 号機の熱遮蔽体を対象とした SED 指標	3.4-13
図 3.4-7	1F-3 号機の建屋表面の除染で発生する廃棄物の SED 指標	3.4-14
図 3.4-8	1F-3 号機を対象としたサブシナリオ	3.4-14
図 3.4-9	廃棄物管理工程に沿った SED 指標の変化 (1F-3 号機の建屋表面)	3.4-15

略語一覧

1F	: 東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (廃炉環境国際共同研究センター)
C-A-S-H	: Calcium Aluminum Silicate Hydrate (カルシウムアルミネートシリケート水和物)
C-S-H	: Calcium Silicate Hydrate (カルシウムシリケート水和物)
EDX	: Energy-dispersive X-ray spectroscopy (エネルギー分散型 X 線分析)
ICP-AES	: Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectroscopy (誘導結合プラズマ発光分光分析)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectroscopy (誘導結合プラズマ質量分析)
IP	: Imaging Plate (イメージングプレート)
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
SEM	: Scanning Electron Microscope (走査電子顕微鏡)
SEM-EDX	: エネルギー分散型 X 線分析付き走査電子顕微鏡
w/c 比	: water-to-cement 比 (水セメント比)
XRD	: X-ray Diffraction (X 線回折)
NMR	: Nuclear Magnetic Resonance (核磁気共鳴)
MAS	: Magic Angle Spinning (マジック角回転)
SED	: Safety and Environmental Detriment (安全・環境障害)
RHP	: Radiological Hazard Potential (潜在的な放射線の危険度)
R/B	: Reactor Building (原子炉建屋)
T/B	: Turbine Building (タービン建屋)

概略

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下、「1F」と略す。）では、建屋構造物の解体により大量の放射性コンクリート廃棄物が発生することが見込まれる。1F では、多様な放射性核種による高いレベルの汚染が広範囲で発生したばかりでなく、その汚染が長期にわたって残存した状態にあることから、これらの放射性核種が移行し、あるいはその場でコンクリート深部へ浸透することによって汚染範囲を拡大させつつある。このため、1F の廃炉作業を円滑かつ合理的に進めるためには、コンクリート中の放射性核種濃度分布の経時変化を考慮して、解体から最終処分までの一連の工程全体を俯瞰することが重要である。そこで、本研究では、汚染水との接触による長期溶脱変質が放射性核種の移行に大きな影響を及ぼし、また物量が多いことから解体戦略が放射性廃棄物管理の上で重要となる地下構造物のコンクリートに焦点をあてた研究を実施した。研究内容は、汚染水との接触により変質したコンクリート材料を対象とした放射性核種の移行挙動の解明、特性評価、放射性核種の移行挙動モデルの構築、及びそれらの情報をもととした放射性廃棄物物量の推計、コンクリート廃棄物の管理シナリオの分析である。

令和 2 年度の成果より、汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動に関しては、模擬溶脱した硬化セメントペースト試料で固相からの Ca の溶脱に伴って ^{137}Cs の吸着分配係数（以下、「 K_d 」と略す。）が増加すること、溶脱セメント試料での拡散実験では ^{137}Cs は溶脱変質が進行した部分に濃集し、そこでの拡散係数が低下することが示された[1]。令和 3 年度には、硬化セメントペースト試料への ^{125}I の K_d は約 $10^2 \sim 10^3 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ であるのに対して、合成カルシウムシリケート水和物（以下、「C-S-H」と略す。）及び合成カルシウムアルミネートシリケート水和物（以下、「C-A-S-H」と略す。）試料への ^{125}I の K_d はこれより大幅に低いことが明らかになった。非定常拡散実験においては、硬化セメントペースト試料中の炭酸イオンの移行は認められず、見かけの拡散係数（以下、「 D_a 」と略す。）は極めて低いこと、一方、酢酸イオンの D_a は $6.2 \times 10^{-12} \sim 1.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の範囲であり、 ^{14}C の化学形によって拡散挙動が異なることが示された。

U(VI)の吸着に関しては、令和 2 年度には腐食した鉄骨あるいは鉄筋を模擬した酸化鉄粉末試料への試験を行った[1]。令和 3 年度には、U(VI)を約 1 ppm 含む U 水溶液と粉末試料を 24 時間反応させた結果、セメント、溶脱セメント、C-S-H 及び C-A-S-H に対する U の分配係数 K_d はすべて $10^4 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以上と非常に高い値であることがわかった。セメントが炭酸イオンと反応して生成する炭酸カルシウムを模擬した試薬の炭酸カルシウム微粉では K_d が $1 \times 10^2 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ と低かった。吸着前後で固相の変化は認められなかった。

変質コンクリートの特性評価として、令和 2 年度にはコンクリート供試体を用いて溶出試験を行い、X 線 CT 測定、断面画像からカルシウムの溶出範囲を推定し、コンクリートのイオン同時輸送モデル（以下、「SiTraM」と略す。）を用いた溶脱現象の計算に着手した[1]。令和 3 年度は特性評価を継続し、溶脱した試料の CT 断面画像から 1 か月間溶液と接することで表層部からカルシウムが溶出しており、溶脱領域は約 0.5 mm であることが推定されること、また、SiTraM を改良することで、水酸化カルシウム ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) の溶解が模擬されており、溶出試験結果とも整合することがわかった。さらに、令和 2 年度から継続して、コンクリート塊の水中浸漬試験から、浸漬期間を増加することで密度が低下することが示された。

令和2年度には、セメント系材料の主成分であるC-S-HをCa/Siを1.4、1.0及び0.83として合成し、NMR及びX線回折（以下、「XRD」と略す。）によって微細構造等を測定した[1]。令和3年度には、C-S-Hに加えてC-A-S-Hを合成して国立大学法人北海道大学（以下、「北海道大学」と略す。）及び国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」と略す。）に送付した。また、 ^{29}Si の含有率を高めた合成C-A-S-Hを用いて三重NMRのための測定パラメータの最適化を実施した。加えて、劣化コンクリート等から骨材成分とセメントペースト分をブロモホルムによって調製した重液を用いて分離し、セメントペーストに含有されるC-S-H及びC-A-S-Hを抽出した。

放射性核種の移行挙動モデルの構築としては、令和2年度には3次元空間における粒子追跡法を用いた、コンクリート内部での放射性核種の移行挙動モデルを構築し、濃度に依らず均一な相対誤差を持つよう、低濃度領域における統計誤差低減のための改良を行った[1]。さらに、滞留水を経由したPuの移行に関して、損傷した燃料から水への溶出、水からコンクリートと相互作用するモデルを検討した[1]。令和3年度には、滞留水中に浸かったコンクリート構造物について、その性状や放射性核種の滞留水中濃度を与条件として、コンクリート内部の多核種の放射能濃度分布を主に K_d 値への依存性に着目して推計した。また、保管廃棄物について放射性廃棄物物量の推計モデルを検討した。

放射性廃棄物の処分を検討する上で重要核種の移行モデルとして、令和2年度にはPuについて検討を行った[1]。令和3年度は、その挙動を考慮すべき重要な核種である ^{129}I と ^{14}C を検討対象とした。いずれも半減期の長い測定核種であり、分析データの蓄積には制約がある。公開されている分析データを利用して ^{129}I の挙動を検討した。また、 ^{14}C は放射化による生成を考慮すべき核種であり、ソースタームを検討した。

1Fのコンクリート構造物を解体して発生する放射性廃棄物の管理シナリオに関しては、令和2年度には、基本となる解体シナリオを作成し、中期ロードマップ等を参照し、廃棄物管理シナリオを設定する上で必要な情報として、廃炉の工程、汚染水と接触したコンクリート等を整理、検討した上で、シナリオ構成要素に係る留意事項を抽出した。また、廃棄物管理シナリオの属性となる潜在的な放射線の危険度（以下、「RHP」と略す。）及び廃棄物量を算出するためのデータを整理した[1]。令和3年度には、解体・撤去と廃棄物管理の最適なシナリオを検討することを目的として、安全・環境障害（以下、「SED」と略す。）指標計算のためのデータ整備を継続した。また、通常の廃止措置に対して、1Fでは広範な汚染、また、2次的な汚染物の発生が重要であるため、これらを与える影響を検討した。SED指標の適用性の検討を進め、廃棄物が有する状態と廃棄物を保管する施設の放射性核種漏えい防止性能を含めて廃棄物管理工程の潜在的な放射線リスクの分析が可能となった。

前年度までの成果報告書：

溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討（委託研究）；
令和2年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業， JAEA-Review 2021-070，
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-070>

1. はじめに

原子力発電所で用いられるコンクリートは膨大であり、110万kW級のBWR原子炉で約50万トンと見積もられている。特に1Fでは、多様な放射性核種による高いレベルの汚染が広範囲で発生したばかりでなく、その汚染が長期にわたって残存した状態にあることから、これらの放射性核種が他所へ移行することによって、あるいはその場でコンクリート深部へ浸透することによって汚染範囲を拡大させつつある。このため、1Fの廃炉に伴う建屋の解体作業からは、大量の放射性コンクリート廃棄物が発生し、その性状と物量は時間とともに変化すると考えられる。したがって、1Fの廃炉作業を円滑に進めるためには、そのような経時変化を常に考慮して、コンクリート建造物の解体から最終処分までの一連の工程全体（図-1）を俯瞰して、それらを合理的に行うことが重要である。

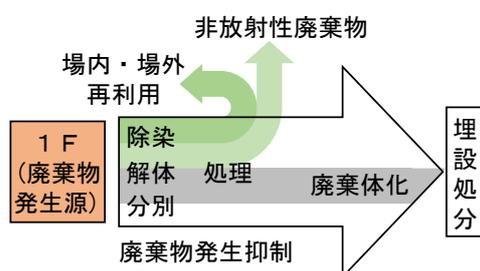


図-1 1Fにおける放射性廃棄物管理の枠組み

1Fの廃炉で発生する放射性コンクリート廃棄物の問題の重要性に着目した平成28～30年度英知事業「汚染コンクリートの解体及びそこから生じる廃棄物の合理的処理・処分の検討」（以下、「前研究」と略す。）では、原子炉建屋（以下、「R/B」と略す。）、タービン建屋（以下、「T/B」と略す。）の地下建造物の解体戦略が放射性廃棄物物量に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。前研究における今後の課題点としては、(1)評価対象放射性核種がCsのみであったこと、(2)Cs及びSrの極めて高い収着係数など、

長期溶脱の影響が顕著となる条件を明らかにし、それを考慮したシナリオ評価を行う必要があること、が挙げられた。そこで、本研究では、前研究にて明らかにした、地下建造物の解体戦略が放射性廃棄物物量に大きな影響を及ぼす点、地下建造物のコンクリートでは汚染水との接触による長期溶脱変質が放射性核種の移行に大きな影響を及ぼす点、の2つに焦点をあて、コンクリート建造物の性状把握・解体から処分に至るまでの一連の工程を俯瞰した、実験、核種移行モデリング、シナリオ分析から成る研究を実施する。

汚染水と接触したコンクリート材料では、その界面にてセメントからアルカリ成分が溶脱、汚染水側からは放射性核種がコンクリート材料中に浸透する。また、汚染水中の放射性核種濃度が急速に低下すると、放射性核種がコンクリート側から汚染水へ脱離（逆流）する。その際、固液界面にて2次鉱物等の新たな固相の生成が起これ、界面での物質輸送に影響を及ぼす可能性がある。本研究では、そうした界面反応ならびにそこでの放射性核種の移行挙動（拡散及び収着挙動）を実験的に明らかにする。固相としては、変質模擬コンクリート試料または硬化セメントペースト試料の他、必要に応じて、セメント系材料の主成分であるC-S-HやC-A-S-H、炭酸塩、原子炉機器・構造材の腐食によって生成すると考えられる鉄酸化物を研究対象とする。また、研究対象核種は、¹³⁷CsなどのFP核種、核燃料由来のU等とする。

一方、前研究において、長期溶脱が放射性核種の移行に顕著な影響を及ぼすことが示されたことから、変質が進行したコンクリート材料の詳細な特性を評価する。すなわち、調製した変質模擬コンクリート試料あるいはC-S-HやC-A-S-H試料に対して、大型放射光施設を用いたCT-XRD連成法により、内部微細構造のその場観察を行う。また、三重NMR法によって、H-Si-Al結合の直接観察を行い、C-A-S-Hの微細構造を詳細に把握する。これにより、変質試料の内部微細構造と核種移行挙動との関連を明確にして、放射性核種の移行モデルの構築に反映させ

る。さらに、同様の研究を、変質試料をモルタル固化した廃棄体試料に対しても実施することで、モルタルを充填した廃棄体の性状把握に関する基礎的データを収集するとともに、放射性コンクリート廃棄物をモルタル固化する手法の要件を整理する。

以上の実験研究によって得られた知見をもとに、核種移行モデルを高度化する。ここでは対象を ^{137}Cs 以外の核種にも広げ、コンクリートの劣化・損傷によるひび割れなどの特徴やセメント構成鉱物の変化の影響を、拡散・収脱着などの移行挙動に反映させるなど、より複雑かつ現実的なモデルの開発を図る。また、このモデル、核種のソースタームや滞留水を經由した移行の評価量ならびに 1F での実測データに基づき、放射能濃度分布推定を精緻化し、放射能レベル区分毎の放射性コンクリート廃棄物物量の推計を行う。この廃棄物物量に基づき、コンクリート廃棄物管理に関する複数の選択肢（シナリオ）を設定し、各シナリオの放射性廃棄物の発生量、発生タイミング、潜在的放射線リスクの半定量的な評価及び利点・課題の抽出を行う。本研究の実施内容を図-2 に示す。

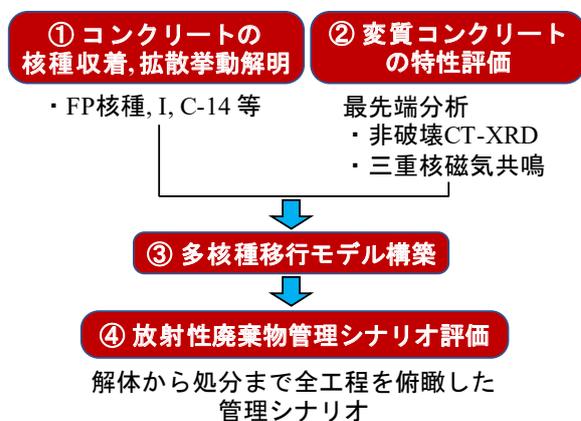


図-2 本研究の実施内容

令和3年度は、硬化セメントペースト試料、汚染水との接触を模擬した変質コンクリート試料、C-S-H、C-A-S-Hを対象として、 ^{125}I や ^{14}C を用いて 1次元非定常拡散法による拡散実験及びバッチ法による収着実験を実施するとともに、走査電子顕微鏡（以下、「SEM」と略す。）などによる特性評価を行った。また、同様の試料へのUのバッチ式収着実験を開始した。

さらに、セメントペースト硬化体及びモルタル試料を調製し、溶脱変質試料に関して非破壊CT-XRD連成法によって溶脱性状を調べるとともに、令和2年度に改変に着手した

SiTraMについて実験結果と比較しながら高度化のための改変を継続した。また、破砕機で破砕したコンクリート塊の溶脱実験を行い、変質状況を調査した。Ca/Si比等の合成パラメータを設定することで変質を模擬した合成C-S-H及びC-A-S-Hを調製し、それらの微細構造をNMRによって評価した。C-A-S-Hについては三重角磁気共鳴による構造解析を試みた。さらに、変質したコンクリート材料の微細構造に関する分析に着手した。

多核種移行モデルの構築・評価としては、固体廃棄物保管施設のコンクリート瓦礫等の放射線量等の情報から ^{137}Cs やその他の核種の濃度の分布を推計するとともに、滞留水中に浸かったコンクリート構造物については、その性状や放射性核種の滞留水中濃度を与条件として、コンクリート内部の多核種の放射能濃度分布を推計し、核種移行計算における与条件及び放射能濃度分布推計の不確実性を定量化した。さらに、Iに対して、損傷した燃料から水への溶出、水からコンクリートや構造材料への収着のモデルを、また、 ^{14}C のソースタームを検討した。

廃棄物管理に係るデータ整備として、1Fの物量、解体工法、解体工程に関する調査・データベース化を継続し、発生する廃棄物の処理・保管に係る選択肢などの情報を整理するとともに、廃棄物管理シナリオに応じた潜在的放射線リスクを算出する手法の構築を進めた。さらに、廃棄物管理シナリオの選択肢を組み合わせさせた複数のシナリオ構築に着手し、シナリオの特性分析を継続した。

2. 業務計画

2.1 全体計画

2.1.1 計画概要

本研究では、研究期間の3年間に、1FのR/B及びT/Bの地下部の解体で発生する放射性コンクリート廃棄物を対象に、それらの性状把握・解体から処理・保管、処分までの工程全体を俯瞰して、汚染水と接触することで変質が進んだコンクリート材料の特性評価及びそこでの核種の移行機構の理解を深め、移行モデルを構築するとともに、そのモデルを用いた放射能レベル区分毎のコンクリート廃棄物物量の推計を行う。さらに、コンクリート構造物の解体撤去から、保管・貯蔵・処分までの工程における潜在的放射線リスクを求め、1Fサイトの放射線安全に係る変遷を評価する計画である。

本計画は、4つのプロジェクトより構成され、それぞれ以下を目標としている。

(1) 汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動の解明

汚染水との接触により変質したコンクリートを模擬した試料中の放射性核種の移行挙動を、放射性トレーサーを用いた実験から明らかにする。拡散実験では、溶液条件をパラメータとすることで、固液界面での析出・固定化現象とセメント材料中への浸透現象との競合に関するデータの取得を目指す。収着実験では、変質模擬コンクリート試料または硬化セメントペースト試料の他、必要に応じて、C-S-HやC-A-S-H、炭酸塩、鉄酸化物が単独あるいは共存した系における収着挙動を把握し、収着による移行遅延効果を明らかにする。

(2) 汚染水との接触により変質したコンクリート材料の特性評価

汚染水との接触により変質したコンクリート材料及び変質に伴って生じる鉱物を調製し、その内部微細構造及び原子核間の化学結合状態等を最先端分析法であるCT-XRD連成法及び三重NMR法にて明らかにする。また、変質試料をモルタル固化した試料に対しても同様の分析ならびに機械強度等の特性評価を行い、変質試料を廃棄体化した際の影響を理解し、廃棄体化手法に関する要件の整理を行うことを目標とする。

(3) 変質コンクリート材料中の放射性核種の移行挙動モデルの構築及び放射性廃棄物物量の推計

コンクリート構造物及び固体廃棄物保管施設に貯蔵されている瓦礫の放射能濃度分布を不確実性やコンクリート物量の分布とともに推計することを目標とする。

(4) 建屋解体から発生するコンクリート廃棄物の分別基準を含む管理シナリオの分析

建屋構造物の解体から処分（または貯蔵）までの複数のシナリオを設定し、それぞれのシナリオにおける放射性廃棄物物量や発生タイミングを推計するとともに、潜在的放射線リスクを算出して1Fサイトの放射線安全に係る変遷を評価する。

汚染水との接触によって変質したコンクリート試料の調製、特性評価は北海道大学及び一般財団法人電力中央研究所（以下、「電力中央研究所」と略す。）において行う。また、その変質試料中の放射性核種の移行挙動試験のうち、Uの収着挙動に関するものをJAEAにて、それ以外の放射性核種の試験を北海道大学にて行う。放射性核種の移行挙動のモデル化は、国立大学法人福井大学（以下、「福井大学」と略す。）にて行う。また、コンクリート廃棄物管理シナリオ評価は、北海道大学、福井大学、JAEAの専門家が1Fに関する最新のデータならびに

廃棄物管理に関する最新の知見をもとに協力して実施する。

研究代表者及び分担者は、年数回、研究打合せを行うとともに、研究期間内に1~2回、ワークショップを開催し、国内外の研究者との意見交換を積極的に行う。研究成果は、一般社団法人日本原子力学会（以下、「原子力学会」と略す。）等において口頭発表する他、福島県内にて開催される研究会、国際会議、学術論文誌等において積極的に発表する。なお、本研究で行われる試験や分析の一部は、国際共同研究棟をはじめとした JAEA の施設を積極的に活用する計画である。

2.1.2 実施体制図

本研究の実施体制図を図 2.1-2 に示す。

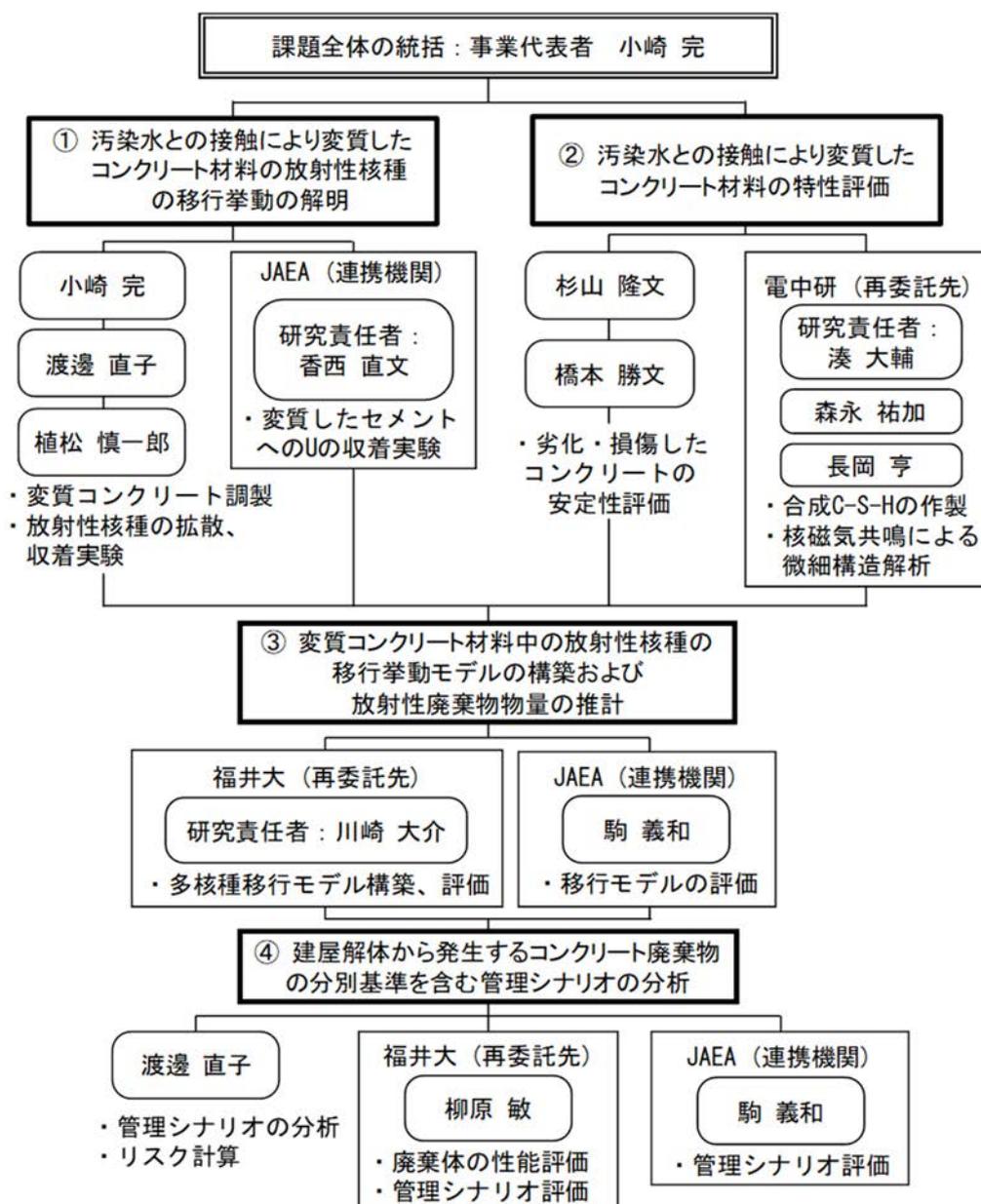


図 2.1-2 実施体制図

2.2 令和3年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.2.1 汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動の解明

硬化セメントペースト試料及び汚染水との接触を模擬した変質コンクリート試料を調製する。令和2年度から開始した、 ^{125}I をトレーサーとし、1次元非定常拡散法による拡散実験及びバッチ法による収着実験を継続する。また、新たにFP核種として ^{137}Cs 、放射化による生成核種として ^{14}C を対象核種とする。さらに、 ^{14}C の透過型拡散実験に着手する。収着実験は、電力中央研究所にて調製したC-S-H試料も対象に加える。収着実験後の固相表面分析をエネルギー分散型X線分析付き走査電子顕微鏡（以下、「SEM-EDX」と略す。）によって行う。

セメント構成成分鉱物、及び電力中央研究所にて合成したC-S-Hに対してU収着実験を行い収着特性を調べる。

2.2.2 汚染水との接触により変質したコンクリート材料の特性評価

(1) 劣化・損傷コンクリートの安定性評価

溶脱変質試料を調製するとともに、令和2年度に調製した溶脱変質試料に関して非破壊CT-XRD連成法によって溶脱性状を調べる。また、令和2年度に改変に着手したSiTraMについて実験結果と比較しながら、高度化のための改変を継続する。さらに、破砕機で破砕したコンクリート塊の溶脱実験を行い、変質状況を調べる。

(2) C-S-Hの合成・物性評価

Ca/Si比等の合成パラメータを設定することで変質を模擬した合成C-S-H及びC-A-S-Hを作成する。また、合成C-S-H及びC-A-S-Hの微細構造をNMRによって評価する。特にC-A-S-Hに対しては三重角磁気共鳴による構造解析を試みる。これに加え、合成したC-A-S-Hを収着実験に供するため、北海道大学及びJAEAに提供する。

(3) 変質セメント系材料の物性評価

変質したコンクリート材料の微細構造に関する分析に着手する。令和3年度はコンクリート材料からC-S-Hの抽出を行う。

2.2.3 変質コンクリート材料中の放射性核種の移行挙動モデルの構築及び放射性廃棄物物量の推計

(1) 多核種移行モデルの構築・評価

固体廃棄物保管施設のコンクリート瓦礫等の放射線量等の情報から ^{137}Cs やその他の核種の濃度の分布を推計する。滞留水中に浸かったコンクリート構造物については、その性状や放射性核種の滞留水中濃度を与条件として、コンクリート内部の多核種の放射能濃度分布を推計する。核種移行計算における与条件及び放射能濃度分布推計の不確実性を定量化する。

(2) 移行モデルの検討

令和2年度に検討した滞留水を経由したPuの移行と同様に、令和3年度はIに対して、損傷した燃料から水への溶出、水からコンクリートや構造材料への収着のモデルを検討する。また、 ^{14}C のソースタームを検討する。

2.2.4 建屋解体から発生するコンクリート廃棄物の分別基準を含む管理シナリオの分析

(1) 廃棄物管理に係るデータ整備

1F の物量及び解体工法・解体工程に関する調査・データベース化を継続する。また、2.2.3 項の推定に基づいた解体物・残存物の放射能（核種別）特性及び廃棄物区分ごとの物量の推定、解体作業で発生する廃棄物特性の分析（鉄筋、モルタル、骨材などの割合の推定を含む）、発生する廃棄物の処理・保管に係る選択肢などの情報を整理する。

(2) 評価手法の検討

1F 廃炉作業の進展に伴って変化するコンクリート構造の形態に対応して潜在的放射線リスクを算出する手法の構築を進める。特に、コンクリート廃棄物の管理シナリオに応じて変化する廃棄物の形態（スラッジ、粉状、固体状等）、放射性物質の管理状態などを整理し、放射性核種の閉じ込め性能に係る指標の導出方法を構築する。

(3) シナリオの構築・評価

廃棄物管理シナリオの構成要素（廃炉の最終状態、解体の範囲、解体物の貯蔵・保管方法等）に係る幾つかの選択肢を抽出するとともにその特徴を整理する。また、選択肢を組み合わせた複数シナリオの構築に着手する。発生する解体物の貯蔵・保管に関しては、解体方法の選択（大きなブロック、爆破工法などにより瓦礫状に解体等）をもとに、解体、処理、保管及び処分までのフローを整理する。さらに、1F の物量及び解体工法・解体工程の調査結果に基づき、複数の廃棄物管理シナリオの全体工程に係る特性分析を継続する。

解体の順序や工程、発生する廃棄物量などを具体的に検討する。

2.2.5 研究推進

研究代表者の下で、各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」と略す。）等との連携を密にして研究を進める。

3. 実施内容及び成果

3.1 汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動の解明

3.1.1 令和2年度の成果概要[1]

令和2年度は、硬化セメントペースト試料及び汚染水との接触を模擬した変質セメント試料を調製した。 ^{125}I 及び ^{137}Cs をトレーサーとし、1次元非定常拡散法による拡散実験及びバッチ法による収着実験を開始した。異なる温度条件下で拡散係数を求め、拡散係数の温度依存性から、拡散の活性化エネルギーを決定した。拡散実験においては、新たにイメージングプレート（以下、「IP」と略す。）を用いた放射能分布測定に基づき拡散係数を算出した。また、SEMを北海道大学に導入し、試料観察を開始した。

硝酸アンモニウム溶液への浸漬により溶脱を模擬した硬化セメントペースト試料では、固相からのCaの溶脱に伴って ^{137}Cs の K_d が増加した。溶脱セメント試料中の ^{137}Cs の拡散実験では溶脱変質が進行した部分に ^{137}Cs が濃集し、 D_a は低下することが明らかになった。硬化セメントペースト試料中の ^{125}I の収着分配係数 K_d は収着期間の増加に伴い増加した。一方、 ^{125}I の拡散の活性化エネルギー（以下、「 E_a 」と略す。）は、自由水中のI⁻の活性化エネルギーと近い値を示したことから、セメント中のI⁻の拡散は自由水中の拡散と類似した機構であることが示唆された。

また、腐食した鉄骨あるいは鉄筋を模擬した酸化鉄粉末試料へのU(VI)の収着実験を行った。そのため、まずU(VI)のストック溶液を調製するとともに、酸化鉄の調製及び特性評価を行った。その後、酸化鉄粉末試料へのU(VI)の収着実験を行った。収着実験は、コンクリートと接した水のpHであるpH 12付近を中心に行った。

3.1.2 ^{125}I 、 ^{137}Cs 及び ^{14}C の移行挙動

(1) 概要

令和3年度は、令和2年度と同様に、硬化セメントペースト試料及び汚染水との接触を模擬した変質コンクリート試料を調製し、 ^{125}I をトレーサーとした1次元非定常拡散法による拡散実験及びバッチ法による収着実験を実施した。また、新たに、電力中央研究所にて合成したC-S-H及びC-A-S-H試料を実験対象に加え、収着実験後の固相表面分析をSEM-EDXによって行った。さらに、FP核種として ^{137}Cs を対象核種とした拡散実験ならびに放射化生成核種である ^{14}C の非定常拡散実験及び透過型拡散実験を開始した。

(2) 試料及び方法

① 硬化セメントペースト及び模擬溶脱変質セメントの調製

普通ポルトランドセメント（以下、「OPC」と略す。）とイオン交換水を、水セメント比（以下、「w/c比」と略す。）0.36または0.60で混練後、直径24.5 mm、高さ54.5 mmの円柱型に成型し、50℃で28日間水中養生して、硬化セメントペースト試料を調製した。これを「未溶脱試料」とする。次に、1Fの汚染水との接触によるセメントの溶脱変質を模擬するため、硬化セメントペースト試料を硝酸アンモニウム(NH_4NO_3)水溶液で溶脱処理した。溶脱処理は、未溶脱の硬化セメントペーストを粉碎後、ふるい分けにより粒径46~75 μm 画分を選別した試料を、0.5 Mまたは6 Mの NH_4NO_3 溶液に完全に浸漬することで行った。その後、浸漬した試料を取り出し、過剰な NH_4NO_3 を除くため新しいセメント平衡水に浸漬した後に、固相を取り出し真空乾燥した。

以上の未溶脱及び溶脱硬化セメントペースト試料は、後述する試料の特性評価及び核種の収着実験に供した。

② 硬化セメントペースト試料の特性評価

固相試料の表面観察及びCa・Si濃度分析を、SEM-EDX (JCM-7000 NeoScope™、日本電子株式会社)により行った。試料には、①で調製した未溶脱及び溶脱硬化セメントペースト(粉末)、ならびにこれらをセメント平衡水に浸漬した試料を用いた。ここでの浸漬は、③の収着実験と同様の条件とし、未溶脱及び溶脱硬化セメントペーストと放射性トレーサーを含まないセメント平衡水を、固液比 1:100 で浸漬し 28 日間振とうすることで行った。いずれの試料も、固液分離後に、真空乾燥して SEM-EDX 分析に供した。

③ ^{125}I の収着・拡散実験

^{125}I をトレーサーとして収着実験を行った。固相には、未溶脱の硬化セメントペースト試料(粉末)、C-S-H、及びC-A-S-Hを用いた。C-S-H及びC-A-S-H試料は、3.2.3(1)に示す方法でCa/Si比 1.4及び0.8の2条件で調製された試料(C-A-S-HのAl/Si比は0.15)を使用した。液相には、ろ過したセメント平衡水に Na^{125}I 溶液を添加し、 ^{125}I 濃度が約 $100\text{ MBq}\cdot\text{L}^{-1}$ 、NaIキャリア濃度が $1\times 10^{-8}\text{ M}$ となるように調製した溶液を用いた。この固相と液相を固液比 1:100 で混合し、所定温度(硬化セメントペーストは $15\sim 50\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、C-S-H及びC-A-S-H試料は $25\text{ }^{\circ}\text{C}$)で所定期間(1~28日)振とうした。収着期間終了後、懸濁液を遠心分離し、上澄み液を孔径 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ のメンブレンフィルタを用いてろ過し、ろ液中の ^{125}I の放射能をNaI(Tl)シンチレーションカウンタ(2480 WIZARD²、PerkinElmer社)により測定した。

一方、硬化セメントペースト試料中の ^{125}I の非定常拡散実験を行った。試料には、①で調製したw/c比0.36の円柱型の硬化セメントペースト(未溶脱試料)を用いた。この試料2個をセメント平衡水に浸漬し、真空ポンプで脱気を行い、試料内部の間隙をセメント平衡水で満たした。各試料の片面に Na^{125}I 溶液(^{125}I 濃度 880 MBq L^{-1} 、NaIキャリア濃度 $2.0\times 10^{-7}\text{ M}$)を $10\text{ }\mu\text{L}$ ずつ塗布し、塗布面を密着させて、表面をパラフィルムで覆い固定した。この試料を所定温度条件(15 、 25 、 40 または $50\text{ }^{\circ}\text{C}$)で所定時間(21~47日)静置し、 ^{125}I トレーサーを試料中に拡散させた。所定時間終了後、耐水ペーパー(粒度180、株式会社ノリタケコーテッドアブレーション)を用いて硬化セメントペースト試料を塗布面から一定間隔毎に削り出し、その ^{125}I の放射能をNaI(Tl)シンチレーションカウンタを用いて測定することにより、試料中の ^{125}I の放射能分布を求めた。

④ ^{137}Cs の拡散実験

^{137}Cs の非定常拡散実験には、模擬溶脱した硬化セメントペースト試料を用いた。模擬溶脱処理は、①で調製したw/c比0.36の硬化セメントペースト試料を、縦 5 mm ×横 19 mm ×高さ 40 mm に切り出し、サイズが 19 mm × 40 mm の2面を、 $6\text{ M NH}_4\text{NO}_3$ 溶液に7日間接触・浸漬させることにより行った。その際、浸漬面以外の4面は、溶液との接触を防ぐとともに、溶脱後の試料の強度を確保するためエポキシ樹脂で覆った。試料の浸漬後、試料中の過剰な NH_4NO_3 を除くため、試料をセメント平衡水に1日間浸漬した。このセメント試料を、高さが 20 mm となるように2個に切断した後、再度セメント平衡水に浸漬し飽和さ

せた。 ^{137}Cs トレーサーの塗布は、飽和後の片方のセメント試料の $5\text{ mm} \times 19\text{ mm}$ の面に $^{137}\text{CsCl}$ 溶液 $15\text{ }\mu\text{L}$ (^{137}Cs 10 kBq) を含ませたろ紙を置き、このろ紙をもう一方の飽和した試料で挟み固定することで行った。次に、この状態の試料を $25\text{ }^\circ\text{C}$ で所定時間静置し、 ^{137}Cs を拡散させた。拡散期間終了後、セメント試料からろ紙を取り除き、 ^{137}Cs 塗布面と垂直になる面（横 $19\text{ mm} \times$ 高さ 20 mm ）を、ラップを介して IP（BAS IP MS 2025 E、富士フイルム株式会社）に密着させ、試料と IP を 50 mm 厚の鉛製の遮蔽箱中に 1 h 静置した。その後、IP 読み取り装置（Typhoon FLA-7000、GE Healthcare）を用いて、試料中の ^{137}Cs 放射能の 2 次元分布を取得した。

IP による測定終了後、直ちに耐水ペーパー（粒度 180）を用いて、硬化セメントペースト試料を ^{137}Cs トレーサー塗布面から厚さ 0.5 mm 毎に削り出した。削り出した硬化セメントペースト片は耐水ペーパーと共にバイアルに封入し、 ^{137}Cs の放射能を NaI(Tl) シンチレーションカウンタを用いて測定することにより、試料中の ^{137}Cs の放射能分布を求めた。

⑤ 炭酸イオン及び酢酸イオン形の ^{14}C の拡散実験

硬化セメントペースト試料中の ^{14}C の非定常拡散実験を実施した。用いた試料は、 $5 \times 16 \times 14\text{ mm}$ の未溶脱の硬化セメントペーストである。この試料は、①で調製した w/c 比 0.36 の硬化セメントペーストを $21 \times 16 \times 28\text{ mm}$ の直方体状に切断し、エポキシ樹脂に埋め込んでから再び切断し、さらにセメント平衡水に浸漬し、飽和させることで得た。放射性トレーサーの塗布及び拡散は、 ^{14}C でラベルした炭酸水素ナトリウム溶液または酢酸ナトリウム溶液を微量（ $10 \sim 30\text{ kBq}$ ）含ませたろ紙を、硬化セメントペースト試料の $5 \times 16\text{ mm}$ の面に置き、別の硬化セメントペースト試料でろ紙を挟み込み密着し固定する形にして、所定温度（ $15 \sim 50\text{ }^\circ\text{C}$ ）で所定期間（ $116 \sim 370\text{ 時間}$ ）保持することで行った。拡散期間終了後、セメント試料をラップ 1 枚を介して IP 上に固定し、試料中の放射能濃度分布を決定した。

硬化セメントペースト試料中の ^{14}C の透過型拡散実験を開始した。透過型拡散実験の体系を図 3.1-1 に示す。硬化セメントペーストの両端はセメント平衡水と接触し、そのうち片側の溶液のみに、 ^{14}C 濃度が $1.1\text{ MBq} \cdot \text{L}^{-1}$ となるように酢酸ナトリウムトレーサーを加えた。その後、所定時間間隔で高濃度側及び低濃度側の溶液を採取し、溶液中の ^{14}C 放射能を液体シンチレーションカウンタ（AccuFLEX LSC-8000、株式会社日立製作所）により測定した。その間、必要に応じて、高濃度側溶液にはトレーサーを追加投入することで、また、低濃度側溶液にはセメント平衡水を追加することで、溶液中の ^{14}C 放射能濃度を初期値の 10 %程度以内に維持した。

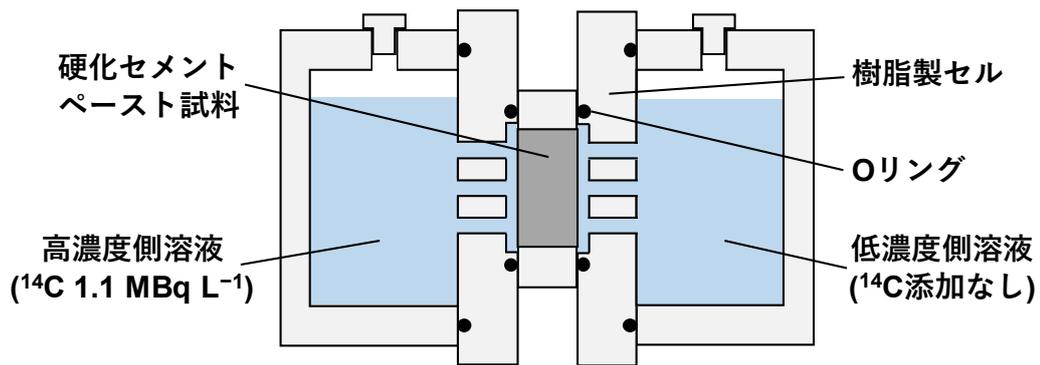


図 3.1-1 透過型拡散実験の体系の模式図

(3) 結果及び考察

① 硬化セメントペースト試料の特性評価

SEMにより得た未溶脱及び溶脱硬化セメントペースト試料の2次電子像の一例を図3.1-2に示す。硬化セメントペースト（浸漬前）を除いたすべての試料のSEM像において、針状の析出物（エトリンガイト）が確認された。試料表面のEDX分析の結果から求めたCa/Si比を、表3.1-1に示す。溶脱処理に用いたNH₄NO₃濃度が高いほど、硬化セメントペーストからのCaの溶脱がより顕著であることが確認された。また、未溶脱及び溶脱硬化セメントペースト試料のセメント平衡水への浸漬に伴い、Ca/Si比が増加する傾向が確認された（表3.1-1）。

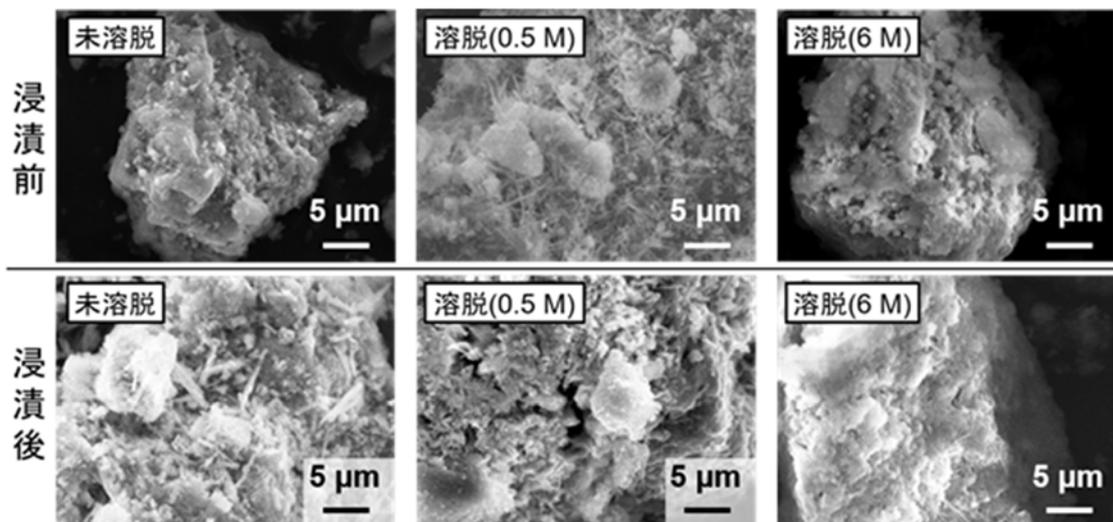


図 3.1-2 硬化セメントペースト（粉末試料）のSEM像（2次電子像）

表 3.1-1 硬化セメントペースト（粉末試料）の溶脱条件及び試料表面の Ca/Si 比

試料	NH ₄ NO ₃ 濃度	浸漬期間	Ca/Si 比	
			(セメント平衡水への浸漬前) *1	(セメント平衡水への浸漬後) *1
未溶脱試料	-	-	2.54	3.56
溶脱試料 A	0.5 M	4 日	2.71	3.95
溶脱試料 B	6 M	7 日	0.55	1.99

*1 図 3.1-2 に示した粒子の表面における Ca 及び Si 濃度の平均値から算出

② ¹²⁵I の収着挙動

¹²⁵I の収着挙動を評価するため、式 3.1-1 により見かけの K_d (L・kg⁻¹) を求めた。

$$K_d = C_s / C_L \quad (\text{式 3.1-1})$$

ここで、 C_L (Bq・L⁻¹) は収着期間後の液相の濃度、 C_s (Bq・kg⁻¹) は固相に収着した溶質(この場合は ¹²⁵I) の濃度であり、

$$C_s = (C_0 - C_L) \times V/w \quad (\text{式 3.1-2})$$

となる。ただし、 C_0 は初期濃度 (Bq・L⁻¹)、 V は液量 (L)、 w は固相重量 (kg) である。

本実験では、固相の ¹²⁵I 濃度は、収着期間前後の液相中の ¹²⁵I 濃度の差から求めた。

収着期間 28 日における ¹²⁵I の見かけの K_d の温度依存性を、図 3.1-3 に示す。各 w/c 比条件において、対数軸上に表した K_d の値は、収着温度の逆数に対して直線性を示したため、回帰直線を当てはめ、その傾きから収着のエンタルピー (ΔH) を決定した。得られた ΔH の値は、w/c 比 0.36 において 2.2±0.6 kJ・mol⁻¹、w/c 比 0.60 では 1.7±0.5 kJ・mol⁻¹ であった。この結果は、硬化セメントペースト試料への I⁻ の収着は弱い吸熱反応であることを示唆している。硬化セメントペーストへの塩化物イオン (Cl⁻) の収着においても同様の ΔH が報告されている (w/c 比 0.36~0.60 において 2.7~11 kJ・mol⁻¹) [2] ことから、両者は同じ 1 価の陰イオンとして、硬化セメントペーストに収着している可能性が示唆された。

一方、ここで求めた収着のエンタルピー (ΔH) は、 D_a の温度依存性から決定した拡散の E_a との間に、式 3.1-3 の関係を持つ可能性がある。

$$E_a = E_a^{net} - \Delta H \quad (\text{式 3.1-3})$$

ここで、 E_a^{net} は、収着の影響を除いた拡散の E_a である。

w/c 比 0.60 の硬化セメントペースト試料の場合、¹²⁵I の D_a の温度依存性から決定された拡散の E_a は 22.4±3.9 kJ・mol⁻¹[1] であることから、式 3.1-3 から $E_a^{net} = E_a + \Delta H = 24.1±3.9$ kJ・mol⁻¹ が得られた。この E_a^{net} の値は、自由水中の I⁻ の拡散の活性化エネルギー 16.9 kJ・mol⁻¹[3] より明らかに高い値であり、硬化セメントペースト中の I⁻ は、空隙中の

自由水中とは異なる経路を拡散している可能性が示唆された。この拡散の活性化エネルギーの差は、w/c 比 0.36 の試料でより顕著であった。

合成 C-S-H 及び合成 C-A-S-H 試料の ^{125}I の見かけの K_d の経時変化を、図 3.1-4 に示す。Ca/Si 比 1.4 (未溶脱条件) 及び 0.8 (溶脱条件) のいずれにおいても、合成 C-S-H 及び C-A-S-H 試料の K_d は、硬化セメントペーストの K_d (図 3.1-3) と比べて大幅に低い値であった。既往の研究において、 I^- の収着機構として、C-S-H 及び C-A-S-H 表面の正電荷を有する官能基への静電的な収着の他、 I^- が硬化セメントペーストを構成するモノサルフェートやエトリンガイトの構造中に取り込まれる機構が報告されている[4][5]。本研究において認められた C-S-H 及び C-A-S-H の低い K_d は、硬化セメントペースト試料では前者より後者の寄与が大きいことを示唆している。

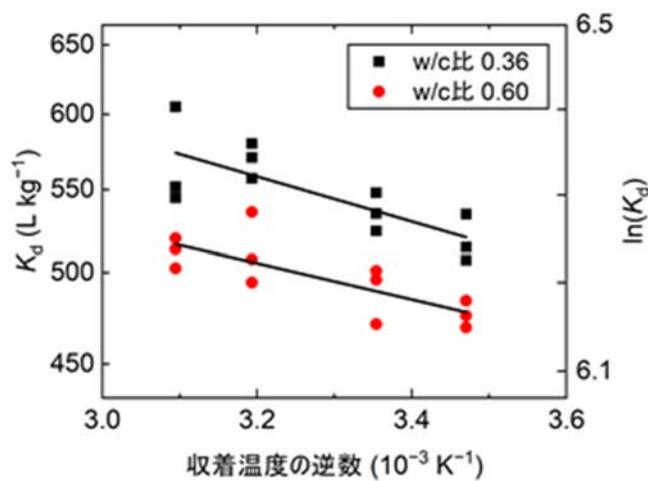


図 3.1-3 硬化セメントペースト粉末への ^{125}I の収着分配係数 (K_d) の温度依存性 (収着期間 28 日)

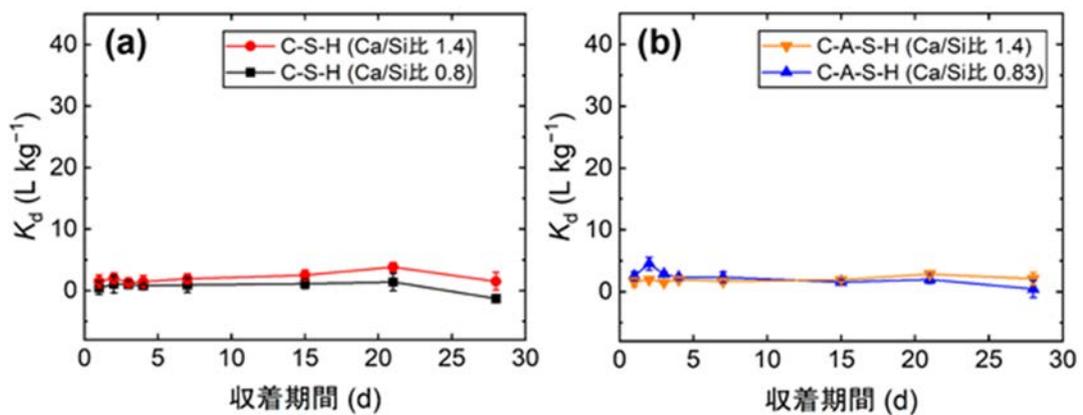


図 3.1-4 ^{125}I の収着分配係数 (K_d) の経時変化
(a) 合成 C-S-H 試料、(b) 合成 C-A-S-H 試料 (エラーバーは標準偏差を示す)

^{125}I の拡散実験において得られたセメント試料中の ^{125}I の放射能濃度プロファイルを図 3.1-5 に示す。いずれの拡散温度においても、拡散距離の二乗に対して対数軸上にプロットした ^{125}I のプロファイルは直線性を示し、薄膜拡散源からの拡散とみなせた。そこで、プロファイルに最小二乗法による回帰直線を当てはめ、その直線の傾きから ^{125}I の D_a を求めた。

w/c 比 0.36 のセメント試料に対して得られた D_a 値は、 $4.8 \times 10^{-14} \sim 1.2 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の範囲であった (表 3.1-2)。得られた D_a の温度依存性 (アレニウスプロット) を図 3.1-6 に示す。拡散温度の低下に伴って D_a の値が減少する傾向が認められたものの、直線性は良好ではないことから、今後実験を追加した上で、直線の傾きより拡散の活性化エネルギーを求め、拡散機構について検討する予定である。

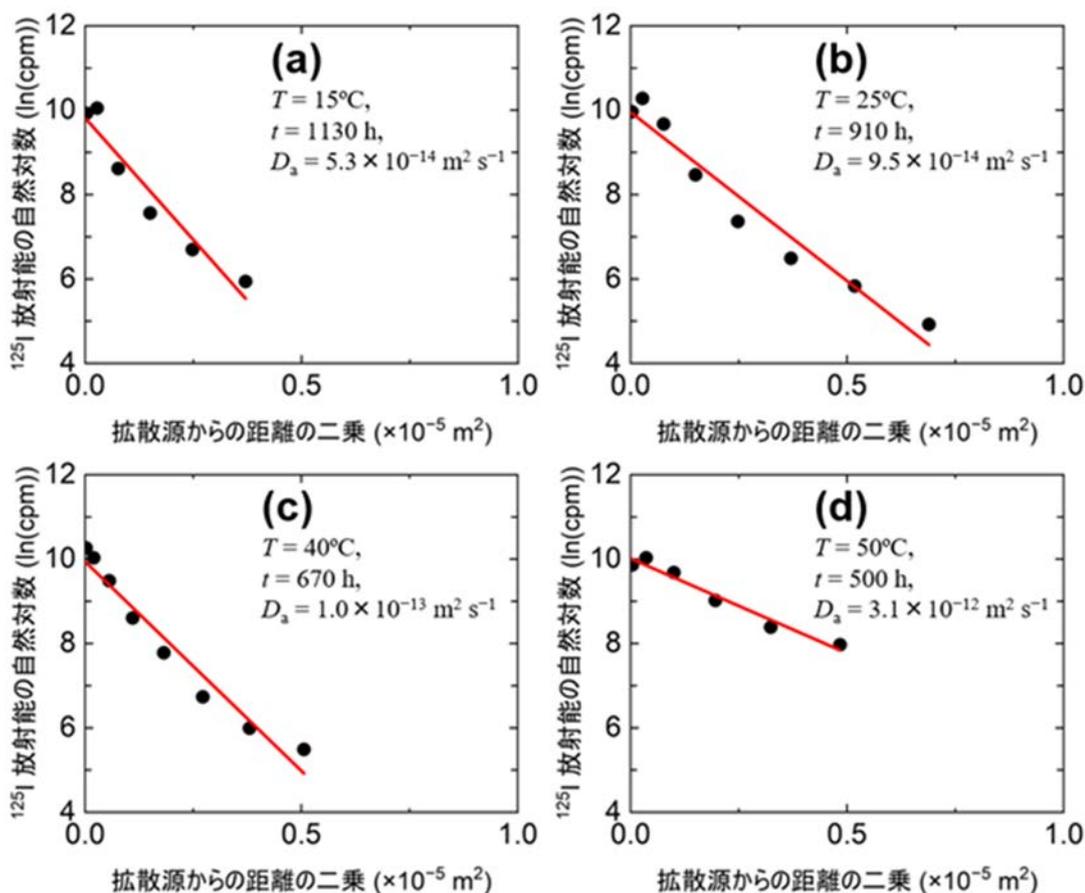


図 3.1-5 硬化セメントペースト試料中の ^{125}I プロファイル
(w/c 比 0.36、未溶脱試料)

T: 拡散温度、t: 拡散時間、 D_a : 回帰直線 (赤線) の傾きから求めた見かけの拡散係数

表 3.1-2 硬化セメントペースト試料 (w/c 比 0.36) 中の ^{125}I の D_a ($\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$)

15 °C	25 °C	40 °C	50 °C
5.3×10^{-14}	9.5×10^{-14}	1.9×10^{-13}	1.2×10^{-12}
4.8×10^{-14}	7.4×10^{-14}	1.0×10^{-13}	3.1×10^{-13}

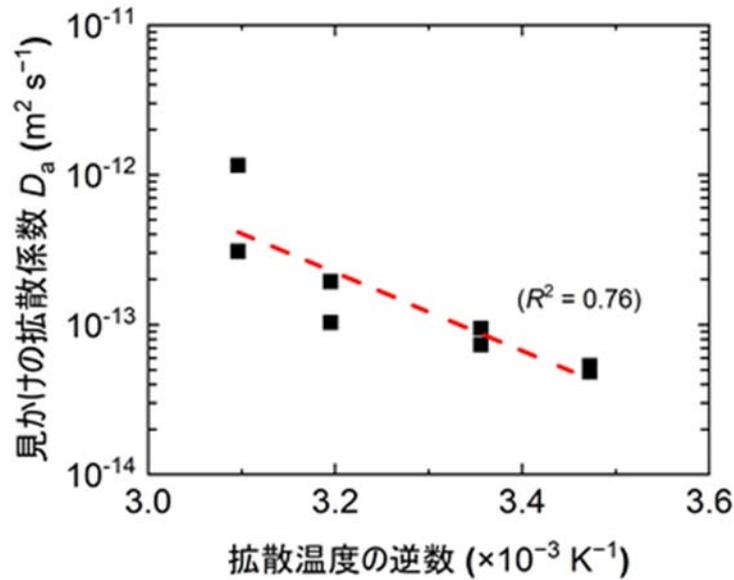


図 3.1-6 硬化セメントペースト試料中の ^{125}I の D_a の温度依存性
(w/c 比 0.36、未溶脱試料)

③ ^{137}Cs の拡散挙動

溶脱処理した硬化セメントペースト試料中の ^{137}Cs の拡散実験において IP を用いた放射能測定で得られた、試料中の ^{137}Cs の 2 次元放射能分布を図 3.1-7(a) に示す。試料位置を示す図中赤枠内において、 ^{137}Cs は塗布面（赤枠の左辺）から試料内を（図中右方向に）移行したことによる濃度変化が確認された。また、この濃度変化はどの塗布位置（赤枠左辺の高さ）でも同程度であり、試料は均質で、亀裂などを介した拡散がなかったことが示唆された。そこで、塗布面からの距離毎の ^{137}Cs の放射能を平均し、その自然対数値を距離の二乗に対してプロットした（図 3.1-7(b)）。この ^{137}Cs の放射能分布は良い直線性を示していることから、 ^{137}Cs は薄膜拡散源からの拡散と考えられた。一方、このセメント試料を 0.5 mm 毎に削り出して、NaI(Tl) シンチレーションカウンタによる放射能測定により求めた、硬化セメントペースト試料中の ^{137}Cs 放射能のプロファイルを図 3.1-7(c) に示す。この放射能プロファイルもまた直線性を示した。これらの濃度分布に対する回帰直線の傾きから求めた D_a は、IP による測定では $4.4 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、NaI(Tl) シンチレーションカウンタによる測定では $3.1 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ となり、両者はほぼ一致した。これは、IP による測定においても ^{137}Cs の放射能分布を把握でき、より簡便な測定方法で D_a が決定可能であることを示唆している。

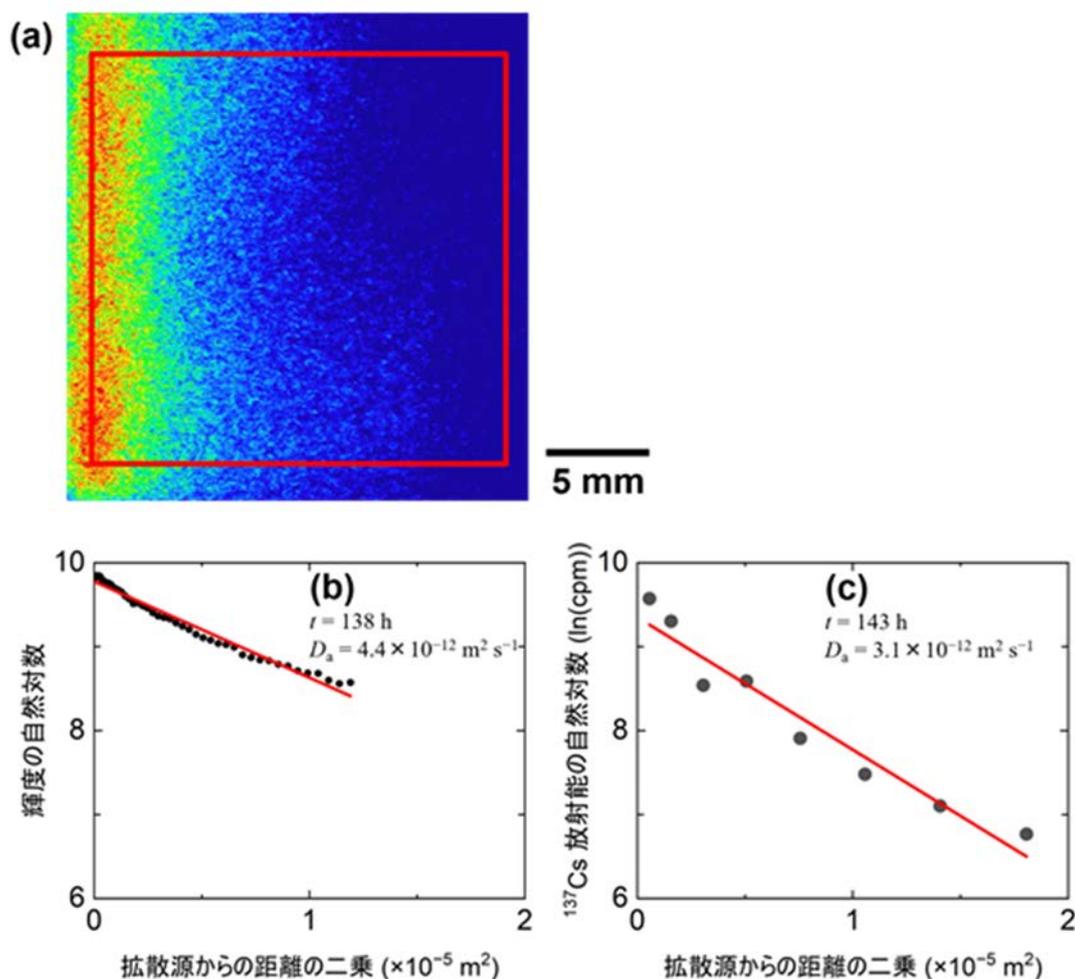


図 3.1-7 硬化セメントペースト試料中の ^{137}Cs プロファイル

- (a) 硬化セメントペースト試料中の ^{137}Cs 放射能分布 (赤色枠は、試料を置いた位置)、
- (b) IP 測定によって得られた ^{137}Cs の濃度プロファイル、
- (c) 削り出し試料の NaI(Tl) シンチレーションカウンタによる測定で得られた ^{137}Cs 濃度プロファイル (拡散温度 25 °C、 t : 拡散時間、 D_a : 回帰直線 (赤線) の傾きから求めた見かけの拡散係数)

④ ^{14}C の拡散挙動

炭酸イオン ($^{14}\text{CO}_3^{2-}$) の拡散実験において得られた硬化セメントペースト試料中の ^{14}C の 2 次元分布を図 3.1-8(a)に示す。図中の赤色の外枠はセメント試料を置いた位置であり、この外枠の左辺が放射性トレーサー塗付面を示す。IP を用いた測定によって、放射性トレーサーの塗付面に存在する ^{14}C からの β^- 線に起因する輝度が塗付面近傍に認められたが、セメント試料の直下には認められなかった。これは、炭酸イオンがセメント試料中に浸入していないこと、また、塗付面の ^{14}C からの β^- 線がセメント試料によって遮蔽されるため、セメント試料直下の IP に到達していないことを示している。

図 3.1-8(b)に、酢酸イオン ($^{14}\text{CH}_3\text{COO}^-$) を 25 °C で拡散させた際の IP 画像の一例を示す。セメント試料直下においても IP 画像には ^{14}C からの β^- 線が検出されており、酢酸イ

オンは赤色の枠の左辺から右側に移動、すなわち、セメント試料中に浸入・移行していることがわかった。また、移行の程度は塗付面のどの位置においてもほぼ同じであった。(図中ではどの高さでも同じであった)。そこで、セメント試料端部(図中の赤枠の最上部及び最下部)を除いた中心部(青色の内枠内)において、塗付面からの距離に対するトレーサの放射能濃度(平均値)を求めた。なお、ここでは ^{14}C の放射能濃度としてIPの輝度を用いた。

図 3.1-9 に、得られた放射能の濃度分布を示す。図中の赤の直線は、実験値に対する回帰直線である。 ^{14}C の放射能濃度は良い直線性を示しており、これは酢酸イオンが薄膜拡散源からの拡散によってセメント中を移行していること、またその移行現象による放射能濃度をIPによる測定で正確に把握できていることを示している。得られた酢酸イオンの D_a は拡散温度 $15\text{ }^{\circ}\text{C}\sim 50\text{ }^{\circ}\text{C}$ において、 $6.2\times 10^{-12}\sim 1.4\times 10^{-11}\text{ m}^2\text{ s}^{-1}$ であった。この D_a の拡散温度依存性を図 3.1-10 に示す。温度依存性から求めた拡散の活性化エネルギー(E_a)は $15.8\pm 3.6\text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ となった。

以上のように、炭酸イオンと酢酸イオンでは拡散挙動が大きく異なった。セメント中の炭酸イオンは、セメント固相の正に帯電した吸着サイトへ吸着するとともに固相中の炭酸カルシウムとのイオン交換が起こること、収着分配係数が高い($1600\sim 3500\text{ L}\cdot\text{kg}^{-1}$)との報告がある[3]。このような強い収着がセメント試料中の炭酸イオンの拡散を遅延している可能性がある。一方、酢酸イオンの拡散の E_a は、自由水中の E_a の値($21.8\pm 0.9\text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$) [6][7]より僅かに低い程度であり、炭酸イオンとは異なり、収着による遅延の影響を受けずに、主に毛細管空隙中を拡散している可能性が示唆された。

透過型拡散実験においては、高濃度側溶液中の ^{14}C 濃度の低下及び低濃度側溶液中の ^{14}C 濃度の上昇を確認した。一方、高濃度側から低濃度側溶液への ^{14}C の積算透過量の経時変化は、これまでに定常状態に到達していない。

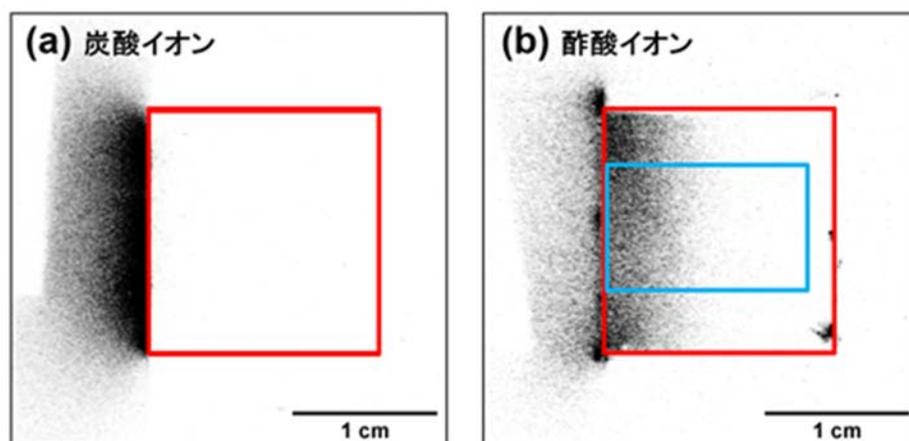


図 3.1-8 硬化セメントペースト試料中の ^{14}C の放射能分布

(a)炭酸イオン：拡散温度 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、拡散時間 120 h

(b)酢酸イオン：拡散温度 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、拡散時間 122 h

図中の赤枠は試料の輪郭を、(b)の青枠は1次元放射能分布の算出に用いた領域を示す。

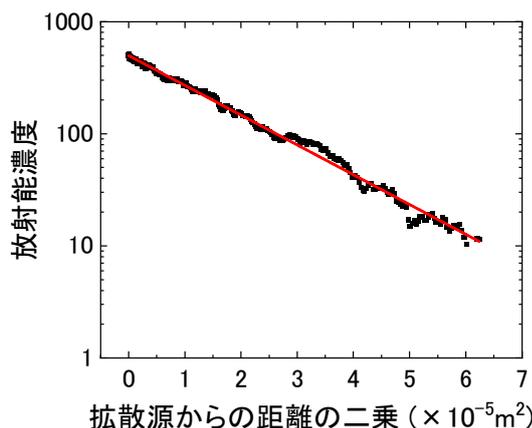


図 3.1-9 硬化セメントペースト試料中の ^{14}C の放射能プロファイル
赤色の直線は、回帰直線を示す。

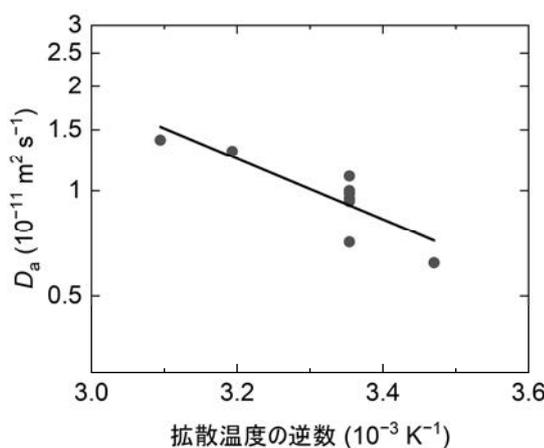


図 3.1-10 硬化セメントペースト試料の酢酸イオンの D_a の温度依存性
直線は、回帰直線を示す。

3.1.3 U の収着挙動

(1) 概要

令和3年度は、セメント、化学的に劣化させたセメント（溶脱セメント）、及び3種類のセメント構成成分へのU(VI)収着実験を行った。また、酸化鉄とセメントの混合試料1試料へのU収着実験も行った。

(2) Uストック溶液の調製

U(VI)の硝酸水溶液（SPEX社、XSTC-3325-500）をテフロンジャーに入れ、ホットプレートで加熱し蒸発乾固させた。1%硝酸を加えて溶解し、Uストック溶液とした。ここから一部を分取し、U濃度が約100 ppmとなるように1%硝酸水溶液に入れた。希釈したNaOH水溶液を用いて、この100 ppmのU水溶液のpHを約4.0に調整した。セメント及びセメント構成成分をpHが低い水溶液に浸漬させると、その一部が溶解する。固相の溶解を防ぐため、以下に述べるU収着実験では、各粉末試料を純水に浸漬させて得た平衡水を用いる。U硝酸

酸性水溶液を平衡水に入れることによる pH 低下を防ぎ、かつ U が加水分解しない pH で保存するため、pH 約 4 に合わせた。

(3) セメント及びセメント構成成分試料

セメント及び溶脱セメント試料は 3.1.2(2)①で調製したものを、また、セメント構成成分として 3.2.3(1)で調製された 3 種類の C-S-H 試料及び C-S-H にアルミニウムを固溶させた 2 種類の C-A-S-H 試料を用いた。セメントの水酸化カルシウムが炭酸ガスと反応して生成する炭酸カルシウムを模擬するため、炭酸カルシウム試薬(小宗化学薬品株式会社、微粉)を用いた。酸化鉄として、株式会社高純度化学研究所製ヘマタイト粒状試料をメノウ乳鉢で粉碎し、40~105 μm の画分をふるい分けにより回収したものを使用した。

(4) U 収着実験

セメント及びセメント構成成分試料は溶解しやすいため、溶解しにくい条件での実験が必要である。そのため、U 収着実験の液相には、試料を純水に浸漬して得た平衡水を用いた。セメント及び溶脱セメントの平衡水は、3.1.2(2)①に記す方法で調製したものを用いた。C-S-H 平衡水は、C-S-H を純水に重量比 1:80 で浸漬し、3 日以上経過後にろ過した調製した。C-A-S-H 平衡水は、3.2.3(1)に記す方法と同様の方法で調製した試料を用いた。セメント-ヘマタイト平衡水は、セメントとヘマタイトを重量比 0.05 : 0.95 となるように秤量した粉末試料を純水に重量比 1:80 となるように浸漬し、3 日以上経過後にろ過した試料を用いた。

15 mL のプラスチック遠沈管に粉末試料を 0.0500 ± 0.0002 g を秤量した。セメント-ヘマタイト混合試料では、セメントが 0.0025 g、ヘマタイトが 0.0475 g となるように遠沈管に入れた。この遠沈管に平衡水 4.95 mL を入れて振とうした後、100 ppm の U 水溶液 (pH 4) を 0.05 mL 添加した。遠沈管に蓋をつけ、25 °C で振とうした。24 時間後、10,000 rpm で 3 分間遠心分離したのち、液相を 0.2 μm のシリンジフィルターでろ過した。液相の pH を測定した後、U 濃度を誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS、NexION PerkinElmer 社) により測定した。U 収着の収着率 (%)、 K_d (mL・g⁻¹) は式 3.1-4 から 3.1-6 により求めた。

$$\text{収着率}(\%) = (C_0 - C) / C \times 100 \quad (\text{式 3.1-4})$$

$$K_d = Q / C \quad (\text{式 3.1-5})$$

ここで C_0 は U 初期濃度 (g・mL⁻¹)、 C は実験後の U 濃度 (g・mL⁻¹)、 Q は固相に収着した U 濃度 (g・g⁻¹) であり、 Q は、

$$Q = (C_0 - C) \times V / w \quad (\text{式 3.1-6})$$

により求めた。ここで、 V は液量 (mL)、 w は固相重量 (g) である。

一部の試験では、遠沈管の器壁に収着した U、及び固相に可逆的に収着した U を次のようにして調べた。平衡水 5 mL を使って遠沈管に残った固相をすべて新しい遠沈管に移した。元の遠沈管に 2 %硝酸水溶液 5 mL を入れて蓋を閉めた後よく振った。24 時間後、液相を回収し、液相中の U を器壁に収着した U として定量した。平衡水を使って新しい遠沈管に移した固相については、遠沈管の蓋を閉めた後、25 °C、100 rpm の条件で振とうした。24 時間後、10,000 rpm で 3 分間遠心分離したのち、液相を 0.2 μm のシリンジフィルターでろ過し

た。ろ液中のUを平衡水により脱離したUとして定量した。

U収着後の固相は、遠沈管に入れたまま真空デシケーターに入れて乾燥させた。乾燥後の固相を、XRD（株式会社リガク、SmartLab）及び蛍光X線（XRF、株式会社島津製作所、EDX-8100）法により分析した。一部の試料については、SEM-EDX（Phenom-World、Phenom ProX）により分析した。

(5) セメント及びセメント構成成分試料へのU収着

セメントの成分が微細であるため、収着実験中に固相の一部が器壁に付着してしまったため、遠沈管器壁に収着したUを評価することは困難であった。付着の程度は成分によって異なり、炭酸カルシウムは器壁が明らかに白くなるほど付着した。固相粒子の付着が肉眼ではほとんど認められなかったC-S-HとC-A-S-Hの場合、固相を別の容器に移した後に元の遠沈管に希硝酸をいれることで器壁から脱離したUは1%未満であった。Uを収着した後の固相に平衡水を入れることで脱離したUは概ね1%未満であった。したがって、Uの収着率と K_d は、器壁への収着が無視できるとして求めた。

表3.1-3に、セメント及びセメント構成成分試料へのU収着率と K_d を示す。実験後の液相のpHは、セメントではpH約13、溶脱セメントではpH約10、C-S-HではpHは11~12、C-A-S-HではpH11から約13と違いがあったが、Uは99%以上収着し、 K_d は $10^4 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ 以上であった。炭酸カルシウムの場合、実験後の液相のpHは約8.5と低く、Uの収着率は52から58%程度、 K_d が $1 \times 10^2 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ と他の試料に比べて明らかに低かった。

表3.1-4に、U収着前後の固相の化学組成をXRF分析により求めた結果を示す。固相の化学組成は、Uの収着前後でほとんど変化しなかった。

図3.1-11に、U収着前後の固相のXRD分析結果を示す。セメント試料及び溶脱セメント試料では、U収着後にエトリンガイト ($\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 27\text{H}_2\text{O}$) と推定される回折線が現れた。それ以外の回折線はすべてU収着前と同じであった。C-S-H、C-A-S-H、及び炭酸カルシウムの回折線は、U収着前後で変化しなかった。

図3.1-12に、U収着前後のC-A-S-H試料 (Ca/Si=0.83) のSEM像を示す。U収着前後で、形状に変化は認められなかった。また、UはEDXにより検出されなかった。他の試料についても、形状に変化は認められず、Uは検出されなかった。

表 3.1-3 セメント等へのUの収着

固相	時間 / 日	実験後 pH	収着 / %	Kd / mL/g
セメント (No. 1, w/c=0.60, 28日養生)	1	13.0±0.0	99.9±0.0	$(7.4 \pm 0.2) \times 10^4$
セメント (No. 3, w/c=0.36, 28日養生)	1	12.9±0.0	99.9±0.1	$(9.3 \pm 4.5) \times 10^4$
溶脱セメント (No. 7, w/c=0.36, 28日養生) 0.5M 硝酸アンモニウム処理	1	12.6±0.0	99.9±0.0	$(1.4 \pm 0.4) \times 10^5$
溶脱セメント (No. 11, w/c=0.36, 28日養生) 6M 硝酸アンモニウム処理	1	10.3±0.0	99.3±1.0	$(5.9 \pm 6.1) \times 10^4$
溶脱セメント (No. 12, w/c=0.36, 91日養生) 6M 硝酸アンモニウム処理	1	10.5±0.0	99.9±0.0	$(7.8 \pm 0.7) \times 10^4$
CSH (Ca/Si=0.83)	1	11.0±0.0	99.8±0.1	$(7.8 \pm 4.5) \times 10^4$
CSH (Ca/Si=1.00)	1	11.8±0.0	99.6±0.0	$(2.6 \pm 0.3) \times 10^4$
CSH (Ca/Si=1.40)	1	11.8±0.0	99.9±0.1	$(3.2 \pm 5.3) \times 10^6$
CASH (Ca/Si=0.83, 合成20°C)	1	11.0±0.0	99.9±0.0	$(2.0 \pm 0.9) \times 10^5$
CASH (Ca/Si=1.40, 合成20°C)	1	12.6±0.0	99.8±0.1	$(8.8 \pm 7.0) \times 10^4$
炭酸カルシウム	1	8.5±0.1	57.5±0.8	$(1.4 \pm 0.0) \times 10^2$
炭酸カルシウム	7	8.6±0.1	51.9±1.2	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^2$
ヘマタイト-セメント混合 (重量比9.5:0.5) ヘマタイト粒子、セメント (No. 3)	7	12.3±0.0	99.1±0.1	$(1.2 \pm 0.2) \times 10^4$

表 3.1-4 U 収着前後の固相の化学組成

	セメント (No. 1) w/c=0.60 28日養生		セメント (No. 3) w/c=0.36 28日養生		溶脱セメント (No. 7) w/c=0.36 28日養生 0.5M NH ₄ NO ₃ 処理		溶脱セメント (No. 11) w/c=0.36 28日養生 6M NH ₄ NO ₃ 処理		溶脱セメント (No. 12) w/c=0.36 91日養生 6M NH ₄ NO ₃ 処理	
	前	後	前	後	前	後	前	後	前	後
CaO	64.9	68.2	65.4	66.1	58.0	55.9	30.4	30.6	31.3	31.4
SiO ₂	23.4	21.0	22.6	22.5	27.1	28.1	49.9	50.1	51.1	50.2
Al ₂ O ₃	5.1	4.6	5.1	4.9	6.5	7.1	9.8	9.8	9.2	9.2
Fe ₂ O ₃	2.7	3.1	3.0	3.1	3.9	3.8	6.1	5.8	4.9	5.1
SO ₃	2.3	1.7	2.1	1.4	2.3	3.1	0.4	0.4	0.6	1.0
MgO	0.9	0.8	1.1	1.1	1.4	1.4	2.4	2.3	2.2	2.2
TiO ₂	0.2	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.5	0.5	0.5	0.6
K ₂ O	0.2	0.2	2.1	0.2	0.0	0.0	0.1	0.1	0.1	0.1
CuO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.1	0.0	0.0
SrO	0.1	0.0	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
ZnO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0

	CSH 0.83		CSH 1.0		CSH 1.40		CASH 0.83		CASH 1.40	
	前	後	前	後	前	後	前	後	前	後
CaO	42.2	42.0	45.9	46.1	52.3	52.9	37.8	37.5	47.8	48.2
SiO ₂	57.2	57.5	53.6	53.4	47.1	46.6	51.4	51.9	41.2	41.3
Al ₂ O ₃	0.4	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	10.7	10.5	10.9	10.3
Fe ₂ O ₃	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
SO ₃	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
CuO	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

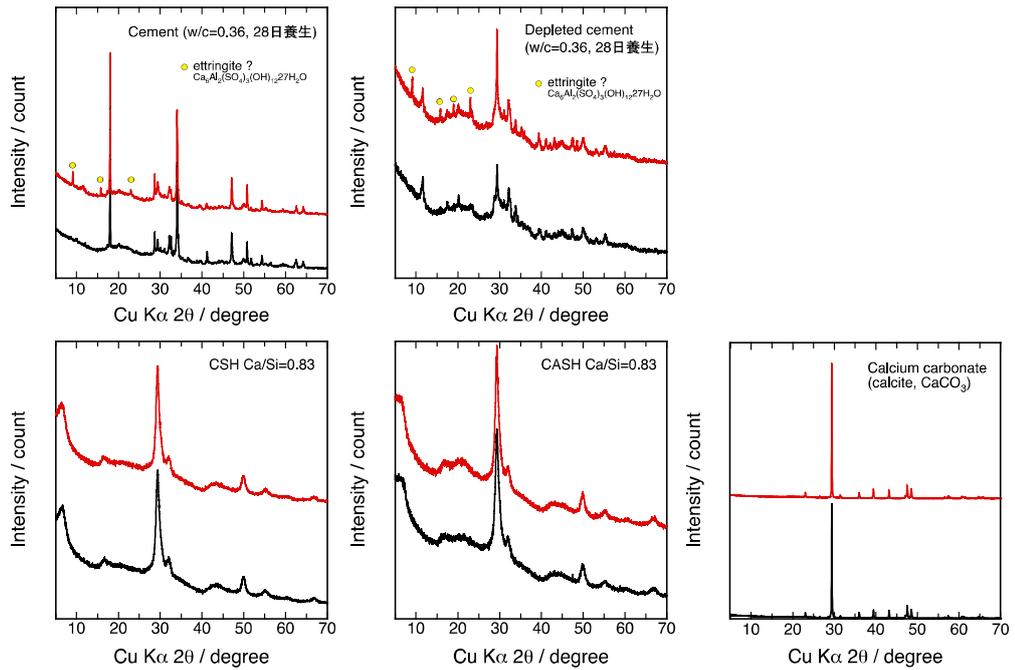


図 3.1-11 U 収着前後の固相の XRD 分析

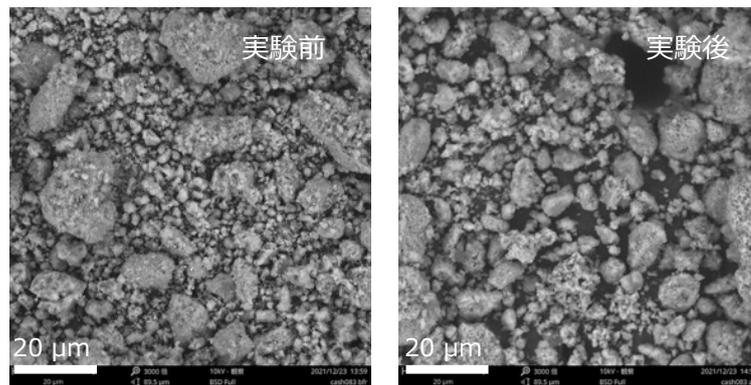


図 3.1-12 U 収着前後の C-A-S-H 試料 (Ca/Si=0.83) の SEM 画像

(6) セメント-ヘマトイト混合試料への U の収着

表 3.1-3 に示すように、セメント-ヘマトイト混合試料に対しても U は 99 % 以上収着し、 K_d は約 $1 \times 10^4 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ であった。収着実験後の液相 pH は 12.3 であった。令和 2 年度に行ったこのヘマトイト粒子に対する U の収着実験では、pH 11.5 以上では U はほとんど収着しなかった (1 % 未満)。したがって、この混合試料では収着した U のほぼすべてがセメントに収着したと考えられる。セメントの U 濃度は約 0.2 % となるが、この試料の SEM-EDX 分析では、セメントとヘマトイトのどちらにも U が検出されなかった。また、ヘマトイトにはセメント由来の元素はほとんど検出されなかった。

3.1.4 令和3年度の実施内容及び成果のまとめ

硬化セメントペースト試料及び模擬変質試料を調製し、試料固相の表面観察を SEM-EDX により行った。硬化セメントペースト試料への I^- の K_d は約 $10^2 \sim 10^3 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ であり、 K_d の温度依存性から決定した収着のエンタルピーの値より、 I^- の収着は弱い吸熱反応であることが示唆された。硬化セメントペースト試料への I^- の K_d に比べて、C-S-H 及び C-A-S-H 試料への I^- の K_d 値は大幅に低く、試料により主要な収着機構が異なることが示唆された。一方、模擬変質試料中の ^{137}Cs の非定常拡散実験を実施し、IP を用いて測定した放射能分布から決定した ^{137}Cs の D_a は $4.4 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、NaI(Tl) シンチレーションカウンタを用いた測定では $3.1 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ となり、両者はほぼ一致した。また、 ^{14}C の非定常拡散実験及び透過型拡散実験を開始した。硬化セメントペースト試料中の炭酸イオンの移行は認められず、 D_a は極めて低かったことから、炭酸イオンは試料固相への強い収着により移行が大幅に遅延している可能性がある。一方で、酢酸イオンの D_a は $6.2 \times 10^{-12} \sim 1.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の範囲であり、酢酸イオンは毛細管空隙等の自由水中を拡散している可能性が示唆され、 ^{14}C の化学形によって拡散挙動が大きく異なることが示された。

U(VI) を約 1 ppm 含む U 水溶液と粉末試料を 24 時間反応させた後、セメント、溶脱セメント、C-S-H 及び C-A-S-H に対する U の分配係数 K_d はすべて $10^4 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以上と非常に高い値であった。セメントが炭酸イオンと反応して生成する炭酸カルシウムを模擬した試薬の炭酸カルシウム微粉では K_d が $1 \times 10^2 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ と低かった。収着前後で固相の変化は認められなかった。

3.2 汚染水との接触により変質したコンクリート材料の特性評価

3.2.1 令和2年度の成果概要[1]

コンクリートが水と長期間接すると、セメント水和物から分離したカルシウムイオンが溶出して、細孔構造が変質する。先行研究から、主要な水和物の1つである水酸化カルシウム ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) が溶解して、続いてC-S-Hが溶解すると言われている。この結果、空隙率が増加して強度低下につながる。しかし、このようなカルシウムイオンの溶出に伴うセメント水和物組織の変質を精度よく調べるためには、検出精度が数mm程度である従来の検出法では比較的長期に及ぶ試験期間が必要とされた。そこで、マイクロメートルオーダーでの分析が可能な場合には溶出試験の期間を大幅に短縮できると考えた。

w/c比が0.5のセメントペースト及び骨材から成るコンクリート供試体から2.5×2.5×5.0 mmの角柱供試体を切り出して、精製水で満たしたプラスチック容器内で溶出試験を実施した。試験開始1か月後にX線CT測定を実施し、供試体の断面画像からカルシウムの溶出範囲を推定した。このとき採用した試験条件である供試体の配合や寸法、試験期間とカルシウム溶出の関係を見出すことができた。また、コンクリートのSiTraMを用いた溶脱現象の模擬計算のために、供試体のCT断面画像からプレ処理段階における解析モデルを構築した。溶脱現象の模擬計算用に、コンクリート、骨材、骨材周辺の遷移帯の3相からなる解析モデルを構築した。さらに、コンクリート塊を用いて破碎処理回数を変えた破碎骨材の粒度分布、吸水率、密度を調べた。実験室内において別の実験目的で作製した鉄筋コンクリート梁を粗粉碎後に、ジョークラッシャによる2回の破碎処理を行い、粒度分布、表乾密度、吸水率を比較した結果、2回粉碎では影響を受けないことが示された。

また、3種類のCa/Siの異なる合成C-S-Hを調製した。Ca/Si:1.4は健全、1.0は中程度の劣化状態、0.83は完全に劣化した状態を模擬したものである。40℃で合成したC-S-HをXRD及びNMR分光法を用いて合成確認及び微細構造の把握を行った。XRDの結果より、3種類の合成C-S-Hは全て単相であることを確認した。また、NMR分光法により、3種の合成C-S-Hは SiO_4 鎖の長さが異なることが示され、微細構造が異なるC-S-Hが合成されたことを確認した。また、調製したC-S-Hは北海道大学及びJAEAに送付した。

3.2.2 劣化・損傷コンクリートの安定性評価

(1) 概要

令和2年度に調製した試料を参考に劣化試料を調製するとともに、非破壊CT-XRD連成法[8][9]によって溶脱性状を調べた。また、令和2年度に改変に着手したSiTraMについて溶出実験結果と比較しながら、モデルの改良を継続した。さらに、破碎機で破碎したコンクリート塊の溶脱実験を行い、劣化状況を調べた。

(2) 微小円柱供試体における非破壊CT-XRD連成法の適用

本研究では、直径が3mmで高さが6mmの微小円柱供試体を採用することで短期間の溶出試験を行い、非破壊CT-XRD連成法によって劣化状況を調べた。前述したように、令和2年度、既に、硬化体からダイヤモンドワイヤーソーで切り出した微小角柱供試体について、非破壊CT-XRD連成法は有効であることを見出している。しかし、ワイヤーソーでの切り出しに伴う微小振動や切断面における溶出への影響については検討していない。今回は、所定の形状と寸法のアクリル製型枠を用いて、その型枠内へセメントペーストを打ち込んだ。そし

て、脱型後の微小円柱供試体を用いることで、切り出しや成型が不要な硬化体に対して溶出試験を実施した。溶出試験を終了した後は、大型放射光施設 (SPring-8) の BL28B2 で開発した非破壊 CT-XRD 連成法を用いて、溶出による硬化体内部の変質状況を非破壊で、しかもマイクロメートルオーダーで観察、分析した。

微小円柱供試体のセメントペーストの w/c 比を 0.5 とし、研究用の OPC を用いた。コンクリートを模擬するために、本研究では骨材とセメントペーストの混合硬化体を作製した。作製の際にはフレッシュな状態の微小円柱供試体内部に 1 つ石灰石砕砂を配置した。粒径範囲は 1.0 mm~1.7 mm の骨材であり、供試体の中央に位置するように配置した。

ブリーディングの影響を排除するために、セメントペーストを練り混ぜた後に数回練返しを行った。脱型後に 28 日間の湿潤養生を行った。湿布養生の後に、浸漬水 1~10 mL で満たした容器内に微小円柱供試体を設置して、温度 20 ± 2 °C の恒温室で溶出試験を実施した。そして 4 週間の溶出試験後に、非破壊 CT-XRD 連成法で測定を行った。

図 3.2-1 は、模擬塩水 (3 %NaCl 溶液) に浸漬された硬化体の CT 画像データであり、8bit で表した断面画像である。この画像は、再構成後の積層断面のうち 721 層目であり、供試体の中間近傍の断面である。中央のうすい灰色は骨材であり、周囲はセメントペーストである。また、比較的大きな気泡が画像の左位置に存在している。白色の点もあるが、吸収係数が大きな未反応のセメント粒子と思われる。このように、CT 画像から骨材とセメントペーストを分離抽出することが可能であることがわかった。なお、画像中の①から⑥の番号は、後述する XRD 測定を行った位置である。非破壊 CT-XRD 連成法は、CT 画像を参照しながら、任意の関心領域に対して、XRD ができることが最大の特徴である。

図 3.2-2 は、フィルタリング処理して濃淡をより明確にした画像である。これにより、供試体円周に沿った表層部は内部よりも濃いグレーであることがわかる。供試体の縁から約 0.5 mm 程度である。そこで、この表層部はカルシウム溶出によって水和物組織が変質した領域であると仮定して、これを溶脱領域と定義した。画素値が比較的小さい領域であり、密度が低下して空隙率が大きくなった可能性が示唆された。また、表層部よりも内部の領域を非溶脱領域と定義して、溶脱領域と区別した。

CT 断面画像を見ると、骨材とセメントペーストに存在する遷移帯において溶脱領域と思われる領域が認められた。特に骨材の上部の周囲に沿って画素値が小さく濃いグレーの遷移帯の存在が認められた。このことからコンクリートが浸漬水と接することで、遷移帯からのカルシウムイオンの溶出が比較的大きく、それに伴い遷移帯の空隙が増加することが推察された。

これまでの研究から、コンクリートが長期間水と接することで、まず細孔溶液中のカルシウムイオン濃度の局所平衡からポルトランドイト ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) が溶脱することでカルシウムイオンが溶出すると考えられている。次に、主要な C-S-H の溶脱が生じて、継続的にカルシウムイオンが溶出する。そして、徐々に水和物が分解することで空隙構造にも影響を及ぼし、空隙率が増加する。しかし、セメント水和物におけるカルシウムの溶解度は小さく硬化体の性状に影響を及ぼすまでには相当な時間を要するため、通常のコンクリート構造物では大きな問題とはならない。したがって、セメント水和物の溶脱現象を実験室内で再現するには、通常実験に要する期間が長期に及ぶことになる。これを解決するために、本研究で採用した非破壊 CT-XRD 連成法では、微小供試体を用いたマイクロメートルオーダーの分解能である

ために、溶脱現象を比較的短期間で再現できる可能性が示された。つまり、本研究の範囲内のコンクリートが模擬塩水と接触するとカルシウムの溶出フロントが 1 か月の試験期間で約 0.5 mm となることがわかった。

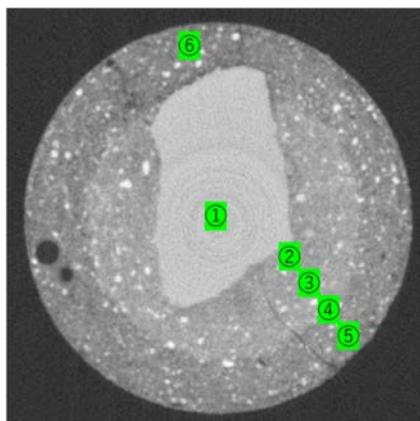


図 3.2-1 CT 断面画像 (721 層)

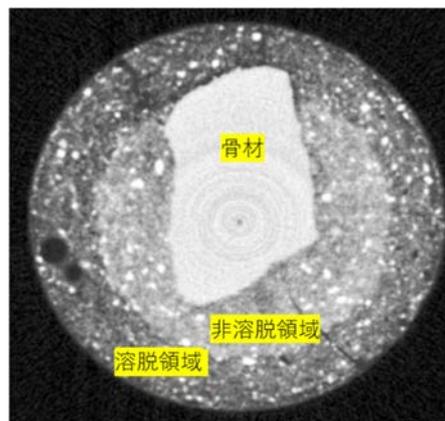


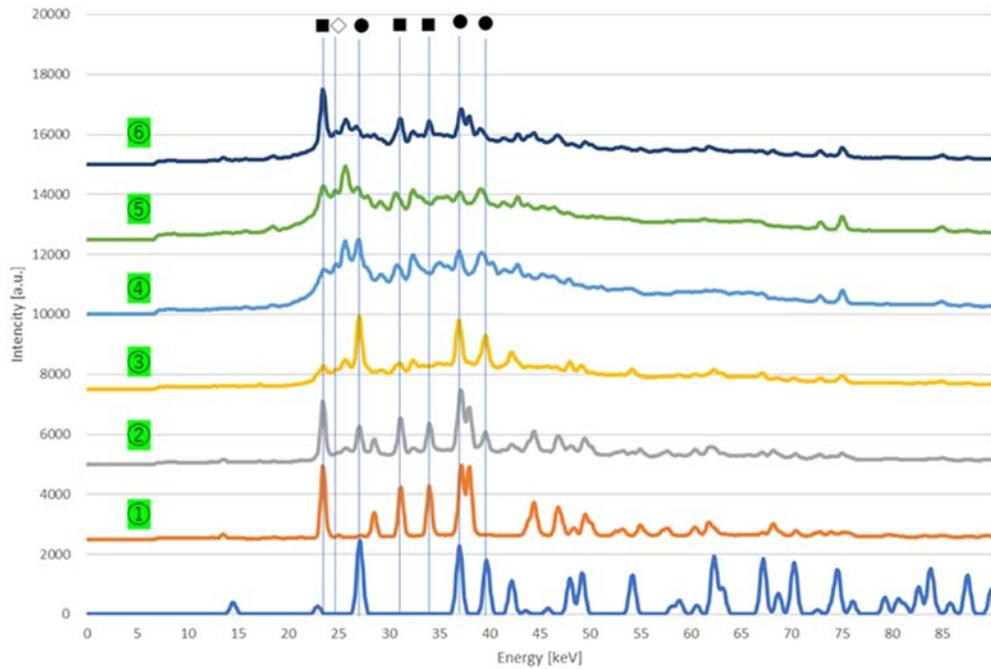
図 3.2-2 溶出による変質状況

前述したように、CT 画像から画素値の相違に由来する溶脱領域と非溶脱領域を区別した。そこで、各領域でのセメント水和物の同定を試みた。本研究ではポルトランドイト、カルサイト、フリーデル氏塩の有無について XRD から同定を試みた。

図 3.2-1 の CT 画像から 6 つの関心領域を選定して、XRD 解析を行った。選定した 6 点は、骨材が No. ①、非溶脱領域から No. ②と No. ③の 2 点を、溶脱領域から No. ④、No. ⑤、No. ⑥の 3 点である。図 3.2-3 は、XRD 解析結果である。測定プロファイルと比較するために、ポルトランドイトの XRD チャートの理論値も同図に示している。図 3.2-3 の結果より、非溶脱領域の XRD チャート (No. ②、③) ではポルトランドイトのピークが明確に示されている。No. ④、⑤でもピーク強度は小さいが認められた。また、No. ①は複数のピークでカルサイトが同定された。骨材は石灰岩であるため、カルサイト鉱物が同定されたことがわかる。また、No. ②でもカルサイトが同定されているが、この原因はゲージボリュームの大きさに関係しており、関心領域の一部に骨材が含まれていたためである。骨材以外では、溶脱領域である No. ⑤、⑥でカルサイトが同定できる。溶脱により水和物組織が脆弱になり、接触水に溶解している炭酸や測定に際して空気中の二酸化炭素によって溶脱領域が炭酸化したと思われる。一方、フリーデル氏塩は、塩化物イオンがセメント水和物の固相中に固定化される際に形成される。No. ④、⑤、⑥において小さい強度が認められる。一般にフリーデル氏塩は不安定で粉末 XRD だけでは同定は困難と考えられている。以上より、非破壊 CT-XRD 連成法における XRD 測定によって、CT 画像における溶脱領域ではポルトランドイトは溶脱し、カルサイトの生成が認められた。

コンクリート硬化体内部では、セメントペーストと骨材の界面はバルクマトリックスに比較してポーラスなため、強度や物質移動に影響を及ぼす。図 3.2-4 は CT 画像から抽出したセメントペースト内部の骨材の空間配置である。骨材形状は複雑であり、セメントペースト内部の骨材配置によって、一様な界面性状ではない。また、骨材下部にはブリーディング水が滞水しやすく、カルシウム溶出に及ぼす遷移帯の影響は異なると考えられる。

3.2-3



●ポルトランドイト、■カルサイト、◇フリーデル氏塩

図 3.2-3 関心領域における XRD 解析結果

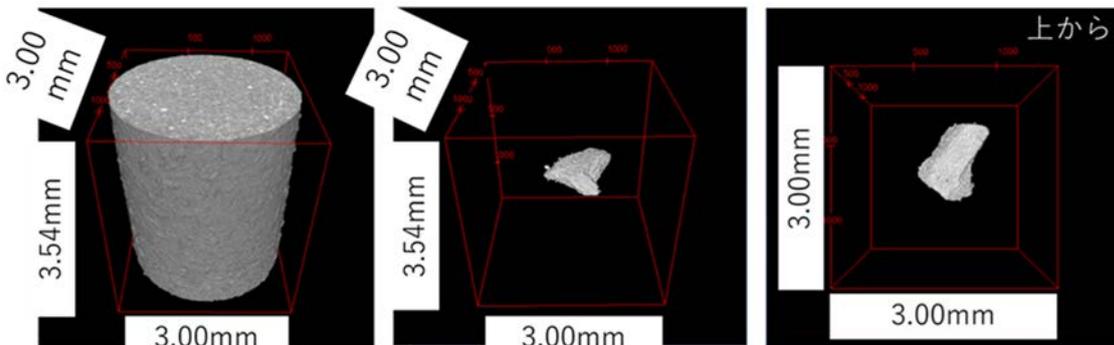


図 3.2-4 骨材の空間配置

(3) SiTraMによる溶出の模擬計算

SiTraMを用いて模擬塩水(3%NaCl溶液)と接するコンクリートの溶脱現象の模擬計算を行った。令和3年度での模擬計算は、溶出実験を模擬するために、微小円柱供試体のCT断面画像からモデル化した。その際に、セメントペースト、骨材、遷移帯の3相構造として、セメントペーストと遷移帯の物性値を入力値とした。抽出した遷移帯を図3.2-5、主な入力値を表3.2-1、表3.2-2に示す。溶出実験の結果と比較するために、溶出期間は1か月間とした。コンクリートの入力値はセメントペーストである。w/c比は0.5、OPCは普通ポルトランドセメントであり、鉱物組成からポルトランドイト及びC-S-H量をそれぞれ計算した。空隙構造係数は式3.2-1から求めた。

$$\pi_{x,t} = \frac{D_0^i}{D_e^i} \quad (\text{式 3.2-1})$$

ここで、 $\pi_{x,t}$ は空隙構造係数、 D_0^i は自由空間拡散係数、 D_e^i は実効拡散係数である。

セメントペーストにおける入力値は、既往の研究から報告される一般的な空隙構造を想定した。一方、遷移帯の空隙構造及びセメント水和物の量に関しての定量的な評価はほとんどなされていない。本研究では、遷移帯はセメントペーストと比較してポーラスであると考えて、空隙構造係数は1.5倍に設定し、初期空隙率も1.5倍とした。また、ポルトランダイトはセメントペーストの90%、C-S-Hは80%とそれぞれ設定した。

模擬計算の結果を、ポルトランダイト及び空隙率の分布として、それぞれ図3.2-6、図3.2-7に示す。図3.2-6から供試体の円周に沿った縁部ではポルトランダイトが溶解したことが示されており、この領域はCT画像(図3.2-2)における濃いグレーの領域と比較的よく一致している。また、供試体断面の上部(12時近辺)の骨材周辺を詳細に調べると、遷移帯に沿ってポルトランダイトが溶解している様子が模擬されている。このことから、模擬塩水と接するコンクリートでは、骨材周辺の遷移帯に沿ってポルトランダイトが溶解することが示された。また、図3.2-7の空隙率の増分をみると、最縁部でおよそ30%増加していることがわかる。セメント水和物からカルシウムが溶出したことから空隙構造がよりポーラスになったことがわかる。

表 3.2-1 コンクリートの主な入力値

コンクリート (セメントペースト)	入力値
単位セメント量 kg/m^3	1225
単位水量 kg/m^3	613
セメント種類	OPC
初期空隙率	0.2
初期空隙構造係数	$5.86 \cdot 10^{-3}$

表 3.2-2 遷移帯の入力値

遷移帯	入力値
初期空隙率	0.3
初期空隙構造係数	$8.79 \cdot 10^{-3}$
相対CH比 %	90
相対C-S-H比 %	80

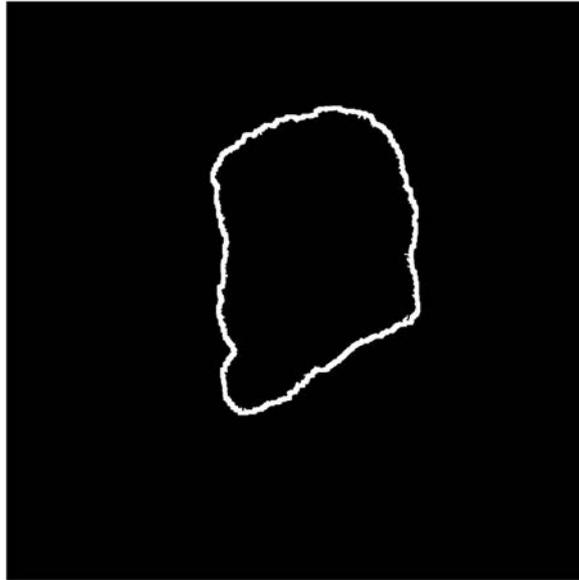


図 3.2-5 遷移帯の抽出

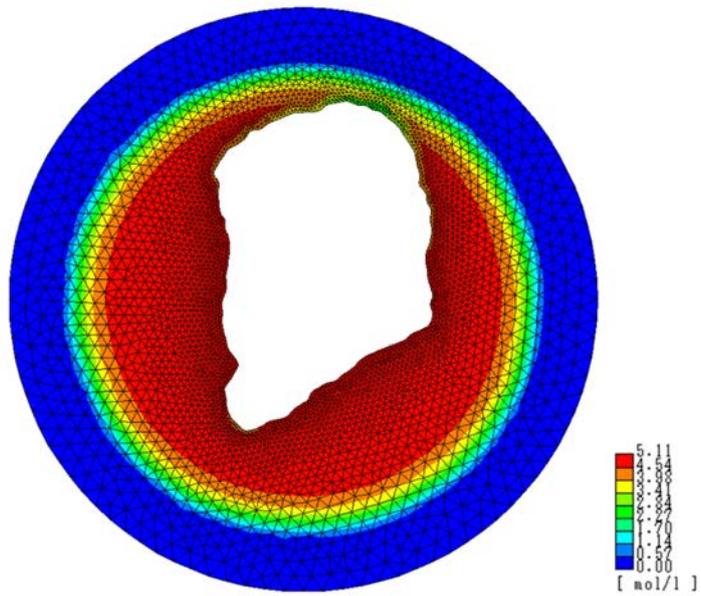


図 3.2-6 ポルトランダイトの濃度分布

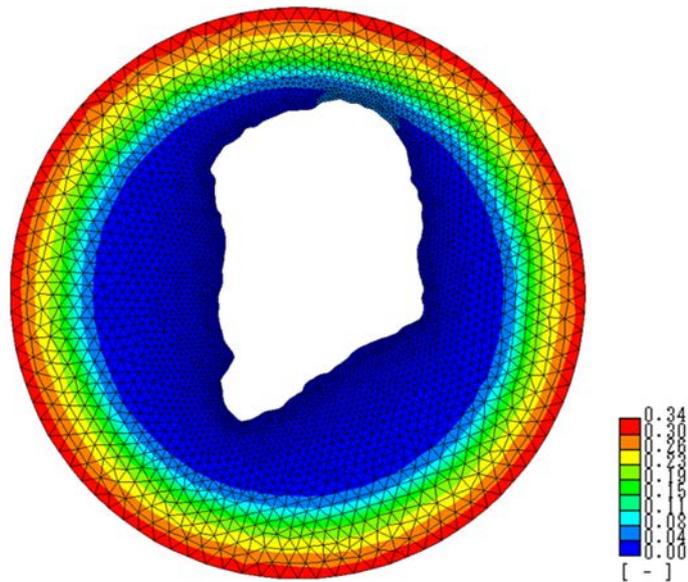


図 3.2-7 空隙率の増加

(4) 破碎したコンクリート塊の水中浸漬試験

本研究で対象とする破碎したコンクリート塊は、「JIS A5023 再生骨材コンクリート L 附属書 A (規定) コンクリート用再生骨材 L」における再生粗骨材 L の吸水率 (7.0 %以下) 及び微粒分量 (3.0 %以下) の規格値を満足するものである。一般に再生骨材 L は、最も低品質な再生骨材であり、破碎機による粉碎だけで製造される。逆に言うと、余計なエネルギーを必要とせずに、さらに 2 次的な微粉末の発生も抑制できる。しかし、吸水率が増加して品質が低下することにつながる。今回は、コンクリート塊の溶出試験として、短期の 48 時間及び長期の 3 か月間水道水中に浸漬した。その後、表乾密度、絶乾密度、吸水率を測定した。ここで、表乾密度 (g/cm³) は表面乾燥飽水状態における密度であり、絶乾密度 (g/cm³) は絶対乾燥状態における密度である。

実験で用いたコンクリート塊は、RAS1、RAS2、RAM1、RAM2 の 4 種類である。RAS と RAM は、どちらも路盤材用再生骨材を製造する工場から入手したが、その入手先が異なることを示している。また、番号の 1 と 2 は破碎の回数を表している。1 回目の破碎後に再度、破碎機に投入することで破碎処理を 2 回実施した。これにより原骨材の周囲に付着したモルタル分をより多く取り除くことができると考えた。試験方法は、「JIS A1110 粗骨材の密度及び吸水率試験方法」を参照して実施した。この規格は一般に普通骨材や構造用軽量骨材を対象としており、一般的には吸水時間は 24 時間である。しかし、本研究では先述したように、4 種類のコンクリート塊の吸水時間を 48 時間及び 3 か月間としている点が特徴である。浸漬期間を長くすることで、コンクリート塊の溶脱の影響を調べることにした。

表乾密度と絶乾密度の結果をそれぞれ図 3.2-8、図 3.2-9 に示す。図 3.2-8 の表乾密度の結果から、コンクリート塊 RAS の表乾密度が RAM よりも大きく、浸漬期間が長期になると密度は小さくなる傾向を示している。また、2 回破碎した場合が密度は大きくなる傾向を示し

ている。図 3.2-9 の絶乾密度は全体的に表乾密度よりも小さいが、コンクリート塊内部の空隙水が存在しないためである。

これより先ず、コンクリート塊の浸漬期間を 3 か月間と延長することで、コンクリート塊を構成するセメントペーストからカルシウムが溶出して、コンクリート塊の空隙率は大きくなると考えられる。図 3.2-9 の絶乾密度は、表乾密度よりも比較的顕著に浸漬期間の影響を示している。つまり、浸漬期間を 3 か月間と延長することで、絶乾密度は、RAS 骨材で約 1.7 %、RAM 骨材で約 2.2 %減少している。

図 3.2-10 は吸水率の結果である。48 時間の浸漬では、4 種類すべてのコンクリート塊で再生粗骨材 L の吸水率の規格値 7.0 %以下を満足している。しかし、3 か月間の浸漬後では、4 種類すべてで吸水率は増加している。RAS1 は約 1.2 倍、RAS2 は約 1.3 倍、RAM1 は約 1.2 倍、RAM2 は約 1.3 倍である。また、RAM1、RAM2 は再生粗骨材 L の吸水率の規格値を超えて、8.13 %、7.84 %となっている。浸漬中は、コンクリート塊の空隙中へ吸水作用により水が吸水されるが、浸漬期間を延長すると、より多くの水が吸水されることを示している。同時に、原骨材に付着したモルタル分からカルシウムが溶出して空隙が増加することも考えられる。

密度との関連から、RAM 骨材は RAS 骨材よりも密度は小さく、吸水率は大きい結果となった。これは両者が整合していると言える。すなわち密度が小さいほど原骨材に付着したモルタル分はポーラスであり、これによりカルシウムの溶出が増加し、同時に吸水量も増加したと考えられる。また、破碎の回数に着目すると、同じ破碎方法を 2 回繰り返しても密度や吸水率への影響は大きくないと思われる。これは、令和 2 年度実施した、実験室内で作製されたコンクリート供試体をジュークラッシャーで 2 回破碎した際にも同様な結果であった。破碎を繰り返す目的は付着モルタルの脆弱部分をより多く取り除くことである。そのため破碎の仕方を工夫することが必要である。

今回のコンクリート塊の溶出試験より、浸漬期間が増加するほど密度は低下して、吸水率は増加することが示された。

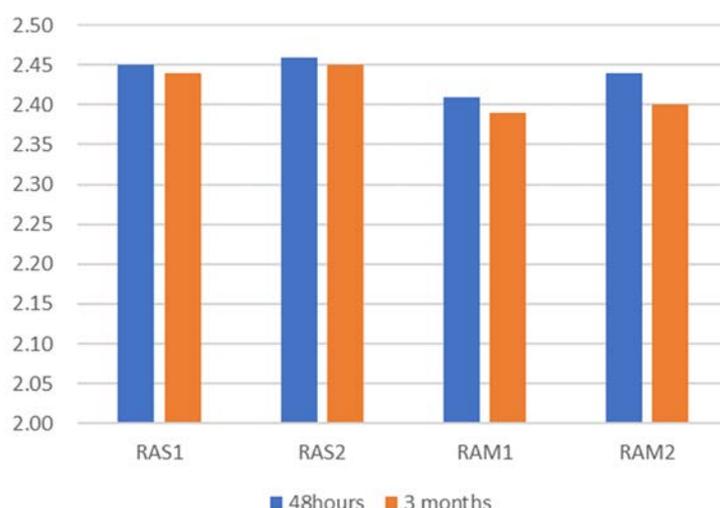


図3.2-8 表乾密度の測定結果

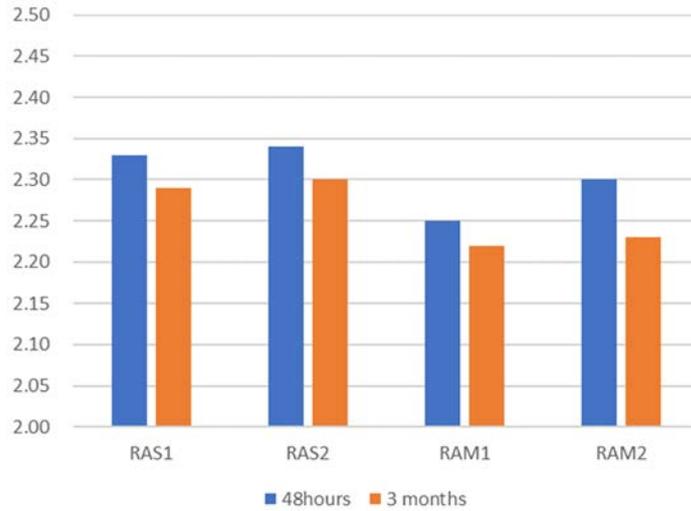


図3.2-9 絶乾密度の測定結果

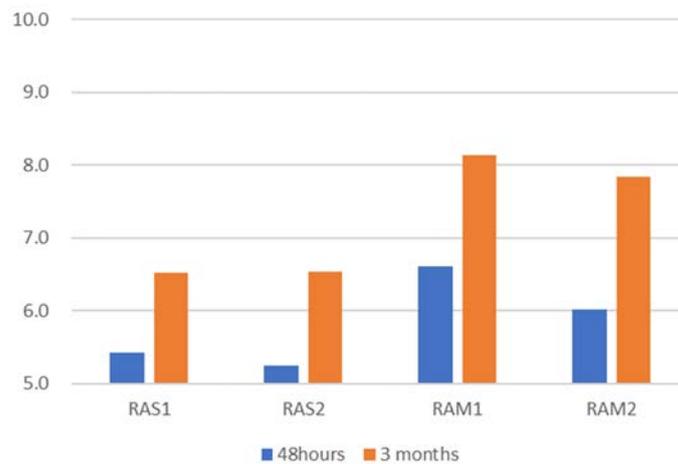


図3.2-10 吸水率の測定結果

3.2.3 C-S-H の合成・物性評価

(1) 核種収着実験用 C-(A-)S-H の合成

① 実験概要

1) 試料材料及び調製手順

合成 C-S-H 及び C-A-S-H の調製には、Ca 源として水酸化カルシウム（株式会社高純度化学研究所、純度 99 %以上）、Si 源として親水性ヒュームドシリカ（日本アエロジル株式会社、AEROSIL® 380）、Al 源として Al₂O₃（Sigma-Aldrich 社、粒径 50 nm 以下）及び超純水を用いた。Ca/Si (Ca/(Si+Al)) をモル比で 0.83、1.4 とし、Al/Si をモル比で 0、0.15、液固比を 80 になるようそれぞれの薬品を秤量した後、2 リットルのポリ容器にて全体量が 1.5 リットルになるよう混和した後、20 °Cあるいは 40 °C環境下にて、それぞ

れ C-S-H あるいは C-A-S-H の調製を行った。合成期間として 1 週間経過した後に吸引濾過し固相と液相を分離した後に D-Dry 乾燥を行った。また、Ca/Si : 1.4 は健全な状態、0.83 は完全に劣化したコンクリート材料を模擬したものである。また、C-A-S-H の合成理由としては、1F のコンクリートにはフライアッシュが用いられている可能性があり、C-A-S-H 中の Al/Si は OPC のみのコンクリートよりも高いことが考えられるためである。分析条件を以下に記す。

2) 結晶相分析 (粉末 XRD 法)

粉末 XRD 装置 (株式会社リガク、SmartLab) を使用しターゲットを $\text{CuK}\alpha$ 、管電圧を 45 kV、管電流を 40 mA、走査範囲を 5~70 deg. 2θ 、ステップ幅を 0.02° として自動スリットを使用して行った。XRD 測定においては試料調製後速やかに測定に供するものとした。

3) 非晶質分析 (NMR 分光法)

非晶質構造の測定を目的として、NMR 分光 (日本電子株式会社製 JNM-ECZ500R 11.7T) により合成 C-S-H の非晶質分析を実施した。測定対象核は ^{29}Si 及び ^{27}Al として、測定条件は、シングルパルス法、MAS 数 : 12000 Hz 及び 15000Hz、待ち時間 : 40 秒 (積算回数 : 1600 回) 及び 2 秒 (積算回数 200 回) とした。

4) 物性評価 (水蒸気吸脱着曲線)

ガス吸着測定装置 (マイクロトラック・ベル株式会社製 BELSORP MAX II) を用いて収着試験に用いる試料の比表面積を測定した。測定は試料を 20 mg 計りとり前処理装置 (マイクロトラック・ベル株式会社製 BELPREP VAC II) を用い 105° にて 3 時間真空乾燥したのちガス吸着測定装置を用い定容法にて水蒸気による吸脱着測定を行った。また、吸脱着等温線から BET 式 (3.2-2) を用い BET 比表面積を算出した。

$$\frac{P}{V(P_0-P)} = \frac{1}{V_m C} + \frac{C-1}{V_m C} \times \frac{P}{P_0} \quad (\text{式 3.2-2})$$

ここで、 V_m は第一層に吸着したガス容積、 V は吸着されたガスの容積、 P はサンプルセル内の圧、 P_0 は飽和蒸気圧、 C は吸着熱などに関するパラメータ > 0 である。

② 実験結果

1) 結晶相分析

図 3.2-11 及び図 3.2-12 にそれぞれ Ca/Si : 0.83、1.4、Al/Si : 0 の合成 C-S-H 及び Ca/Si : 0.83、1.4、Al/Si : 0.15 の合成 C-A-S-H の XRD プロファイルを示す。Al/Si 及び Ca/Si に依らず合成 C-S-H の回折ピークのみが確認されたため、単相として C-S-H 及び C-A-S-H が合成されたことを確認した。また、令和 2 年度と同様に唯一 10° 以下のピークは Ca/Si によって回折角度が異なることが確認され、Ca/Si が高くなる程高角側にシフトしていることが確認された。

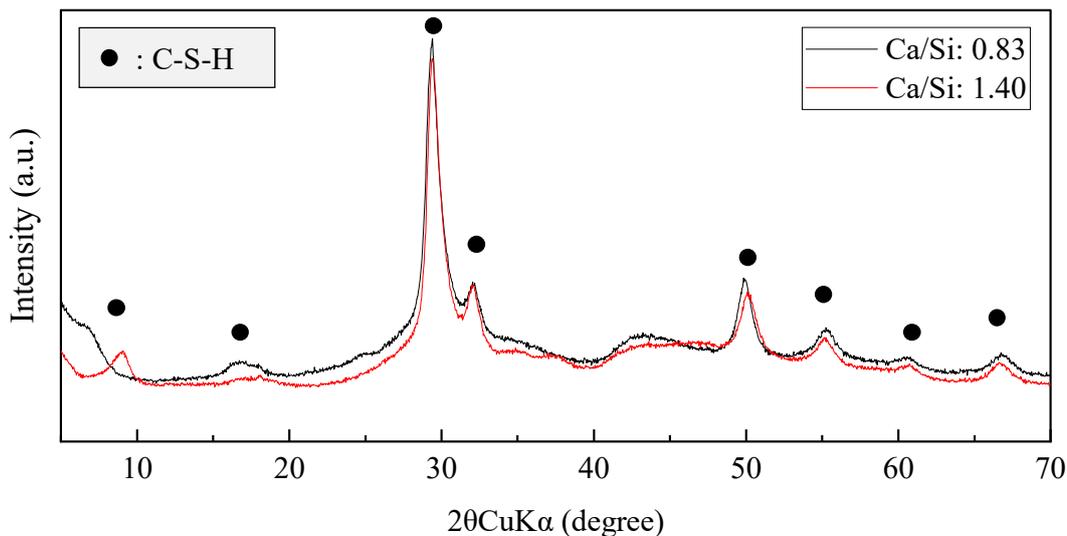


図 3.2-11 合成 C-S-H の XRD プロファイル
(Ca/Si : 0.83、1.4 合成温度 : 20 °C)

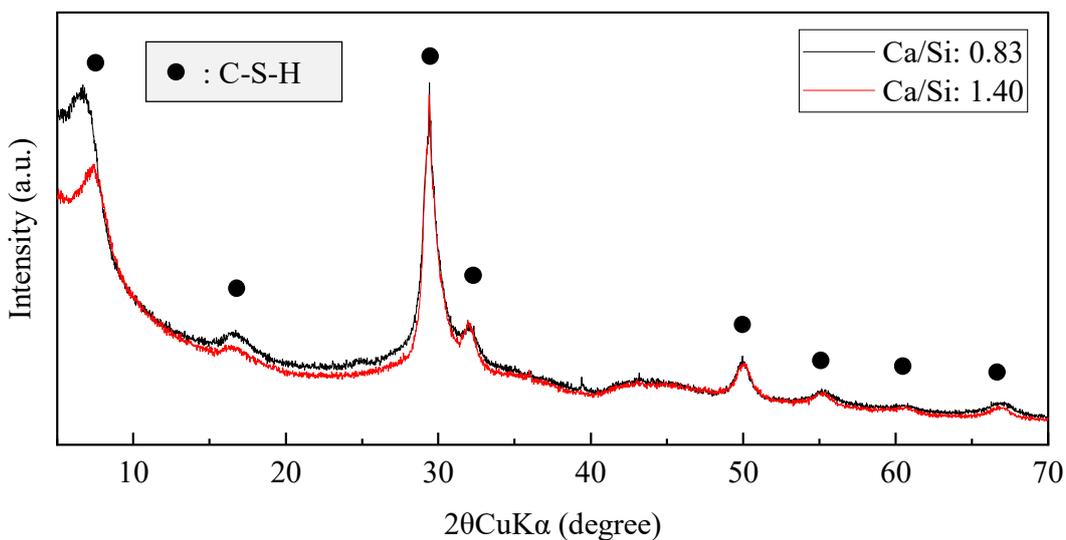


図 3.2-12 合成 C-A-S-H の XRD プロファイル
(Ca/Si : 0.83、1.4、Al/Si =0.15、合成温度 : 40 °C)

2) 非晶質分析 (NMR 分光法)

図 3.2-13 に合成 C-S-H、図 3.2-14(A) に合成 C-A-S-H の ^{29}Si MAS NMR を示す。 ^{29}Si の化学シフトは重合の伸長とともに負の値が大きくなる。通常、Si はセメント中では SiO_4^{4-} の正四面体で存在しており、他の SiO_4^{4-} との共有架橋 0 の数に応じて表 3.2-3 に示すように Q^0 : -66~-78 ppm (他の SiO_4^{4-} との共有架橋なし)、 Q^1 : -78~-81 ppm (他の SiO_4^{4-} との共有架橋 1 つ)、 Q^2 : -81~-86 ppm (他の SiO_4^{4-} との共有架橋 2 つ)、 Q^3 : -86~-110 ppm (他の SiO_4^{4-} との共有架橋 3 つ)、 Q^4 : -110 ppm~ (他の SiO_4^{4-} との共有架橋 4 つ/飽和) で表される [10][11]。図 3.2-11 より、合成 C-S-H 及び C-A-S-H の ^{29}Si MAS NMR スペクトル

では Q¹ 及び Q² のシグナルが確認された。また、Ca/Si : 0.83 のシグナルの Q¹/Q² は Ca/Si : 1.4 に比べて高いことが示された。C-S-H においては、Ca/Si が高くなる程 SiO₂ 鎖の重合が短くなることが知られており、先行研究とも傾向が一致している [12]。本研究で調製した合成 C-S-H 及び C-A-S-H は、Ca/Si の異なる 2 種類が調製されたことが示された。

図 3.2-14(B) に合成 C-A-S-H の ²⁷Al MAS NMR スペクトルを示す。合成 C-A-S-H における ²⁷Al の化学シフトに関しては、50~80 ppm に 4 配位、40~30 ppm に 5 配位、20 ppm~6 配位の Al のシグナルがあり、4 配位の中は 2 から 4 種、6 配位は 2 種の Al の化学環境が存在し、その比率や有無に関しては Ca/Si、Al/Si、溶液の組成及び合成温度にて異なることが知られている [13] [14]。4 配位の Al は C-A-S-H 中の SiO₄ 鎖と一部置換した状態を示すが、Al と Si の置換は核種の収着に影響を与えているとされている。本研究において調製した C-A-S-H においても 4 配位、6 配位のシグナルが確認されたものの、その比率や化学環境が異なることから、Ca/Si の異なる C-A-S-H では、Al が置換する位置が異なることが推察された。

表 3.2-3 ²⁹Si の化学シフトの例

	Q0	Q1	Q2	Q3
Chemical Shift /ppm	-68 ~ -78	-78 ~ -81	-81 ~ -86	-90 ~ -100
化学的環境	SiO ₄ 単体	鎖端	鎖中央	立体構造

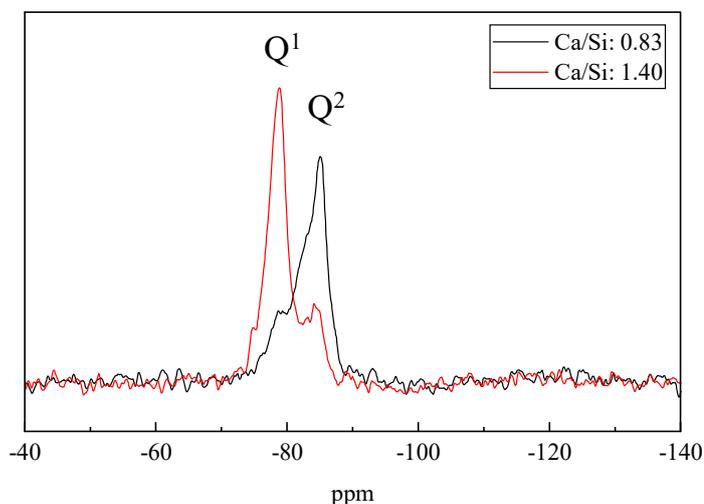


図 3.2-13 合成 C-S-H の ²⁹Si MAS NMR スペクトル (Ca/Si : 0.83、1.4、Al/Si =0、合成温度 : 20 °C)

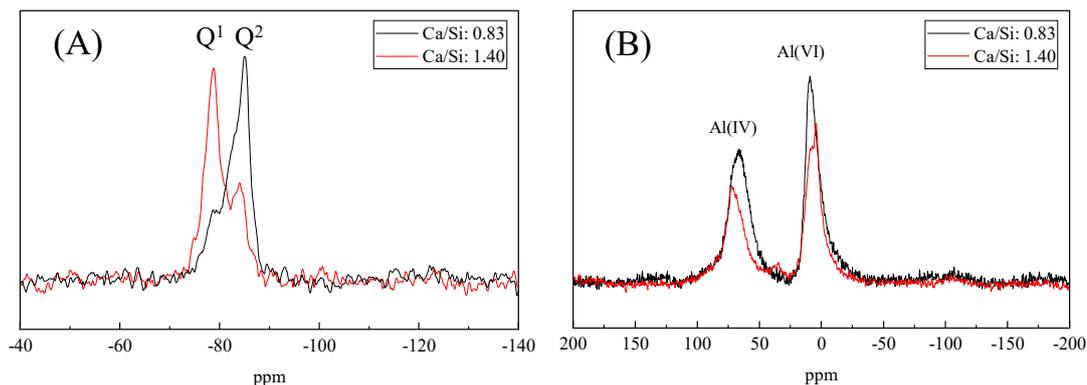


図 3.2-14 合成 C-A-S-H の (A) ^{29}Si 及び (B) ^{27}Al MAS NMR スペクトル
(Ca/Si : 0.83、1.4、Al/Si =0.15、合成温度 : 40 °C)

3) 物性評価 (水蒸気吸脱着曲線)

合成 C-S-H の水蒸気吸脱着曲線を図 3.2-15 に示す。Ca/Si : 0.83 の試料の水蒸気吸着量は相対湿度に依らず Ca/Si より常に高いことが示された。また、水蒸気吸着量から算出した BET 比表面積においても、Ca/Si : 0.83 の C-S-H は Ca/Si : 1.4 に比べて高いことが示された。合成した C-S-H は結晶構造及び非晶質の構造も異なるのに加え、細孔の構造及び比表面積も異なることが確認された。

4) 試料の送付

収着実験に供するため、本研究で合成した C-A-S-H を北海道大学及び JAEA に提供した。

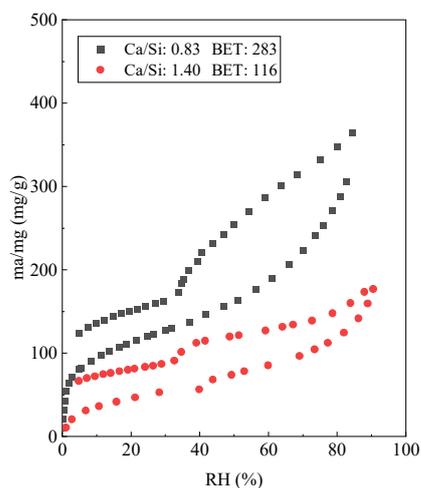


図 3.2-15 合成 C-S-H の水蒸気吸脱着曲線

(2) ^{29}Si 高含有 C-A-S-H の合成

① 実験概要

1) 使用材料及び調製手順

^{29}Si 高含有 C-A-S-H の合成には水酸化カルシウム（株式会社高純度化学研究所製、純度 99 %以上）、Si 源として SiO_2 （ISOFLEX 社製、純度 95 %以上）、Al 源として Al_2O_3 （Sigma-Aldrich 社製、粒径 50 nm 以下）及び超純水を用いた。Ca/Si : 1.0 とし、Al/Si : 0.15 とした。液固比 : 80 とし、それぞれの薬品を秤量した後、40 °C 環境下にて合成を行った。合成期間として 1 週間経過した後、吸引濾過し固相と液相を分離したのちに、D-Dry 乾燥した。分析条件については以下に記す。

2) 非晶質分析 (NMR 分光法)

非晶質構造の測定を目的として、NMR（日本電子株式会社、JNM-ECZ500R 11.7T）を用いて合成 C-A-S-H の非晶質分析を実施した。測定方法としてはシングルパルス法及び二重 NMR（本件では HETCOR/Heteronuclear correlation）を行った。シングルパルス法では測定対象核は ^{29}Si 及び ^{27}Al として、MAS 数 : 12000 Hz あるいは 15000 Hz、待ち時間 : 120 秒（積算回数 : 48 回）及び 2 秒（積算回数 200 回）とした。HETCOR では、測定対象核は ^1H 及び ^{29}Si とし、MAS 速度 : 12000 Hz、contact time : 1.5 ms、積算回数 : 384 回、待ち時間 : 5 秒として測定した。

② 実験結果

1) 非晶質分析 (NMR 分光法)

図 3.2-16 に ^{29}Si 高含有の SiO_2 を用いて調製

した合成 C-A-S-H の (A) ^{29}Si MAS NMR 及び (B) ^{27}Al MAS NMR スペクトルを示す。核種収着実験用の C-A-S-H でも確認された Q^1 及び Q^2 シグナルが確認された一方で、110 ppm にシグナルトップを有する Q^4 においても確認された。 Q^4 シグナルは原料である SiO_2 由来であると考えられるため、 ^{29}Si 高含有 C-A-S-H は単相ではなく SiO_2 も共存していることが推察される。また、 ^{27}Al MAS NMR 結果においては、核種収着用 C-A-S-H の Ca/Si : 0.83 の化学シフトと一致したことから、原料である Al_2O_3 は残存せず、全て C-A-S-H 中に全て固溶されたことが推察される。

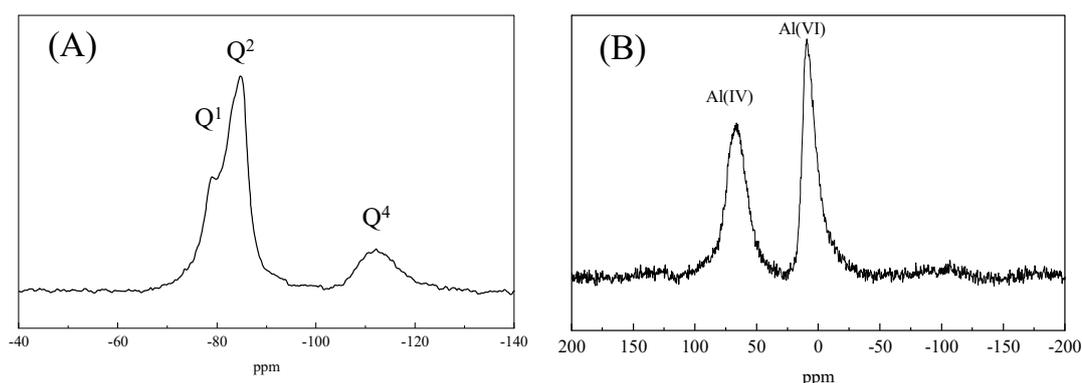


図 3.2-16 ^{29}Si 高含有の SiO_2 を用いて調製した合成 C-A-S-H の (A) ^{29}Si 及び (B) ^{27}Al MAS NMR スペクトル
(Ca/Si : 0.83、1.4、Al/Si = 0.15、合成温度 : 40 °C)

2) 三重 NMR のための測定パラメータの最適化

多重 NMR においては、各原子核間で磁化移動する事によって近距離に存在する原子核、例えば化学結合を有する場合や、化学吸着等が生じる際に原子核間のシグナルが強調される[15]。その一方で、距離が離れている原子核間のシグナルは減衰する。本研究において、 ^1H と ^{29}Si の化学的環境を測定することと、三重 NMR 測定の測定パラメータを取得する事を目的として、二重 NMR によって contact time をはじめとした測定パラメータの最適化を実施した。その結果、図 3.2-17 に示す二重 NMR スペクトルを得ることができた。これは、合成した C-A-S-H の微細構造において、 ^1H と ^{29}Si 間に化学結合や化学吸着が生じていることを示す。

^1H のスペクトルに着目すると、主に 2 つのシグナルが存在することが確認された。これらはそれぞれ、Si-OH に帰属する ^1H : 4.5 ppm、 H_2O に帰属する ^1H : 5.2 ppm と考えられる[16][17]。 ^{29}Si のスペクトルでは、前述の Q^1 : -78~-81 ppm (他の SiO_4^{4-} との共有架橋 1 つ) 及び Q^2 : -81~-86 ppm (他の SiO_4^{4-} との共有架橋 2 つ) が得られた。これら Q_1 及び Q_2 シグナルは特に H_2O に帰属する ^1H と共鳴していることから、D-Dry 乾燥のような強力な乾燥過程を経てもなお、C-A-S-H が多く自由水の形で水分子を保有していることがわかる。得られた ^1H - ^{29}Si に関するパラメータを基に ^1H - ^{29}Si - ^{27}Al 三重 NMR を実施したが、令和 3 年度は有意なスペクトルが得られなかった。このため、今後は ^{29}Si - ^{27}Al に関する測定パラメータの最適化を行うことで、二重 NMR 及び三重 NMR 双方から C-A-S-H の構造同定を行う予定である。

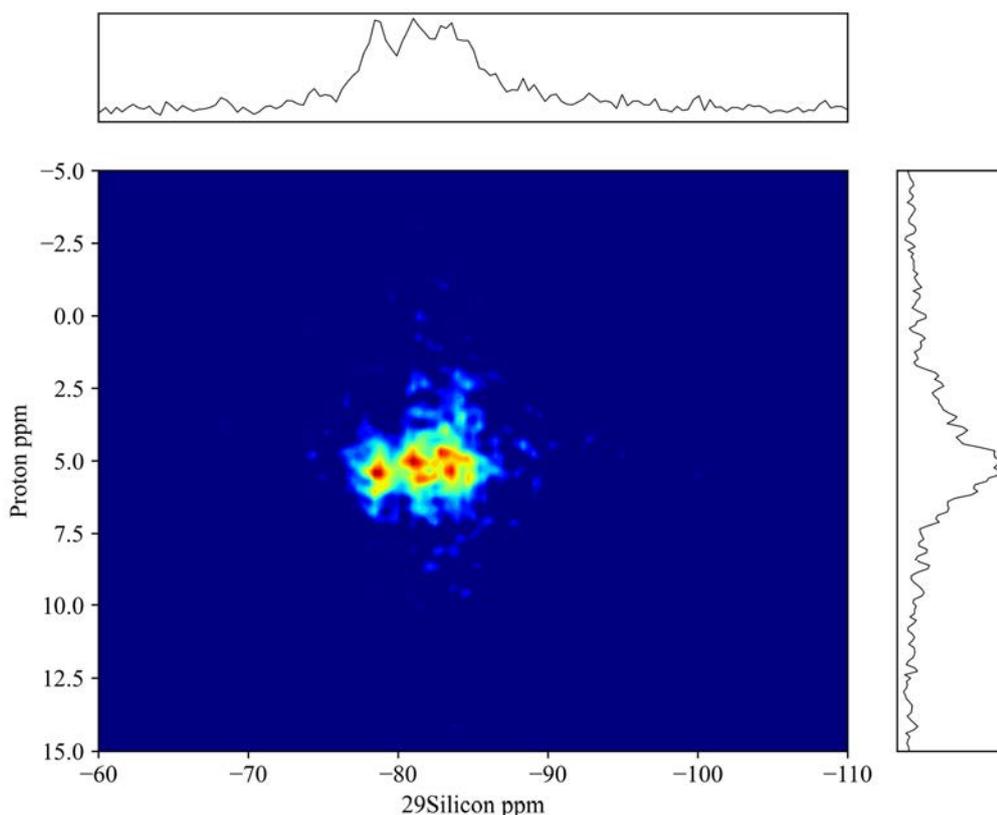


図 3.2-17 ^{29}Si 高含有 SiO_2 を用いて調製した合成 C-A-S-H の二重 NMR スペクトル

3.2.4 変質セメント系材料の物性評価

① 実験概要

使用材料は1969年に建設され、2021年に解体された北海道大学工学部のコンクリートを用いた。解体コンクリートから粗骨材部を取り除き、目視で確認できる粗粉砕の状態の試料を用意した。乳鉢を用いてコンクリート試料を90 μm以下まで粉砕した粉体（以下、「分離前試料」と略す。）、手動で粉砕によって骨材とセメントペースト部を分離した粉体（以下、「手粉砕試料」と略す。）、及び重液分離を用いて分離を行った試料（以下、「重液分離後試料」と略す。）を用意した。手粉砕試料は、ニッパーを用いて目視で確認できる粗骨材を取り除いた後、軽くメノウ乳鉢で粉砕し、90 μmの目開きの篩を通過した粉体である。重液分離試料はプロモホルム（密度 $2.5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ）及びエタノール（密度 $0.8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ）を用いて密度 $2.3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ の重液を調製し、重液50 mlに対して分離前試料を5 g投入し、超音波洗浄機内で10分程度試料を分散した後遠心分離機にて3500 rpmで5分間、試料の分離を行った。試料上部に浮遊したセメントペースト部を採取し、漏斗で固液分離を行った。用意した3種類の試料において結晶相分析としてXRD法、非晶質分析としてNMR分光法を行った。用いた機器及び条件は核種収着用合成C-S-Hと同条件とした。

② 実験結果

1) 結晶相分析（粉末XRD法）

分離前、手粉砕及び重液分離後の試料におけるXRDプロファイルを図3.2-18に示す。分離前試料においては、 $2\theta = 26^\circ$ 及び 28° に回折ピークが認められた。手粉砕試料は分離前試料に比べると回折強度は低いものの、骨材由来の鉱物の回折ピークが確認された。手粉砕試料はある程度骨材とセメントを分離できるものの、骨材が混在している状態であると考えられる。重液分離後の試料においては、微小な 26° の回折ピークが確認されるものの、分離前及び手粉砕試料よりも骨材量が減少し、セメントペースト部が分離されたことが示唆される。

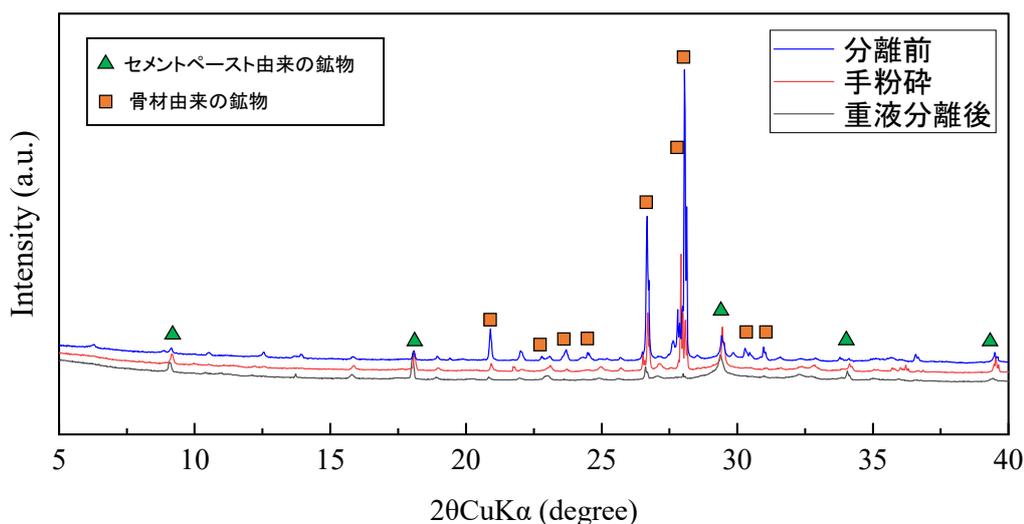


図 3.2-18 健全コンクリートの骨材及びセメントペースト部分の分離による結晶相の変化

2) 非晶質分析 (NMR分光法)

図 3.2-19(A)に分離前、手粉碎及び重液分離後試料の ^{29}Si MAS NMR スペクトルを示す。 ^{29}Si MAS NMR において、全ての試料においてセメント硬化体中の未反応鉱物を指す Q^0 のシグナルは確認されなかった。また、分離前は C-S-H の存在を示す Q^1 及び Q^2 に加えて健全コンクリートでは骨材を示す Q^3 及び Q^4 のシグナルが確認された。骨材の中でも Quartz がメインの結晶性の高い SiO_2 が骨材に多く含まれている場合、 $-100\sim-110$ ppm にシャープなシグナルが確認されるのに対して、主にガラス質の SiO_2 で骨材が構成される場合、 $-90\sim-120$ ppm にブロードなシグナルが確認されることが報告されている[18]。本研究で用いたコンクリート試料は $-90\sim-120$ ppm にかけてブロードなシグナルが確認されたことから主にガラス質な SiO_2 を有する骨材であることが推察される。手粉碎試料においては分離前よりは比率が減少しているものの Q^3 と Q^4 シグナルが確認されたことから、XRD の結果と同様に骨材が混在していることが NMR の結果において確認された。重液分離後試料においては、分離前及び手粉碎試料とは異なり、 Q^3 及び Q^4 シグナルは確認されず、 Q^1 及び Q^2 シグナルのみが確認された。よって、重液分離によって骨材とセメントペーストが分離されたことが ^{29}Si MAS NMR によっても確認された。

図 3.2-19(B)に分離前、手粉碎及び重液分離後試料の ^{27}Al MAS NMR スペクトルを示す。セメントペーストの ^{27}Al MAS NMR としては、 $80\sim50$ ppm 及び $40\sim30$ ppm にそれぞれ 4 配位及び 5 配位のシグナルがあり、これは C-A-S-H 中の Al を示す。 20 ppm \sim 0 ppm にアルミネート系水和物のシグナルが存在する。 13.08 ppm にエトリンガイト、 11.8 ppm にモノサルフェート (AFm) グループ、 5 ppm に Third aluminate hydrate のシグナルが存在していることが報告されている[19]。6 配位に対する 4、5 配位のシグナル強度の比率は分離前、手粉碎、重液分離後の順に低くなっていることが示された。また、分離前試料及び手粉碎試料と重液分離の 4 配位のシグナルトップが異なることが示された。前述より、分離前及び手粉碎試料においては、骨材が混在していることから、骨材中の Al 由来のシグナルであることが考えられる。重液分離を行うことで骨材中の Al が除外され、コンクリート中のセメントペーストの ^{27}Al MAS NMR を得ることが可能であることが示された。

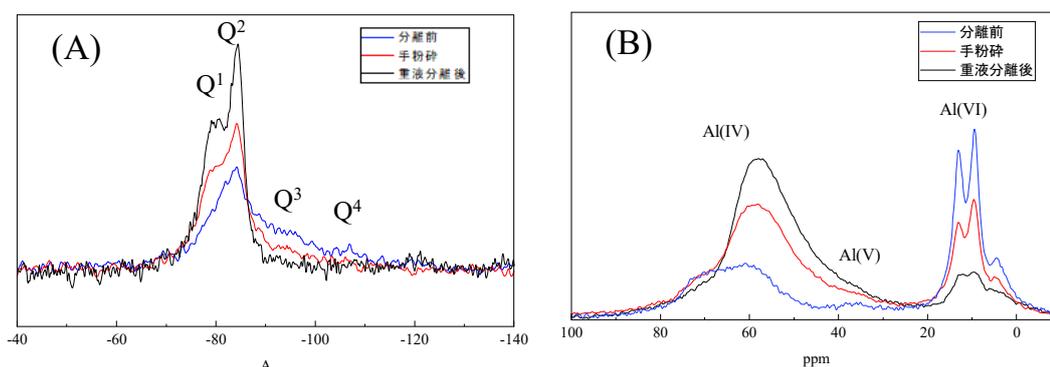


図 3.2-19 健全コンクリートの骨材及びセメントペースト部分の分離による非晶質の変化

(A) ^{29}Si MAS NMR スペクトル、(B) ^{27}Al MAS NMR スペクトル

3.2.5 令和3年度の実施内容及び成果のまとめ

直径3mm、高さ6mmの微小円柱供試体の溶出試験を行い、非破壊CT-XRD連成法で分析した結果、CT断面画像から変質と考えられる溶脱領域を可視化することが可能であることが推察された。溶脱領域では画素値が相対的に小さく、8bit画像を観察することでも認識可能であった。また、溶脱領域を関心領域としてXRD測定を実施した結果、主要なセメント水和物であるポルトランドイトが溶解したことが推察された。溶出試験期間が1か月とすることで、溶液と接する表層部の約0.5cmが変質したと考えられた。

溶出試験結果を模擬計算結果と比較するために、既存のSiTraMを改良して計算した結果、溶出試験結果から得られた溶脱領域では水酸化カルシウム量が減少すること、空隙率が約3割増加することがわかった。また、セメントペーストと骨材の界面（遷移帯）からの水酸化カルシウムの溶解も模擬されており、遷移帯はカルシウムの溶出を容易にすることが検証できた。遷移帯の物性値を直接実験から求めることは困難であるが、本研究で改良したモデルを用いた模擬計算によって、定量化が可能であると考えられた。

コンクリート用再生粗骨材Lに相当する低品質なコンクリート塊を用いて、3か月間溶出試験を実施した。その結果、溶出試験期間の増加とともに密度は低下しており、原骨材に付着したモルタル分の溶出によるものと推察された。また、溶出試験期間の増加に伴いコンクリート塊中への吸水量が増加したことで吸水率が大きくなったことが示された。

Ca/Siを1.4（健全）及び0.83（変質）、Al/Siを0.15に設定し、核種収着用のC-S-H及びC-A-S-Hを合成した。このうちC-A-S-Hを北海道大学及びJAEAに提供した。合成C-S-Hの微細構造の評価のために ^{29}Si を測定対象核として、また、合成C-A-S-Hの微細構造の評価のために ^{29}Si 及び ^{27}Al を測定対象核としてNMR測定を実施した。また、 ^{29}Si の含有率を高めた合成C-A-S-Hを用いて微細構造解析に着手した。令和3年度は二重NMR測定を実施し、三重NMRのための測定パラメータの最適化を実施した。

劣化コンクリート等から骨材成分とセメントペースト分をブロモホルムによって調製した重液を用いて分離し、セメントペーストに含有されるC-S-H及びC-A-S-Hを抽出した。また、抽出したC-S-Hの微細構造の評価のために、 ^{29}Si を測定対象核としてNMR測定を実施した。

3.3 変質コンクリート材料中の放射性核種の移行挙動モデルの構築及び放射性廃棄物物量の推計

3.3.1 令和2年度の成果概要[1]

放射性核種の移行挙動モデルとして、3次元空間における粒子追跡法を用いた、コンクリート内部での放射性核種の移行挙動モデルを構築した。濃度に依らず均一な相対誤差を持つよう、低濃度領域における統計誤差低減のための改良を行った。さらに、滞留水を經由したPuの移行に関して、損傷した燃料から水への溶出、水からコンクリートと相互作用するモデルを検討した。放射性廃棄物物量の推計に関して、保管廃棄物のモデルを検討した。

3.3.2 多核種移行モデルの構築・評価

(1) 固体廃棄物保管施設のコンクリート瓦礫等の核種インベントリの推計

固体廃棄物保管施設のコンクリート瓦礫等の放射線量等の情報から¹³⁷Csのインベントリを推計した。本検討で対象とする廃棄物は、コンテナに収納されたコンクリート瓦礫等の高線量個体廃棄物(>30 mSv・h⁻¹)である。コンクリート瓦礫等を収納したコンテナは、コンテナ外側からの線量測定の後、個体廃棄物保管施設内に收容されている。線量は、底面及び3つの側面において計測され、コンテナ毎に4つの線量測定結果がまとめられている。1Fで発生する廃棄物の放射性核種インベントリについては、サイト内での輸送モデルに基づいた統計的な推計の検討が進められており[20]、收容されている高線量瓦礫収納コンテナ全体の線量率の分布等が推定されている。本検討では、個々のコンテナの線量測定結果に基づき、コンテナ内のインベントリの分布を推計する手法を開発することを目的とした。

コンテナ内のインベントリ推計手法の大まかな概念について以下に述べる。個々のコンテナの内部の瓦礫及び放射線源の形状や配置は未知であるが、これらを仮定すれば、計算コードPHITS[21]を用いてコンテナ外側における線量測定を模擬できる。また、これらの詳細な情報からコンテナ内の放射性核種のインベントリが計算できる。すなわち、仮定されたコンテナ内部の情報を媒介して、線量率測定結果とインベントリの対応を生み出すことが可能である。モンテカルロ法によってコンテナ内部の情報を多様に設定し、多数の線量率-インベントリの対応をデータベース化することにより、特定のコンテナの線量率を与えられたときにインベントリを推計することが可能となる。線量率とインベントリは1対1の対応をする訳ではないため、特定の線量率に対してインベントリの分布が得られることになる。

モンテカルロ計算の負荷を低減するために、瓦礫の形状及び配置については簡易化した。図3.3-1及び図3.3-2、表3.3-1にコンテナ及び簡易化されたコンクリート瓦礫の幾何形状を示す。本検討では、コンクリート瓦礫を立方体としてモデル化し、1つの立方体の上にもう1つの立方体が載る2段構造とした。1段あたり、16個の瓦礫が並ぶものと想定した。検出器は円柱形(軸方向高さ10 cm、半径30 cm)とし、PHITSにおける統計誤差低減の目的で、大きく設定した。各々のコンクリート瓦礫(立方体)は表面のみ¹³⁷Csで汚染されていると仮定した。

線源強度と検出される線量の線形性、及び複数の線源からの線量については重ね合わせが可能であることを考慮して、192面(瓦礫32個×6面)のコンクリート表面に対して、単位強度の線源を設置し、線源ごとに別々に線量計算を行った。このようにして得られた単位強度の線源あたりの線量を、線源強度で重みづけしながら合成することで、多様な線源分布

に対する線量を得るためのモンテカルロ計算を実施した。

前述した通り、実際には線量の検出器は側面に3つ配置されていた。本検討のPHITS計算においては、図3.3-2のとおり計算効率向上のために検出器を4つ配置することとした。この幾何形状モデルにおいては、瓦礫及びコンテナ、検出器が、平面図の中心点に関して回転対称であり、またその中心点を通る複数の面に対して面对称である。この対称性を利用すると、複数の線源に対する計算が等価であるため、計算をさらに省略できる。具体的には、図3.3-2において赤線で示した垂直面(8面×2段)及びグレーでハッチングした水平面(3面×3段)の合計25面の計算で代表できる。これらの代表線源に関する線量計算結果を表3.3-2に示す。

これに基づき様々な線源強度に対するモンテカルロ計算を実施することで、コンテナ内の放射性核種インベントリの分布を得た。図3.3-3に¹³⁷Csのインベントリの側面の検出器の線量率に対する応答の例を示す。

コンテナ外部での線量測定結果をもとにコンテナ内のコンクリート瓦礫の放射性核種濃度を統計的に推定する手法を開発した。計算の効率化及び精度向上については今後の課題である。

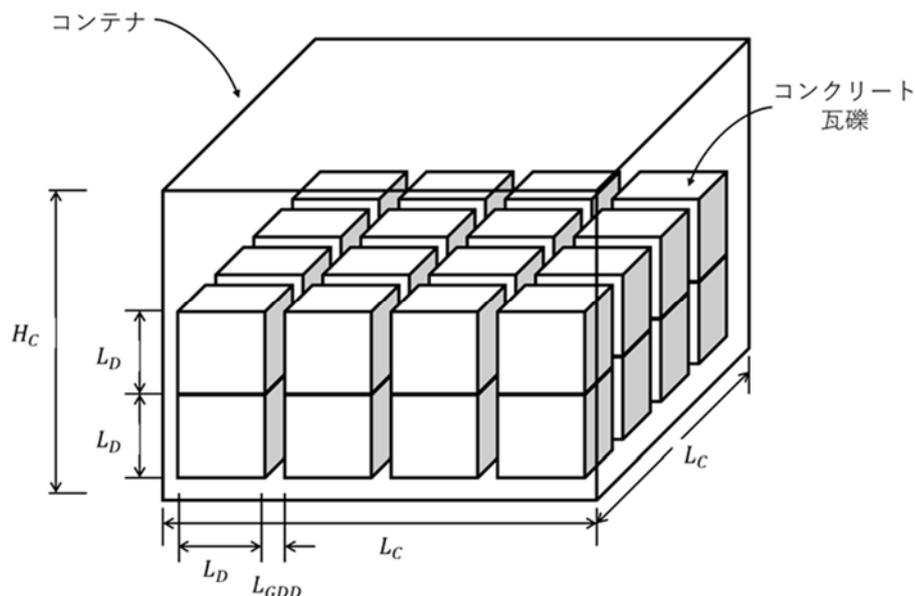


図 3.3-1 コンテナ及びコンクリート瓦礫の幾何形状のモデル化

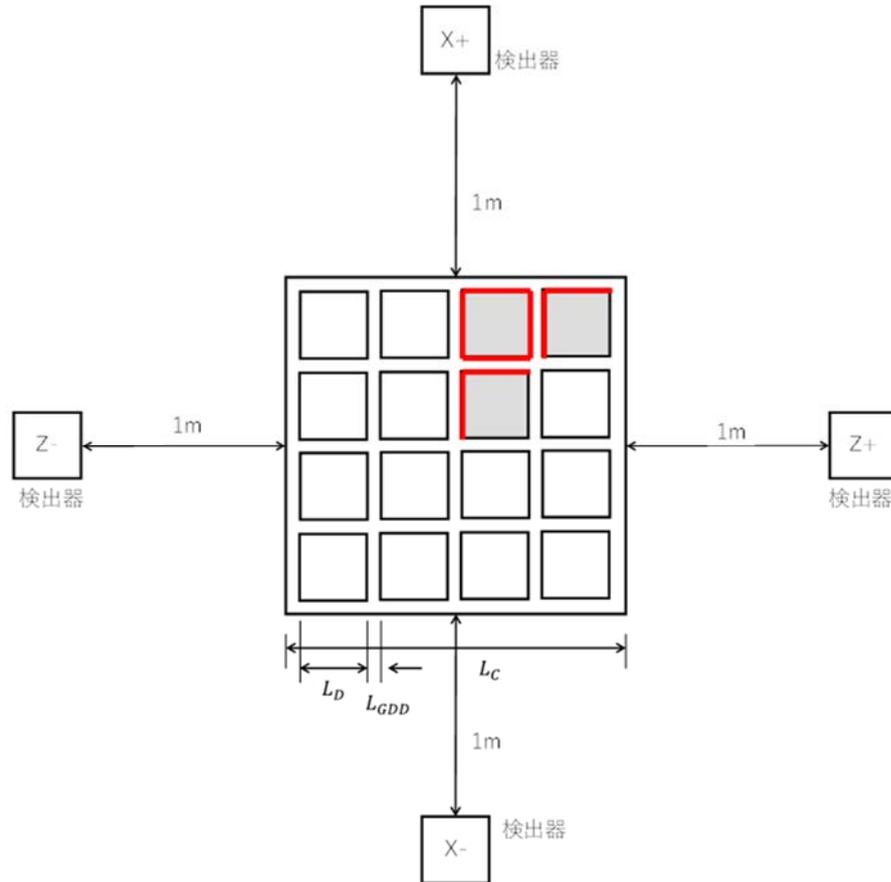


図 3.3-2 コンテナ、瓦礫、及び検出器の平面図

表 3.3-1 コンテナ、瓦礫、検出器の寸法

パラメータ	設定値
コンテナの幅、奥行き、 L_C	220 cm
コンテナの高さ、 H_C	160 cm
コンテナの厚さ、 T_C	0.5 cm
コンテナ表面から側面検出器までの距離	100 cm
コンテナ表面から底面検出器までの距離	50 cm
デブリの一辺の寸法、 L_D	45 cm
隣り合う2つのデブリの隙間、 L_{GDD}	10 cm

表 3.3-2 各単位強度の ¹³⁷Cs 線源からの線量への寄与

線源 番号	線源位置識別番号				線量[mSv/h/Bq]					相対統計誤差				
	面	x	z	y	z+	x-	x+	z-	底面	z+	x-	x+	z-	底面
1	x	2	1	1	2.40E-16	5.50E-17	3.09E-16	5.03E-17	1.94E-14	0.318	0.281	0.542	0.193	0.115
2	x	3	1	1	4.42E-16	7.73E-17	7.42E-15	7.96E-17	8.16E-15	0.381	0.922	0.153	0.320	0.160
3	x	4	1	1	1.20E-16	4.36E-17	1.76E-14	2.80E-17	7.64E-15	0.279	0.317	0.118	0.279	0.165
4	x	4	2	1	6.34E-15	1.25E-17	1.15E-14	2.93E-17	4.79E-15	0.182	0.307	0.152	0.281	0.216
5	z	1	1	1	4.31E-16	1.31E-15	3.43E-15	5.42E-17	2.37E-14	0.520	0.375	0.238	0.569	0.097
6	z	2	1	1	2.17E-16	5.14E-16	1.26E-14	1.17E-17	9.54E-15	0.429	0.564	0.132	0.331	0.156
7	z	2	2	1	2.79E-16	3.51E-17	1.13E-14	2.82E-17	1.00E-14	0.428	0.367	0.137	0.274	0.157
8	z	2	3	1	3.77E-15	2.41E-17	7.61E-15	1.08E-17	5.24E-15	0.224	0.302	0.162	0.280	0.208
9	x	2	1	2	4.11E-16	1.13E-16	5.67E-16	1.63E-16	3.43E-15	0.270	0.169	0.377	0.203	0.149
10	x	3	1	2	9.04E-16	4.83E-17	1.05E-14	1.29E-16	7.29E-16	0.185	0.224	0.133	0.214	0.325
11	x	4	1	2	2.76E-16	8.52E-17	1.84E-14	9.71E-17	1.04E-15	0.308	0.194	0.110	0.329	0.186
12	x	4	2	2	6.03E-15	8.17E-17	1.02E-14	6.83E-17	3.86E-16	0.185	0.221	0.157	0.265	0.299
13	z	1	1	2	3.63E-16	1.05E-15	5.70E-15	1.04E-16	6.29E-15	0.226	0.384	0.179	0.222	0.163
14	z	2	1	2	4.42E-16	5.09E-16	1.49E-14	9.39E-17	2.66E-15	0.232	0.484	0.121	0.252	0.243
15	z	2	2	2	4.05E-16	1.09E-16	1.29E-14	9.44E-17	7.33E-16	0.314	0.183	0.127	0.189	0.228
16	z	2	3	2	5.53E-15	1.20E-16	7.52E-15	4.17E-17	6.26E-16	0.189	0.209	0.161	0.202	0.232
17	y	1	1	0	4.21E-17	1.24E-17	3.22E-17	2.61E-17	4.21E-14	0.256	0.469	0.263	0.459	0.077
18	y	1	1	1	6.45E-17	1.14E-17	2.28E-16	1.60E-16	7.31E-16	0.468	0.368	0.446	0.956	0.438
19	y	1	1	2	1.26E-15	7.77E-16	2.58E-15	5.99E-16	9.65E-16	0.284	0.441	0.244	0.308	0.365
20	y	2	1	0	2.78E-17	7.40E-18	1.33E-15	3.98E-18	1.92E-14	0.436	0.357	0.259	0.325	0.121
21	y	2	1	1	4.79E-17	9.62E-18	5.42E-15	7.28E-18	3.06E-16	0.446	0.768	0.189	0.411	0.415
22	y	2	1	2	9.56E-16	4.40E-16	1.26E-14	5.91E-16	8.15E-16	0.319	0.513	0.139	0.383	0.453
23	y	2	2	0	9.06E-16	3.47E-18	8.75E-16	3.09E-18	1.27E-14	0.285	0.331	0.267	0.317	0.167
24	y	2	2	1	2.11E-15	7.09E-18	2.16E-15	2.75E-18	2.12E-16	0.306	0.621	0.271	0.368	0.475
25	y	2	2	2	5.79E-15	4.15E-16	8.43E-15	1.63E-16	4.32E-16	0.199	0.487	0.176	0.305	0.292

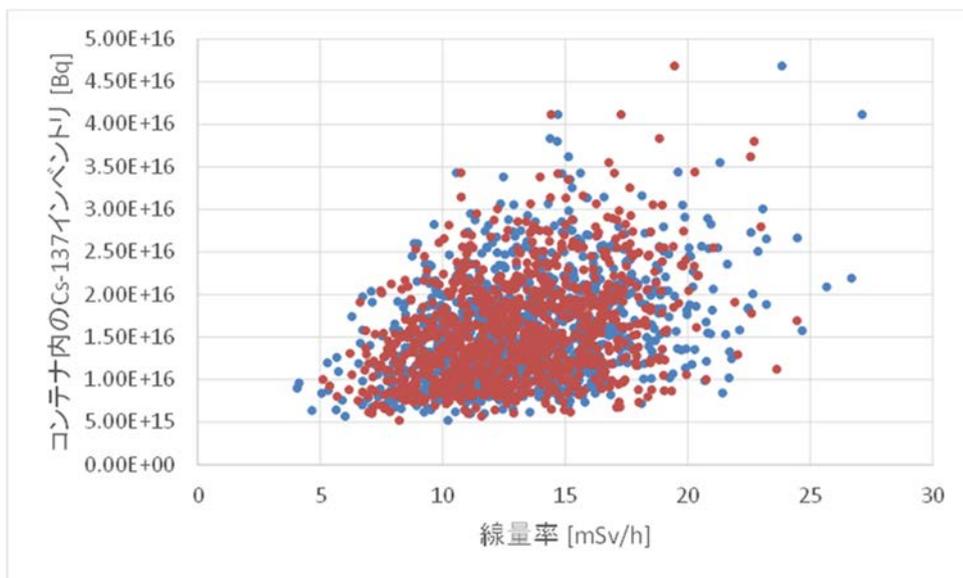


図 3.3-3 側面の検出器の線量率に対する ¹³⁷Cs インベントリの分布

(2) 滞留水中のコンクリート構造物中の放射能濃度

滞留水中に浸かったコンクリート構造物については、その性状や放射性核種の滞留水中濃度を与条件として、コンクリート内部の多核種の放射能濃度分布を推計した。核種移行計算における与条件及び放射能濃度分布推計の不確実性を定量化した。

滞留水中の ¹³⁷Cs 濃度は、各々の R/B、T/B 等で採取・測定されてきたが、時期と場所に依存して大きく異なることがわかっている。同一の建屋内の滞留水でも、場所に依存して ¹³⁷Cs

濃度が1桁程度変動し得ることがわかっている。一度、高い濃度に晒されてコンクリート内部が汚染されてしまうと、その後滞留水中の濃度が低くなったとしても、コンクリート内部の濃度は下がりにくい。そのため、滞留水中の濃度履歴の中で最も高かった濃度が、コンクリート中の核種濃度に大きく影響する。また、セメントの溶脱や変質など、事故後のコンクリートの性状については、大きな不確かさが残っている。

本検討では、コンクリート中の放射性核種移行モデルを用いて放射性核種の濃度分布を推計するにあたって、滞留水中の濃度及びコンクリート中の D_a の変動（吸着の分配係数の変動に依存して変動すると仮定した）を考慮した。10年後（2021年）におけるコンクリート中の ^{137}Cs 濃度分布が、分配係数にどのように依存するかを図 3.3-4 に示す。滞留水中の ^{137}Cs 濃度は、 $109 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ に固定した。分配係数 K_d が $1 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ の場合、コンクリート表面付近の ^{137}Cs 濃度が非常に高いが、拡散による移動が遅いため、表面からの距離とともにすぐに濃度が低下する。分配係数の値が小さくなるにつれて、 ^{137}Cs がより深くまで拡散するが、一方で表面付近の濃度は分配係数とともに低下することがわかる。図に示した例の中では、クリアランスレベル（ $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ）以下となる領域は、分配係数 $K_d = 1 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ の場合に最も多く、分配係数が小さくなるとともにクリアランスレベル以下の領域も小さくなる。分配係数 $K_d = 0.001 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ の場合には、1 m の深さまで全てクリアランスレベル以上の濃度となった。

汚染コンクリートを分離・除染などせずに処分する場合には、コンクリート中の平均濃度が廃棄物のレベル区分を決める上で重要となる。滞留水中の ^{137}Cs 濃度（ $10^9\sim 10^{12} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ）とコンクリート中の分配係数（ $0.001\sim 1 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ ）の変動を設定し、各々の条件で厚さ 1 m のコンクリート中の ^{137}Cs 平均濃度を算出した結果を、図 3.3-5 に示す。滞留水中の濃度は放射性崩壊による減衰で時間変化することとし、その他の要因による時間変化は考慮していない。コンクリート中の平均濃度は滞留水中濃度に対して比例するため、滞留水中の濃度に大きく影響を受ける。一方で、平均濃度は分配係数にも依存するがその影響は比較的小さい。仮に分配係数の変動幅を $0.001\sim 0.01 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ に絞り込めたととしても、滞留水中濃度の変動幅が $10^9\sim 10^{12} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ であれば、10年後（2021年）のコンクリート中の平均濃度の変動幅は $5\times 10^4\sim 1\times 10^8 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ となる。廃棄物レベル区分上 L3 となる可能性はゼロではないが、L2 の濃度にまたがる不確かさが残るために、L2 として扱うこととなる。

汚染コンクリートの表面を研ることにより、或いは、特定の深さにおいて切断することにより分離してからレベル区分する場合には、濃度分布曲線がレベルの基準値（濃度上限値やクリアランスレベル）をまたぐ位置の把握が重要となる。図 3.3-6 に ^{137}Cs 濃度がクリアランスレベルを下回る深さを示した。各々の実線・破線とその色の凡例については、図 3.3-5 と同じである。なお、 $K_d=0.001 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ の場合は、1 m の深さ全域にわたってクリアランスレベル以上の濃度であったため、（青線は）表示していない。この深さの見積もりに関しては、分配係数の変動の影響が非常に大きく、滞留水中濃度の変動の影響は比較的小さいことがわかった。

上記と同様の計算を、 ^{90}Sr についても実施した。その結果を図 3.3-7 及び図 3.3-8 に示す。 ^{90}Sr のクリアランスレベルは $1000 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ であるなど、 ^{137}Cs と基準値が異なるが、パラメータの変動に対する応答は、 ^{137}Cs と同様である。

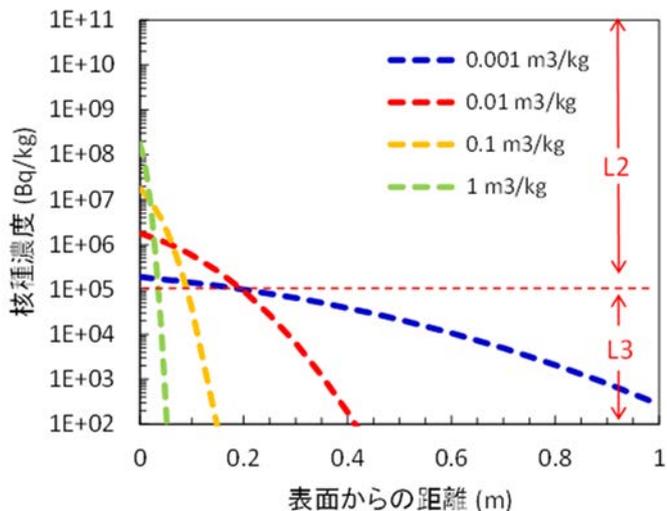


図 3.3-4 コンクリート中の ¹³⁷Cs 濃度分布の分配係数への依存性 (10 年後 (2021 年))

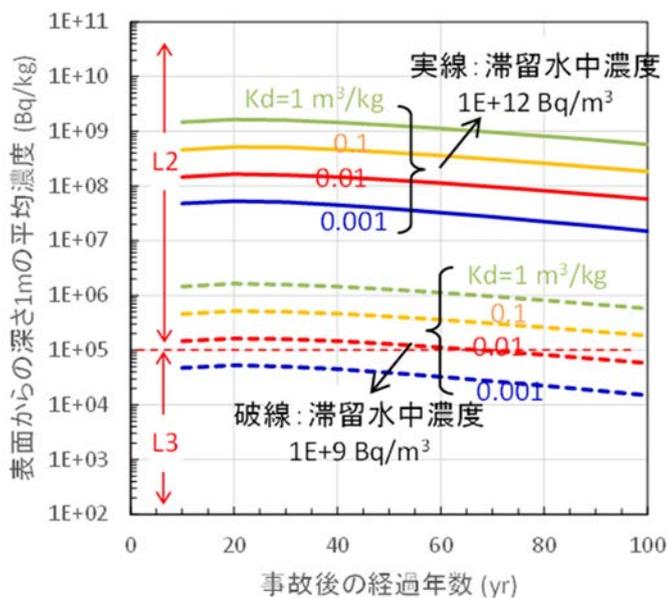


図 3.3-5 厚さ 1 m のコンクリート中の ¹³⁷Cs 平均濃度の分配係数及び滞留水中濃度への依存性

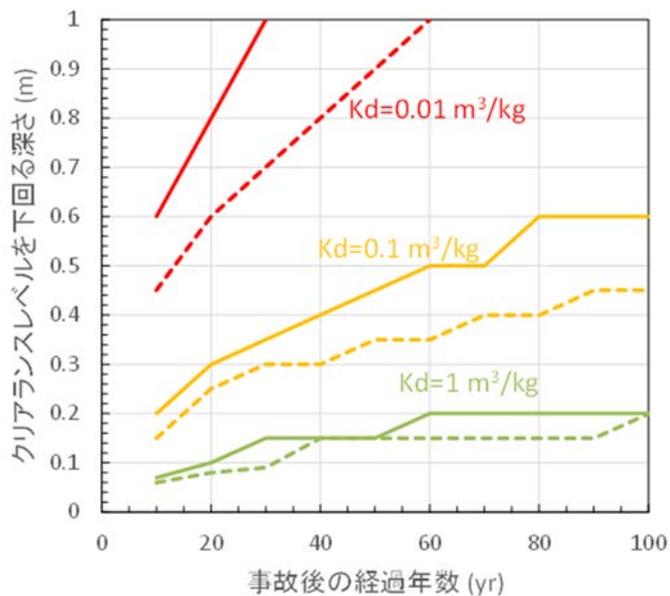


図 3.3-6 ¹³⁷Cs 濃度がクリアランスレベルを下回る深さ（表面からの距離）

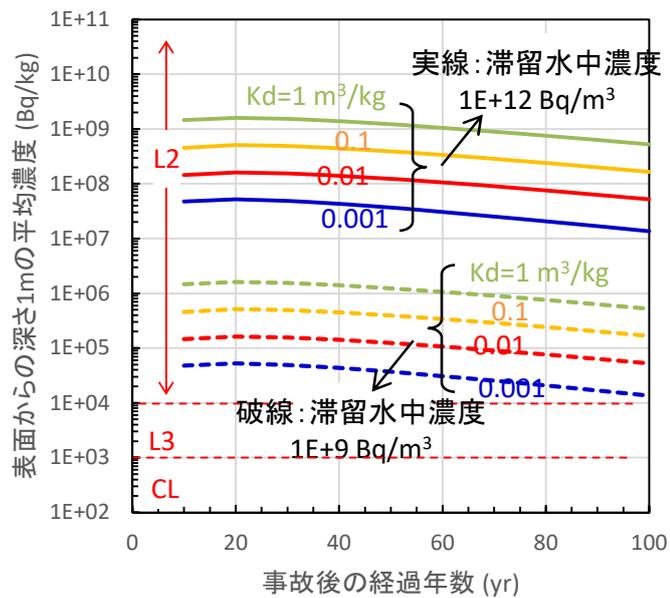


図 3.3-7 厚さ 1 m のコンクリート中の ⁹⁰Sr 平均濃度の分配係数及び滞留水中濃度への依存性

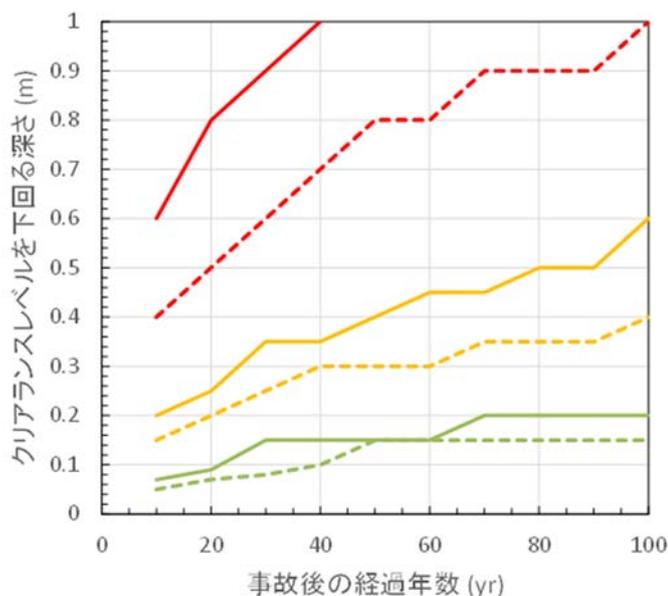


図 3.3-8 ⁹⁰Sr 濃度がクリアランスレベルを下回る深さ（表面からの距離）

3.3.3 移行モデルの検討

放射性廃棄物の処分を検討する上で、¹²⁹I と ¹⁴C はその挙動を考慮すべき重要な核種である。いずれも半減期の長い難測定核種であり、これまでに得られている分析データは限られる。このため、分析データを活用したこれら核種の挙動の推定が強く望まれる。廃炉・汚染水対策事業により得られた分析データが公開されており[22]、これを引用して ¹²⁹I の挙動を検討した。また、¹⁴C は放射化による生成を考慮すべき核種であり、ソースタームを検討した。

(1) ¹²⁹I の挙動

事故により拡散した放射性 I は、¹³¹I（半減期 8.1d）と ¹²⁹I（半減期 1.6×10^7 y）である。核種の組成を表 3.3-3 に示すように、半減期の短い ¹³¹I が減衰した後、放射性の ¹²⁹I は 81 % を占め、廃棄物管理の観点からは専ら ¹²⁹I を考慮することになる[23]。

表 3.3-3 燃料中の I の生成[23]

Time	¹²⁷ I	¹²⁹ I		¹³¹ I	
	Mass (g)	Mass (g)	Activity (Bq)	Mass (g)	Activity (Bq)
0	7.12×10^3	3.16×10^4	2.07×10^{11}	1.31×10^3	6.01×10^{18}
90 d	7.21×10^3	3.18×10^4	2.08×10^{11}	5.73×10^{-1}	2.63×10^{15}
1 y	7.26×10^3	3.18×10^4	2.08×10^{11}	2.68×10^{-11}	1.23×10^5
2 y	7.27×10^3	3.18×10^4	2.08×10^{11}	5.24×10^{-25}	2.41×10^{-9}
5 y	7.27×10^3	3.18×10^4	2.08×10^{11}	-	-
10 y	7.27×10^3	3.18×10^4	2.08×10^{11}	-	-

1 から 4 号機の汚染水は、集中廃棄物処理施設へ送られた後、除染の処理がなされる。同施設の集中廃棄物処理建屋（以下、「PM/B」と略す。）と高温焼却炉建屋（以下、「HTI/B」と略す。）の汚染水は事故後初期から継続して分析データが得られている。表 3.3-4 に引用したデータを、また、プロットを図 3.3-9 にそれぞれ示す[22]。2011 年には 10^{-1} から 10^0 のオーダーで検出され、翌 2012 年には 1 桁ほど下がり、2013 年から以降はほとんど不検出となる。これは、事故に伴い I が水に移行したこと、汚染水処理が進展するに伴い初期の滞留水が徐々に希釈されたこと、また、その後の継続した I の水への溶出がそれほど大きくないことを示す。上流にあたる R/B 及び T/B 汚染水の分析データを表 3.3-5 に示す。試料の採取が難しいことから、採取の時期や場所がまちまちである。1 から 3 号機原子炉格納容器（以下、「PCV」と略す。）の水が 2013 年以後に採取されているが、いずれも不検出である。一方で、2017 年には 3 号機 R/B と 2 号機 R/B の水に認められ、およそ $0.1 \text{ Bq} \cdot \text{cm}^{-3}$ と定量限度に近い濃度で検出された。これは、初期の滞留水が残留し、一部が試料として採取された可能性、あるいは、その当時に比較的高い濃度で汚染水へ移行した可能性を示唆する。総じて、事故発生に伴うスパイク的な一時の移行と、その後の継続した移行に支配されるであろうことは他の核種と同様であり、後者については、長期にわたり滞留していた水の混入する可能性も考慮すべきである。

汚染水の発生量は種々の対策を講じることによって、表 3.3-6 に示すように年々減じられてきている[24]。原子炉内に残留する成分からの継続した移行を考える時、濃度に関する因子であり考慮すべきである。

事故時の一時移行とその後の継続的な移行のモデルに基づいて、核種の物質収支が検討されている。表 3.3-7 に Shibata ら[25]が 2014 年の時点での収支を試算した結果を引用して示す。I は Cs とともに数%が環境へ放出され、その後汚染水へと大半が移行し、原子炉内に残留する割合はごく少ないという結果である。初期に汚染水へ移行した割合は Cs に比べても大きいという結果であるが、これには、原子炉運転中の燃料内における核種の再分布が寄与しているものと考えられる。運転中に燃料の酸素ポテンシャルは低い状態にあり、CsI が周辺領域にリロケーションする[26]。過熱によって燃料被覆管が損傷した場合に、外周部に位置する I は優先的に空气中へ移行、また、冷却のために供給された水と接触した場合に水へと移行したものと考えられ、後者の寄与が支配的であったとみられる。

^{129}I のセメントへの収着に関しては TRU 廃棄物の処分に係わる既報があり[27]、分配係数がまとめられている。16 の文献に 287 件のデータが含まれ、I の分配係数は、 $0-1.2 \times 10^3 \text{ cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$ の範囲にあり、最頻値は $100 \text{ cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$ の桁に存在する。骨材に比してセメントへの移行が大きい。分配係数を増大する因子には、硫酸イオンを含む化合物とのイオン交換が考えられ、陰イオンの I 化学種が重要とみられる。I はいくつもの化学系を取りうるが、代表的な陰イオン種には、ヨウ化物 I^- とヨウ素酸イオン IO_3^- があり、これらを考慮すべきであろう。

損傷した燃料を冷却するために淡水とともに海水が投入されたことから、初期の汚染水には海水に由来する I が含まれており、燃料からの I はこれと同位体交換した可能性が考えられる。海水中には、I は I^- と IO_3^- が主要な成分であり、その割合は一定ではない[28]。I のコンクリートへの移行を定量的に評価するためには、化学種を考慮した検討が必要となる。

表 3.3-4 集中廃棄物処理施設汚染水の ^{129}I の分析値[22]

試料名称	採取日	資料番号	濃度 ($\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-3}$)
PM/B	2011/8/30	H23-237	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^{-1}$
	2011/11/1	-	$(2.5 \pm 0.02) \times 10^{-1}$
	2012/2/7	H23-765	$(9.8 \pm 0.6) \times 10^{-2}$
	2012/5/8	RW10-G, -S H24-095	$(9.0 \pm 0.2) \times 10^{-2}$
	2012/11/20	RW1-G, -SH24-609	$(7.4 \pm 0.1) \times 10^{-2}$
	2013/7/9	LI-RW2-1	$< 9 \times 10^{-2}$
	2014/3/11	LI-RW2-2	$< 8 \times 10^{-2}$
	2014/11/25	LI-RW4-1	$< 9 \times 10^{-2}$
	2015/3/9	LI-RW4-2	$< 9 \times 10^{-2}$
	2015/9/6	LI-RW6-1	$< 5 \times 10^{-2}$
HTI/B	2011/11/8	HTI5-G, -SH23-492	1.2 ± 0.1
	2012/5/29	HTI4-G, -SH24-145	$(8.4 \pm 0.2) \times 10^{-2}$
	2012/11/27	HTI10-G, -SCPF-1H24-612	$(2.0 \pm 0.1) \times 10^{-1}$
	2013/8/13	LI-HTI2-1	$< 8 \times 10^{-2}$
	2014/2/11	LI-HTI2-2	$< 9 \times 10^{-2}$
	2014/11/25	LI-HTI4-1	$< 1 \times 10^{-1}$
	2015/3/3	LI-HTI4-2	$(2.6 \pm 0.6) \times 10^{-2}$
	2015/9/8	LI-HTI6-2	$< 9 \times 10^{-2}$
	2017/7/14	LI-HTI8-1	$< 5 \times 10^{-2}$
	2017/12/5	LI-HTI7-1	$< 4 \times 10^{-2}$
	2018/2/20	LI-HTI8-2	$< 5 \times 10^{-2}$
	2018/10/9	LI-HTI8-3	$< 5 \times 10^{-2}$
2019/12/3	LI-SAT1-1	$< 3 \times 10^{-2}$	

表 3.3-5 R/B 及び T/B 汚染水の ^{129}I の分析値[22]

試料名称	採取日	試料番号	濃度 ($\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-3}$)	備考
1号機 PCV	2016/12/7	LI-1PCV-1	$<9\times 10^{-2}$	ガス管理システム設備 1号機凝縮水
2号機 PCV	2013/8/7	LI-2RB5-1	$<8\times 10^{-2}$	
	2013/8/7	LI-2RB5-2	$<9\times 10^{-2}$	
3号機 PCV	2015/10/22	LI-3RB5-1	$<8\times 10^{-2}$	水面近傍
	2015/10/22	LI-3RB5-2	$<8\times 10^{-2}$	グレーチング近傍
1号機 R/B	2016/12/8	LI-1RB-1	$<9\times 10^{-2}$	
	2017/3/7	LI-1RB2-1	$<5\times 10^{-2}$	HTI/B 採水口
2号機 R/B	2017/2/23	LI-2RB2-1	$<5\times 10^{-2}$	HTI/B 採水口
	2017/5/16	LI-2RB3-1	$<5\times 10^{-2}$	HTI/B 採水口
	2017/12/20	LI-2RB6-1	$<4\times 10^{-2}$	
3号機 R/B	2017/2/7	LI-3RB2-1	$(1.8\pm 0.1)\times 10^{-1}$	HTI/B 採水口
	2017/4/20	LI-3RB3-1	$(1.7\pm 0.1)\times 10^{-1}$	HTI/B 採水口
	2017/12/20	LI-3RB6-1	$(7.4\pm 1.2)\times 10^{-1}$	
1号機 T/B	2015/9/30	LI-1TB5-3	$<9\times 10^{-2}$	OP1900 上部
	2015/9/30	LI-1TB5-4	$<8\times 10^{-2}$	OP1900 上部
	2015/9/30	LI-1TB5-5	$<8\times 10^{-2}$	OP1900 上部
	2015/9/30	LI-1TB5-6	$<8\times 10^{-2}$	OP1900 上部
	2015/9/30	LI-1TB5-7	$<8\times 10^{-2}$	OP1900 上部 (上澄液)
	2015/9/30	LI-1TB5-8	$<8\times 10^{-2}$	OP1900 上部 (上澄液)
	2017/7/10	LI-1TB6-1	$<4\times 10^{-2}$	
2号機 T/B	2015/9/25	LI-2TB7-1	$<9\times 10^{-2}$	
	2017/11/13	LI-2TB9-1	$(9.2\pm 1.3)\times 10^{-2}$	
3号機 T/B	2015/10/15	LI-3TB7-1	$<1\times 10^{-1}$	

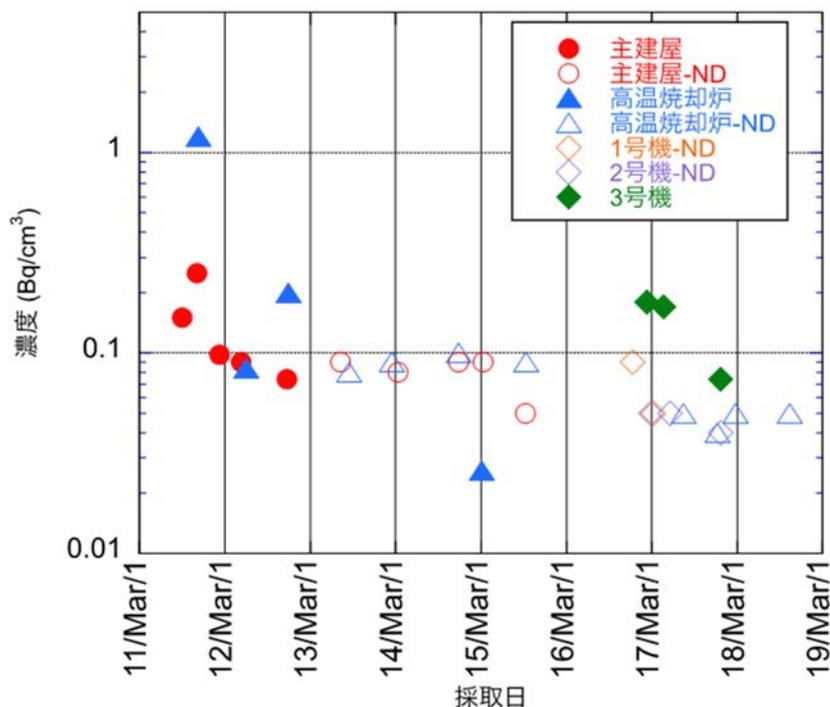


図 3.3-9 汚染水に含まれる ¹²⁹I 濃度の推移[22]
ND は不検出の場合の限度濃度を示す。

表 3.3-6 汚染水発生量の推移[24]

年度	汚染水発生量 (m³・d ⁻¹)	建屋への地下水・雨水等流入量 (m³・d ⁻¹)	差分 (m³・d ⁻¹)
2014	470	350	80
2015	490	270	220
2016	400	200	200
2017	220	140	80
2018	170	100	70
2019	180	120	60
2020	140	90	50

表 3.3-7 汚染の分析データに基づいて試算された核種の物質収支[25]

核種	環境へ放出[29]	汚染水 (水処理済み)	汚染水 (滞留、未処理)	炉内残留
⁹⁰ Sr	3 × 10 ⁻²	24	0.3	75
¹⁰⁶ Ru	9 × 10 ⁻⁸	1 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻⁵	>99
¹²⁵ Sb	1.6	0.2	3 × 10 ⁻³	98
¹²⁹ I	3	94	2	1
¹³⁷ Cs	5	35	0.3	60
²³⁸ Pu	4 × 10 ⁻⁴	5 × 10 ⁻⁵	3 × 10 ⁻⁶	>99

(2) ^{14}C のソースターム

^{14}C の起源には、材料に含まれる不純物の放射化と核分裂（三体核分裂）がある。これらの反応を表 3.3-8 に示す[30]。 ^{14}C の放射化による収率を定量的に考える上では、材料及び燃料の不純物含有量が重要となり、BWR の報告値[31]を引用すると、 ^{14}C の生成に対する寄与は表 3.3-9 に示すように $\text{N} > \text{C} > \text{O}$ の順序となり、N が支配的である。

一方、核分裂による ^{14}C の生成について、西原らによる計算値[23]を引用して表 3.3-10 に示す。ここで、構造材料中の不純物は 0 のみを考慮しており、表 3.3-9 に基づいて C と N の寄与を上述の割合を持って補正すると表 3.3-11 のようになり、構造材料に支配されることがわかる。

瓦礫類の分析において ^{14}C が検出される。基準とする核種を定め、放射性核種との濃度比を求め、これをソースターム中の放射能比で規格化する（以下、「輸送比」と略す。）と、化学的な挙動を考察する上での参考となる。燃料に含まれる成分は ^{137}Cs を基準として考察できることが経験的にわかってきている[32]。 ^{14}C が瓦礫に到達するには、空気を媒質とする経路を考えることとなるが、 ^{137}Cs と必ずしも関連しない場合がある。また、他にそのような核種には ^3H が挙げられる。

表 3.3-8 ^{14}C を生成する核反応[30]

標的核	天然存在比	反応	断面積 (barn)
^{13}C	1.07 %	$^{13}\text{C} (\text{n}, \gamma) ^{14}\text{C}$	1.48
^{14}N	99.636 %	$^{14}\text{N} (\text{n}, \text{p}) ^{14}\text{C}$	0.183
^{17}O	0.038 %	$^{17}\text{O} (\text{n}, \alpha) ^{14}\text{C}$	0.001
^{235}U	-	$^{235}\text{U} (\text{n}, \text{f}) ^{14}\text{C}$	-

表 3.3-9 ^{14}C の生成に関する材料不純物の寄与[31]

元素	燃料		構造材料 (Zry-2)	
	濃度 (ppm)	^{14}C 生成への寄与	濃度 (g·MT ⁻¹ metal)	^{14}C 生成への寄与
C	89.4	28	120	5,300
N	25.0	89	80	40,000
O	134,454.0	1	950	1
Zr	-	-	979,630	-

表 3.3-10 燃料中の ^{14}C の生成に関する計算値[23]

分類	反応	1号機	2号機	3号機	合計	
燃料	核分裂	2.34×10^8	2.85×10^8	2.70×10^8	7.89×10^8	(0.12 %)
構造材料	放射化	2.02×10^{11}	2.45×10^{11}	2.30×10^{11}	6.76×10^{11}	(99.88 %)

表 3.3-11 ^{14}C の生成に関する燃料と構造材料の寄与

分類	0 による生成量		C と N の寄与を加えた値	
構造材料	6.76×10^{11}	(99.88 %)	3.06×10^{16}	(100.00 %)
燃料	7.89×10^8	(0.12 %)	9.23×10^{10}	(0.0003 %)

1号機から4号機の内部、また、その周辺で採取された瓦礫の分析データ[22]から求めた³Hと¹⁴Cの輸送比を図3.3-10に示す。ここで、輸送比の算出に用いた燃料の組成[23]には¹⁴Cに寄与するNが考慮されていないため、¹⁴Cの絶対値はより小さな値となるべきである。³Hと¹⁴Cの値は2桁ほどの幅をもって相関する様子が見て取れる。一方で、輸送比は 10^{-3} から 10^3 まで6桁ほどもばらついており、このことは³Hと¹⁴Cが¹³⁷Csとともに移行しない場合があることを示す。³Hの値は1を超える場合があり、Csと同等以上の移行しやすさを示す場合がある。燃料の外周部に存在した³Hが、¹⁴Cとともに優先的に放出されたことが示唆される。

以上のように、瓦礫を汚染する¹⁴Cのソースタームとしては、燃料の被覆管の寄与が大きく、移行の挙動を定量的に議論するには被覆管に含まれる不純物をより正確に取り扱う必要がある。

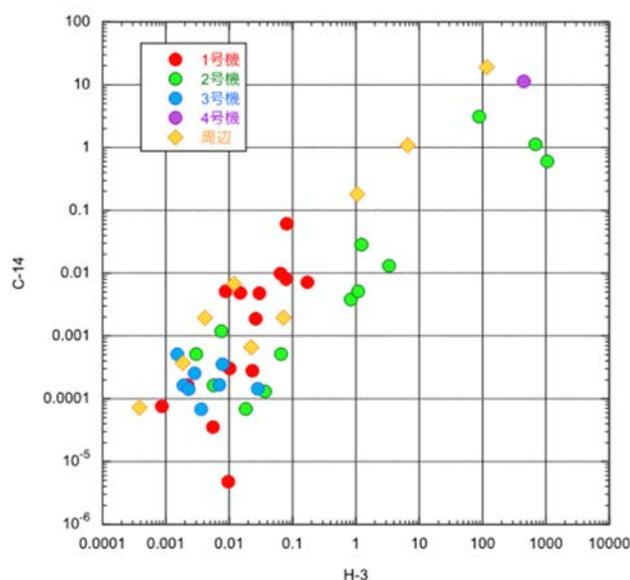


図 3.3-10 瓦礫（コンクリート）への¹⁴Cと³Hの輸送比の相関

3.3.4 令和3年度の実施内容及び成果のまとめ

固体廃棄物保管施設に保管されるコンクリート瓦礫等のコンテナ外部での線量測定結果をもとに、コンテナ内のコンクリート瓦礫の放射性核種濃度を統計的に推定する手法を開発した。計算の効率化及び精度向上については今後の課題である。滞留水中に浸かったコンクリート構造物については、その性状や放射性核種の滞留水中濃度を与条件として、コンクリート内部の多核種の放射能濃度分布を推計した。核種移行計算における与条件及び放射能濃度分布推計の不確実性を定量化した。

¹²⁹Iの汚染水への移行は、事故発生に伴うスパイク的な一時の移行と、その後の継続した移行に支配されるとみられ、これはCsなどの核種と同様である。Iのコンクリートへの移行を定量的に評価するためには、陰イオン化学種を考慮した検討が必要である。¹⁴Cのソースタームとしては、燃料の被覆管の寄与が大きく、移行の挙動を定量的に議論するには被覆管に含まれる不純物、特にNの量の把握が重要となる。

3.4 建屋解体から発生するコンクリート廃棄物の分別基準を含む管理シナリオの分析

3.4.1 令和2年度の成果概要[1]

令和2年度には、公開されている原子力発電所の物量データ、1F構内の土壌や地下水などのモニタリングデータ、建屋構造物の解体工法・解体工程に関する情報を収集、整理し、データベース化に着手した。また、英国 Nuclear Decommissioning Authority (NDA) が開発した SED 指標のうちの RHP の考え方を参考に、1Fにおいて対象となる放射性物質（廃棄物）の放射能インベントリ、物質の形態（スラッジ、粉状、固体状等）、放射性物質の管理状態などの指標を整理し、潜在的放射線リスクを算出する手法の構築に着手した。さらに、中期ロードマップ等を参照し、廃棄物管理シナリオを設定する上で必要な情報として、廃炉の工程、汚染水と接触したコンクリート等を整理、検討した。これらをもとに、まず、基本となる解体シナリオ（即時解体、安全貯蔵－解体撤去、長期安全貯蔵－解体撤去）を作成し、廃棄物管理シナリオを構築する上で設定する必要がある構成要素に係る留意事項を抽出した。

3.4.2 廃棄物管理に係るデータ整備

(1) データ収集とデータベース構築

1F 廃炉工程における構造物の解体・撤去で発生する放射性廃棄物の発生・保管・貯蔵・処分を俯瞰し、最適な廃棄物管理シナリオを構築するためには、コンクリート材料の経時変化、解体物の汚染特性、発生する物量、領域ごとの放射能など、様々な情報を収集整理し、それらを統合した分析が必要になる。令和2年度は、廃炉工程で発生する廃棄物の物量の調査、コンクリート構造物の解体作業で適用される工法に係る情報を中心に調査し、それらをデータベースとして整理した。令和3年度は、物量及び工法に係る調査を継続するとともに、これまでに収集整理したデータを分析し、廃棄物管理シナリオの検討に適用する情報を抽出し、それらをデータベースに収納した。なお、機器・構造物の汚染は運転中に燃料内に蓄積された放射能（放射能インベントリ）が重要な因子となることから、これらのデータを整理して収納し必要に応じて検索できるようデータベースを整備した。

(2) 廃棄物発生に係る領域区分

1F に存在する構造物（コンクリート構造物）を解体・撤去する際に発生する放射性廃棄物の特性は構造物が存在する環境条件により異なる。また、解体・撤去の作業では、構造物表面の除染、構造物の切断・撤去などが必要であり、構造物表面の除染で発生する粉状、切断・撤去で発生する塊状（固体状）、ブロック状の解体物など、適用する工法により発生する廃棄物の形態が異なるため、その特性に応じて様々な廃棄物管理方法が適用される。そこで、1F 構造物を領域に区分して、領域ごとに廃炉工程で発生する廃棄物の特性を整理した。本検討で対象にする構造物は1号機、2号機、3号機に限定するが、各々に対して、R/B、T/B、廃棄物処理建屋に区分し、また、これらの領域において、浸水した領域（地下）と浸水がない領域に区分した。図3.4-1に領域区分の考え方を示す。なお、R/Bには格納容器が存在するが、その内部に存在する熱遮蔽及びペDESTAL等構造物、その外側の生体遮蔽は、事故時に燃料から放出された核分裂生成物による汚染のレベルが高い可能性があるため、これらの大型構造物は建屋構造物とは別にして、構造物の解体・撤去及び廃棄物管理の工程（シナリオ）を検討することとした。

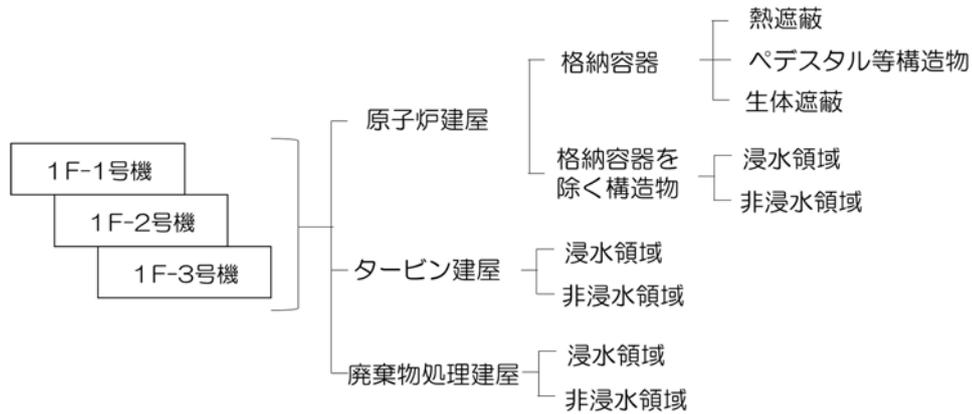


図 3.4-1 領域区分の考え方

(3) 物量の整理

令和 2 年度調査したコンクリート構造物の物量を整理した。物量整理の基本は、1F-3 号機工事の報告書[33]と NUREG/CR-0672[34]に記載されている費用算定のための熱出力比に基づく物量の換算係数である。これらを整理すると、表 3.4-1 に示すような物量を推定することができる。また、コンクリート中の骨材の割合は、NUREG/CR-3474[35]では 73.4±9.6 % とされている。

ここで、R/B、T/B、廃棄物処理建屋のいずれも地下部は事故時及びそれ以降に浸水の履歴があると考えられ、汚染水から放射性核種が構造物に浸透した可能性があることから、物量を建屋構造物の地下部と地上部に区分した。なお、地上部は事故時に揮発性の放射性核種が表面に付着したものであり表面汚染のみと推定した。評価対象となる構造物はその汚染形態により解体・撤去する工法が異なるため、発生する放射性廃棄物の物理的特性が異なり、廃棄物管理の方法についての検討が必要になる。構造物の除染・解体・撤去で適用すると考えられる工法には、除染作業ではグラインダー、プレーナー、ショットブラストなど、解体・撤去作業ではワイヤーソー、水ジェット、コアリング・ソーイング、ブレーカー、制御爆破などがあり、これらは令和 2 年度の調査において特性を評価し、データベースに情報を収納している。

表 3.4-1 物量の推定 (t)^a

構造物	1号機	2号機	3号機	合計
R/B				
建屋構造物 (コンクリート)	42,837 (38,913)	62,330 (56,621)	62,330 (56,621)	167,497 (152,156)
(構造鋼)	(602)	(876)	(876)	(2,355)
(鉄筋)	(3,321)	(4,833)	(4,833)	(12,986)
熱遮へい体 ^b	551	737	737	2,024
格納容器(構造物) ^c				
(コンクリート)	2,462 (1,930)	3,292 (2,580)	3,292 (2,580)	9,045 (7,091)
(構造鋼)	(419)	(560)	(560)	(1,540)
(鉄筋)	(113)	(151)	(151)	(416)
生体遮へい体	22,279	29,782	29,782	81,842
T/B				
(コンクリート)	44,730 (42,570)	109,480 (104,194)	109,480 (104,194)	263,690 (250,958)
(構造鋼)	(284)	(719)	(719)	(1,731)
(鉄筋)	(1,866)	(4,568)	(4,568)	(11,001)
廃棄物処理建屋				
(コンクリート)	10,839 (10,763)	14,490 (14,388)	14,490 (14,388)	39,819 (39,539)
(構造鋼)	(55)	(74)	(74)	(203)
(鉄筋)	(21)	(28)	(28)	(77)
合計	123,698	220,110	220,110	563,918

()は内数

a : コンクリートの比重を $2.3 \text{ t}\cdot\text{m}^{-3}$ として計算。人工岩の重量は含めていない。

b, c : NUREG/CR-0672[34]から換算。

(4) データベースの構築

本検討は、コンクリート構造物を解体・撤去して発生する放射性廃棄物の管理工程の最適化に係る検討を目的としており、通常炉の廃止措置工事の経験、これまでの技術開発の成果、コンクリート特性などの基礎データなど多くの情報が必要になる。そこで、これらに係る情報を収集してデータベースの構築を進めた。収集したデータを分類すると、除染・解体工法、原子力発電所の物量、放射能インベントリ、1F 廃棄物管理の現状、などに分類できる。データの検索はキーワードを基本にするため、これらの分類に対して主要なキーワードを整理した(図 3.4-2)。

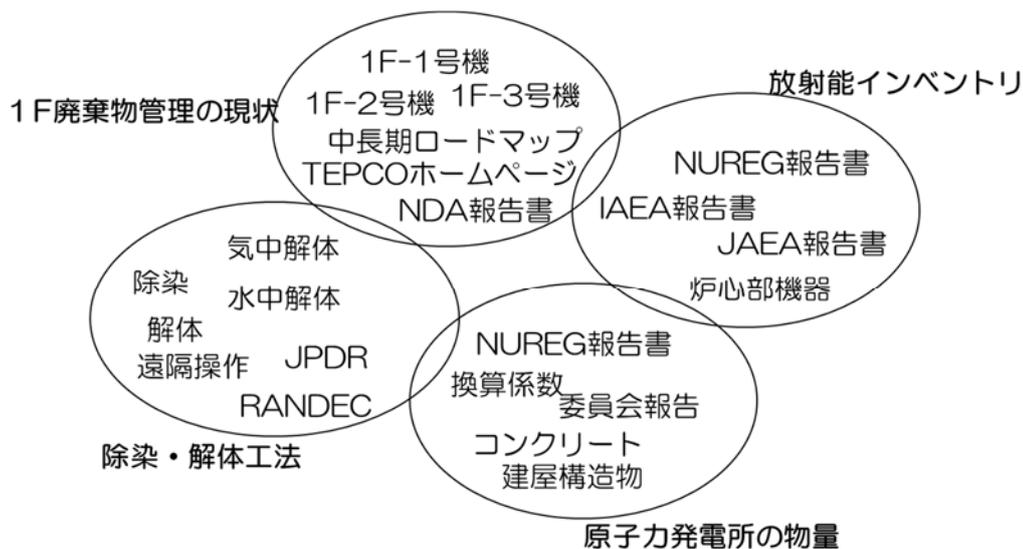


図 3.4-2 データ項目の分類と主要キーワード

3.4.3 評価手法の検討

SED

SED 指標は評価の対象物が有する特性（RHP：放射能と物理特性に起因）と対象物の保管容器と保管施設の特性（ FD 及び WUD ）に基づいて計算される。ここで、RHP は以下の式で計算される。

$$RHP = \frac{\sum_{All\ nuclides\ i} A_i \times P_i \times FF}{CF} \quad (\text{式 3.4-1})$$

ここで、 P_i は核種 i の固有毒性であり、ICRP により算定された核種ごとの値が用いられる[36]。 A_i は核種 i が有する放射能である。 FF は対象物の物理的形態であり、気体、液体、固体などに対して値が設定され、また、 CF は対象物が有する放射性核種の保持機能が失われた場合に環境に影響を及ぼすまでの予想期間であり、時間、日、週、月、年などを単位にして値を設定することになる。

SED 指標は対象物が管理される状況も含めて放射線リスクを評価する指標である。対象物が保管されている容器や施設の放射性核種の閉じ込め性能による条件を RHP の値に加えて放射線リスクを相対的に評価するもので、以下の式が適用される。

$$SED = RHP \times (FD \times WUD)^n \quad (\text{式 3.4-2})$$

ここで、 FD は廃棄物の管理施設、 WUD は廃棄物対策の状態である。なお n は RHP と容器・施設の閉じ込め機能（ $FD \times WUD$ ）とのバランスを考慮する係数であり、本検討では $n=3$ を用いる。SED 指標の計算に係る主要なパラメータは以下の通りである。

① 廃棄物特性

FF: 物理特性 (粉状>塊状>ブロック)
 CF: 環境に影響を及ぼす期間 (日>週>月)

② 廃棄物処理と管理施設特性

WUD: 廃棄物対策の有無 (未処理>安定化>廃棄体化)
 FD: 管理施設の密閉性 (不足>不十分>十分>問題なし)

なお、本検討の対象は汚染したコンクリート構造物であり、領域に区分して対象物の SED 指標を計算する。1F 廃炉工程で考慮すべき重要な要素は 1 号機、2 号機、3 号機の燃料溶融に起因して汚染した機器・構造物であるが、令和 3 年度は 1F-3 号機を対象にして、コンクリート構造物の解体・撤去で発生する放射性廃棄物の管理に係る SED 指標を計算した。SED 指標の計算の流れを図 3.4-3 に示す。1F 廃炉で実施される廃棄物管理工程の最適なシナリオ検討に必要な情報は開発中のデータベース (廃棄物管理 DB) に格納されており、ここから計算に用いるデータを検索する。本図の「放射性核種の特定と放射能の設定」に関しては、1F 燃料組成に関する評価がなされており[23]、この結果を用いた。また、放射性核種の燃料から機器・構造物への移行割合は NUREG/CR-2601[37]の数値を参考にした。ここでは、燃料内の放射性核種が燃料の溶融によって施設内に放出された状態を想定している。これらのデータを用いることにより区分した領域を解体・撤去する場合の廃棄物管理工程 (容器収納、安定化処理、廃棄体化、埋設処分) を条件とする RHP が計算される。区分した領域に存在する放射能インベントリ (式 3.4-1 の A_i の値) は、廃炉工程のタイムラインに応じて減衰し、加えて、解体・撤去に用いられる工法により物理的な状態が変化するため、RHP の値は変化する。また、解体・撤去された廃棄物の保管状況 (保管容器及び保管施設) により SED 指標は変化することになる。

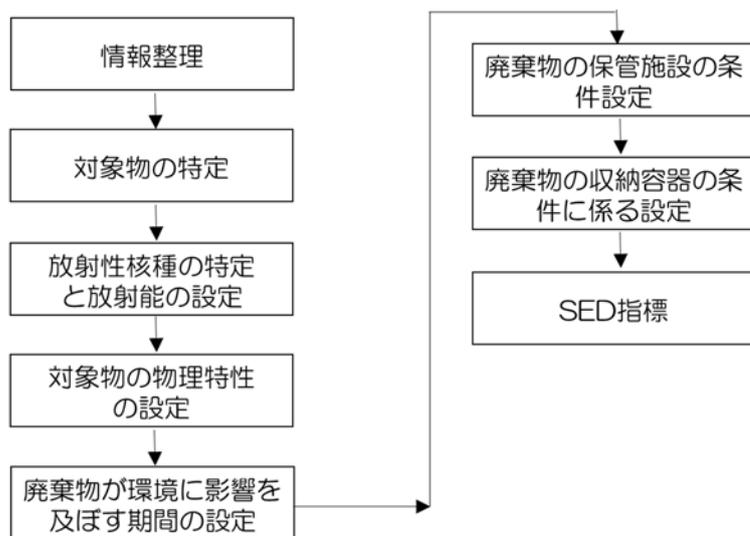


図 3.4-3 SED 指標計算の流れ

3.4.4 シナリオの構築・評価

(1) 廃止措置における工程等の検討

1Fの廃止措置においては、通常の廃止措置に対して、R/Bが広範に汚染しているため、それ自体の廃止措置に伴う量が増大するのみならず、他の施設の廃止措置、汚染水の処理や燃料デブリの取り出しに伴う2次廃棄物、廃棄物の保管、処理に伴う廃棄物、エンドステートに導く処置（環境復旧など）に伴う廃棄物を考慮しなければならない。ここで、量とともに廃棄物の処分区分の設定も重要な情報である。Kawamuraら[38]が廃棄物の発生量を処分区分とともに検討した例を表3.4-2に引用して示すが、このような評価はごく少ない。

汚染水の処理は現在進行中であり、例えば使用後に2次廃棄物となるタンク類の物量は、現在のところ表3.4-3に示す内容である[39]が、処理水の放出の計画が変更となれば貯留タンク類の物量に影響が生じる可能性がある。また、後述するように金属類は溶融により除染され、再利用が検討されており、必ずしも廃棄物とはならない。燃料デブリの取り出しは今後本格化され、具体的な方策が定まってくるため、現時点では不確実性が大きいと言える。廃棄物の物量は、廃止措置の方法や工程に影響されるため、見積りでの不確実性を低減するためには確かな情報を用いた評価が欠かせない。

廃棄物の増大に備え、保管場所を用意する必要がある。この時、建屋の中に保管することを条件としており、東京電力ホールディングス株式会社は表3.4-4に示すように複数の保管施設の建設を進めている[40]。水処理2次廃棄物についても中期的な対策は講じられている。大型廃棄物保管庫では、2,000基相当の吸着塔を保管することができ、現在、セシウム吸着装置、第2セシウム吸着装置と第3セシウム吸着装置からそれぞれ779、248、11本の使用済みベッセルが発生している。

一方で、廃棄物の体積を抑えるため、固体廃棄物の焼却、機械的処理（切断、破碎）、溶融の設備の設置が進められ、金属やコンクリートの再利用も計画されている。また、水処理2次廃棄物のうち、スラッジやスラリーはリスク低減のための水分除去とともに減容が期待できる脱水処理が計画されており、多核種除去設備のスラリーは600の容器に収納される予定である。

廃棄物の物量を評価する上で、上記のような増加と減少の因子に関する情報を的確に反映することが重要である。

上述のように、廃棄物管理を含め廃炉を長期にわたり持続的に、また、着実に進める上で、増大する廃棄物を発電所内で管理する制約条件による影響が重大になるとみられる。東京電力ホールディングス株式会社は保管管理計画において10年後までの見通しを示しており、それ以後に影響を与えうる因子をあらかじめ検討しておくことが重要となる。特に、燃料デブリの取り出しとその後の取り扱い、廃棄物の処理（固型化する優先度）が重要であろう。燃料デブリの処理は、核燃料物質の分離に係る方針の判断、また、廃棄物は管理上の優先度から負荷の大きい（高い線量率、あるいは α 核種濃度）廃棄物から処理するものと想定できるが、その具体化が考えられる。

表 3.4-2 Kawamura らによる廃止措置に伴う廃棄物量の試算[38]

量	分類	1～6号機	他の施設	水処理設備	廃棄物処理・保管施設	環境復旧	合計
質量 (t)	燃料デブリ	644	0	0	0	0	644
	HLW	2,042	0	0	0	83	2,125
	TRU	0	0	16	0	830	846
	L1	100,135	104,543	310	1,050	76,030	282,068
	L2	429,462	329,364	38,174	200	1,424,600	2,221,800
	L3	951,309	2,825,634	151,320	26,325	1,375,000	5,329,588
	合計	1,483,592	3,259,541	189,820	27,575	2,876,543	7,837,071
体積 (m ³)	燃料デブリ	107	0	0	0	0	107
	HLW	338	0	0	0	62	400
	TRU	0	0	3	0	623	626
	L1	57,463	55,511	51	174	74,538	187,737
	L2	251,063	194,916	6,322	33	1,164,764	1,617,098
	L3	555,901	1,813,403	98,045	16,752	1,303,846	3,787,947
	合計	864,872	2,063,830	104,421	16,959	2,543,833	5,593,915

表 3.4-3 汚染水を貯留するタンク類の仕様[39]

番号	貯槽	容量 (m ³ /基)	基数 (基)	合計容量* (m ³)	材料	板厚 (側板) (mm)
(32)	廃液 RO 供給タンク	35~110	34	1,200	-	-
(35)	RO 処理水貯槽	1,000 以上	7	7,000	SS400	15
(39)	RO 濃縮水貯槽	700 以上, 1,000 以上	190	187,000	SS400	16 (700 m ³), 12 (1,000 m ³), 15 (1,000 m ³)
(43)	蒸発濃縮処理水貯槽	1,000 以上	5	5,000	SS400	15
(46)	多核種処理水貯槽	700, 1,000, 1,060, 1,140, 1,160, 1,200, 1,220, 1,235, 1,330, 1,356, 2,400, 2,900	820	1,153,489	SS400, SM400A, SM400B, SM400C, SM490A, SM490C	12 (700, 1,000, 1,160, 1,200, 1,220, 1,235, 1,330, 1,356 m ³), 18.8 (2,400 m ³), 15 (1,000, 1,060, 1,140, 1,330, 2,900 m ³), 16 (700 m ³)
(60)	Sr 処理水貯槽	1,057 以上, 1,160 以上, 1,200 以上	50	55,596	SS400, SM400A, SM400C	15 (1,057 m ³), 12 (1,160 m ³), 12 (1,200 m ³)
(61)	濃縮廃液貯槽	1,000 以上	10	10,000	SS400	15 (1,000 m ³)

* 公称容量であり、運用上の容量とは異なる。

表 3.4-4 建設中あるいは建設が計画されている施設・設備[40]

分類	施設・設備	仕様
減容	増設雑固体廃棄物焼却設備	95 t・d ⁻¹ (24 時間運転)
	減容処理設備	金属：約 60 m ³ ・d ⁻¹ コンクリート：約 40 m ³ ・d ⁻¹
	除染・減容設備	-
保管	増設固体廃棄物貯蔵庫第 10 棟	約 8 万 m ³
	同第 11 棟	約 11.5 万 m ³
	大型廃棄物保管庫第 1 棟	約 0.4 万 m ² (吸着塔 744 基: SARRY 360 基、 KURION 384 基)
	同 第 2 棟	約 0.8 万 m ² (吸着塔 約 1,200 基相当) (今後検討)

(2) シナリオ構築の基本的考え方

原子力施設の廃止措置に係る戦略（シナリオ）は、タイムラインの設定が重要な要素であり、IAEAの報告書[41]などでは「即時解体」「遅延解体」「原位置処分（遮蔽隔離）」の基本的なシナリオが示されている。また、廃炉工程の最終状態であるエンドステートはシナリオを構築する上で重要な要素であり、「グリーンフィールド」または「ブラウンフィールド」の選択があり、ブラウンフィールドに関しては、廃棄物の存在及び原子力施設の一部残存など様々な状態の設定が可能となる。

本検討においては、上述したタイムラインとエンドステートを組み合わせて、コンクリート建造物の解体・撤去と廃棄物管理に係る具体的なシナリオを構築することとした。シナリオ構築の基本的考え方を図 3.4-4 に示す。廃棄物管理の基本的な工程は、容器収納（解体撤去により実施）、安定化処理、廃棄体化処理、埋設処分に分類することができる。これらの工程の前後における廃棄物の状態は以下のように整理する。

- 容器収納 ： 建造物を解体・撤去して容器に入れ廃棄物管理施設に運搬する。
- 安定化処理 ： 廃棄物を長期保管が可能なるよう、分別、乾燥などの処理を行う。
- 廃棄体化処理 ： 廃棄物をモルタル固化などにより埋設処分できる状態にする。
- 埋設処分 ： 放射性廃棄物の処分場で埋設処分する。

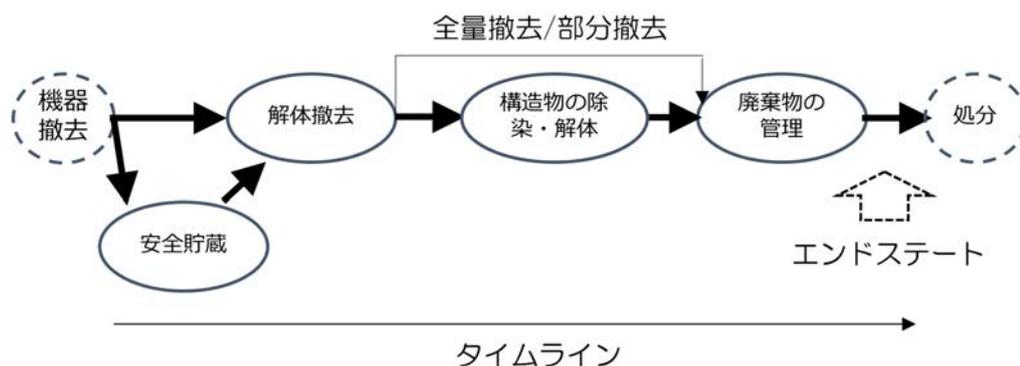


図 3.4-4 シナリオ構築の基本的考え方

(3) 解体工法と廃棄物特性

コンクリート建造物の解体・撤去では、熱遮蔽体や生体遮蔽体のように運転中に中性子による放射化反応で、建造物の深部まで放射化が及んでいる場合を除いて、1) 建造物のクラックなどにより汚染核種が深部にまで達している場合、2) 汚染が表面に限定される場合に分けることができる。いずれの場合でも、放射性核種で汚染した部分を撤去し、残りを埋設処分のレベル区分に応じて分類することになる。なお、汚染状況にもよるが、除染後の建造物を放射性廃棄物でない廃棄物として解体・撤去することも考えられる。通常炉の廃止措置に必要な技術では、3.4.2で整理されているように、建造物の汚染状況に応じて様々な工法が整備されており、適用される工法により発生する解体物の形状が異なる。例えば、ブレーカーや制御爆破などを用いて効率的に建造物を解体・撤去する場合には、発生する放射性廃棄物は粉状や塊状になる。他方、ワイヤーソーなど、対象物を定型の形状に切り出す場合には解体物はブロック状で発生するが、作業効率はブレーカーや爆薬使用に比べて低下する。また、発生する廃棄物の形状により、それらを収納する容器の仕様や廃棄物容器の保管施設の

整備条件も異なるため、これらを考慮した廃棄物管理シナリオを検討することが重要になる。図 3.4-5 に熱遮蔽を例として廃棄物管理シナリオの選択肢のフロー図を示す。

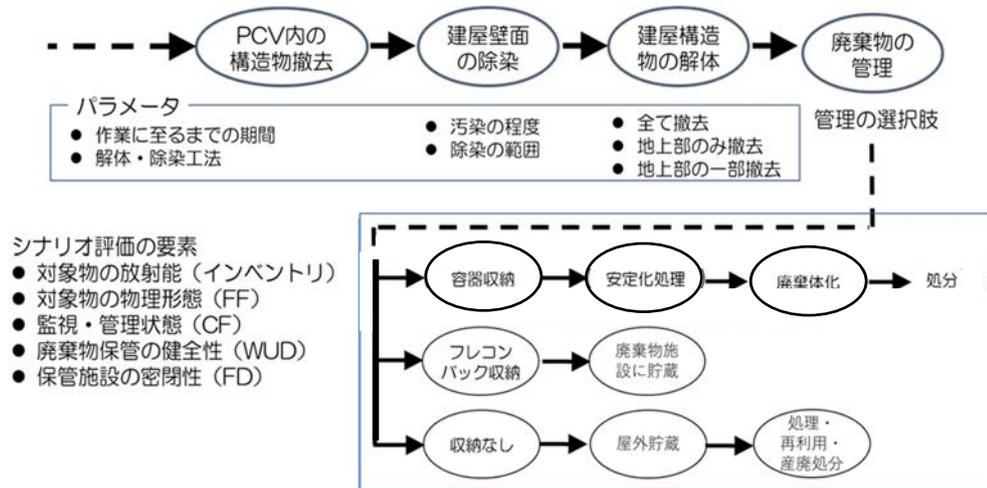


図 3.4-5 廃棄物管理シナリオの選択肢のフロー（例：熱遮蔽）

(4) SED 指標の評価

1F 廃炉工程を俯瞰して最適なシナリオを検討する場合、放射性核種で汚染した機器・構造物が持つ RHP の計算が基本になる。機器・構造物は施設の中に存在し、施設の健全性が維持される状態においては公衆が受ける放射線リスク(危険度)を考える必要はない。しかし、1F 施設の現状は（現状を放置する場合には）、放射性核種の漏えいを完全に防止できている状態にはない。このため、施設の健全性を維持するための作業及びエンドステートに向けた機器・構造物の解体・撤去作業を進めることになるが、作業の優先順位を決めることが求められる、原子力損害賠償・廃炉等支援機構は SED 指標を定性的に評価して、大まかな作業計画を示している[42]。本検討では、1F 施設の構造物の現状及び、構造物を解体・撤去して発生する放射性廃棄物の管理状態を想定した場合に対して SED 指標を算出した。すなわち、廃棄物の容器収納、安定化処理、廃棄体化処理の工程における廃棄物の状態は RHP の計算で評価するとともに、放射性核種の環境への漏えいの危険性(廃棄物の処理状態と施設の健全性)を考慮して SED 指標が評価されることになる。

① RHP の計算

1F-1、-2、-3 号機の運転により燃料中に蓄積された主要な放射性核種の放射能と事故により燃料から放出された放射能を核種ごとに計算した。1F-3 号機の計算結果を表 3.4-5 に示す。放射能の減衰を考慮して事故から 20 年後の値を示している。NUREG/CR-2601[37]に示された核種ごとの燃料からの放出割合 (0.35) を用いて計算した結果であり、¹³⁷Cs の放射能レベルが最も高く 5.1×10^{11} (Bq) であった。表 3.4-6 は燃料から放出された核種の移行割合を想定して 1F-1、-2、-3 号機の領域ごとに $\sum_{All\ nuclides} i Ai \times Pi$ を計算した結果である。加えて、廃棄物管理工程を想定して、1F-3 号機の熱遮蔽体を例に、現状、容器収納、安定化処理、廃棄体化処理、埋設処分における $\sum_{All\ nuclides} i Ai \times Pi$ の値を計算した(表 3.4-7)。

表 3.4-5 放射性核種の放射能と燃料から放出された放射能の例 (1F-3 号機)

No.	Radionuclides	Source Activity (Bq)	Activity Released (Bq)	Half life (days)	Activity after 1 yr (Bq)	Activity after 20 yrs (Bq)	Pi (m ³ ·Bq ⁻¹)	Σ A _i ×P _i (after 20 yrs)
1	⁶⁰ Co	3.28×10 ¹²	4.92×10 ¹⁰	1.92×10 ³	4.31×10 ¹⁰	3.53×10 ⁹	2.04×10 ⁻⁶	7.20×10 ³
2	⁸⁵ Kr	2.95×10 ¹⁶	1.37×10 ¹⁶	3.95×10 ³	1.29×10 ¹⁶	3.81×10 ¹⁵	0	0
3	⁹⁰ Sr	1.81×10 ¹⁷	9.05×10 ¹⁵	1.10×10 ⁴	8.84×10 ¹⁵	5.71×10 ¹⁵	1.67×10 ⁻⁵	9.60×10 ¹⁰
4	¹⁰⁶ Ru	8.48×10 ¹⁷	1.27×10 ¹⁶	3.66×10 ²	6.37×10 ¹⁵	1.26×10 ¹⁰	4.20×10 ⁻⁶	5.29×10 ⁴
5	¹³⁴ Cs	2.52×10 ¹⁷	1.08×10 ¹⁷	7.50×10 ²	7.73×10 ¹⁶	1.27×10 ¹⁴	1.14×10 ⁻⁵	1.45×10 ⁹
6	¹³⁷ Cs	2.41×10 ¹⁷	1.04×10 ¹⁷	1.10×10 ⁴	1.01×10 ¹⁷	6.54×10 ¹⁶	7.80×10 ⁻⁶	5.10×10 ¹¹
7	¹⁴⁴ Ce	2.27×10 ¹⁸	3.41×10 ¹⁵	2.84×10 ²	1.40×10 ¹⁵	6.23×10 ⁷	3.12×10 ⁻⁶	1.94×10 ²
8	²³⁸ Pu	5.53×10 ¹⁵	8.30×10 ¹²	3.25×10 ⁴	8.23×10 ¹²	7.10×10 ¹²	1.38×10 ⁻⁴	9.80×10 ⁸
9	²³⁹ Pu	1.04×10 ¹⁵	1.56×10 ¹²	8.90×10 ⁶	1.56×10 ¹²	1.56×10 ¹²	1.50×10 ⁻⁴	2.34×10 ⁸
10	²⁴⁰ Pu	1.36×10 ¹⁵	2.04×10 ¹²	2.40×10 ⁶	2.04×10 ¹²	2.04×10 ¹²	1.50×10 ⁻⁴	3.05×10 ⁸
11	²⁴¹ Pu	3.15×10 ¹⁷	4.73×10 ¹⁴	5.35×10 ³	4.51×10 ¹⁴	1.84×10 ¹⁴	2.88×10 ⁻⁶	5.28×10 ⁸
12	²⁴¹ Am	5.58×10 ¹⁴	8.37×10 ¹¹	1.50×10 ⁵	8.36×10 ¹¹	8.09×10 ¹¹	1.20×10 ⁻⁴	9.71×10 ⁷
13	²⁴⁴ Cm	2.71×10 ¹⁵	4.07×10 ¹²	6.63×10 ³	3.91×10 ¹²	1.90×10 ¹²	7.20×10 ⁻⁵	1.36×10 ⁸
Total		4.15×10 ¹⁸	2.51×10 ¹⁷	-	2.09×10 ¹⁷	7.53×10 ¹⁶	-	6.10×10 ¹¹

表 3.4-6 領域ごとの放射性核種の移行割合と Σ A_i×P_i の計算結果

施設番号	移行率	1F-1	1F-2	1F-3
全体		5.10×10 ¹¹	6.45×10 ¹¹	6.10×10 ¹¹
格納容器	0.90			
ペDESTAL	(0.60)	2.75×10 ¹¹	3.87×10 ¹¹	3.66×10 ¹¹
熱遮蔽	(0.20)	9.18×10 ¹⁰	1.29×10 ¹¹	1.22×10 ¹¹
格納容器壁 (生体遮蔽)	(0.20)	9.18×10 ¹⁰	1.29×10 ¹¹	1.22×10 ¹¹
R/B	0.07			
R/B 地上部	(0.50)	1.79×10 ¹⁰	2.26×10 ¹⁰	2.13×10 ¹⁰
R/B 地下部	(0.70)	2.50×10 ¹⁰	3.16×10 ¹⁰	2.13×10 ¹⁰
T/B	0.02			
T/B 地上部	(0.50)	5.10×10 ⁹	6.45×10 ⁹	6.10×10 ⁹
T/B 地下部	(0.70)	7.14×10 ⁹	9.03×10 ⁹	8.54×10 ⁹
廃棄物建屋	0.01			
廃棄物建屋地上部	(0.50)	2.55×10 ⁹	3.22×10 ⁹	3.05×10 ⁹
廃棄物建屋地下部	(0.70)	3.57×10 ⁹	4.51×10 ⁹	4.27×10 ⁹

表 3.4-7 熱遮蔽体を対象とした廃棄物管理工程における RHP の計算 (1F-3 号機)

廃棄物管理	<i>FF</i>	<i>FF</i> 説明	<i>CF</i>	<i>CF</i> 説明	RHP
現状 (解体・撤去前)	1.00×10^{-1}	粉状+ 大型構造物	1.00×10^4	数年	1.22×10^6
容器収納	1.00×10^{-5}	ブロック	1.00×10^3	数か月	1.22×10^7
安定化处理	1.00×10^{-5}	ブロック	1.00×10^4	数年	1.22×10^2
廃棄体化处理	1.00×10^{-5}	ブロック	1.00×10^4	数年	1.22×10^2
埋設処分	1.00×10^{-6}	大型構造物	1.00×10^5	数十年	1.22×10^0

② SED の計算

上述したように SED 指標は廃棄物を保管する施設及び保管容器が有する放射性核種の漏えいに係る特性を考慮した係数であり、建屋構造物を解体・撤去するまで (現状) はそれ自身が容器及び保管施設としての役割を有している。対象物の解体・撤去後は、廃棄物として収納容器に収納し、また、収納容器を保管施設で保管することになるため、保管施設の健全性が SED 指標に影響する。表 3.4-8 及び図 3.4-6 は、1F-3 号機の熱遮蔽体に対してこれらの条件を設定して SED 指標を計算した例である。熱遮蔽体はその周りの放射能レベルが高いと予想されるため、ワイヤーソーなどを用いて遠隔でブロック状に解体・撤去することが想定される。また、解体・撤去したブロック状の廃棄物は容器に収納し、

現状→容器収納→安定化处理→廃棄体化处理→埋設処分

などの工程を経ることになるが、廃棄物管理工程が進むに従って SED 指標は徐々に低下する。他方、建屋構造物の解体・撤去では構造物の内表面の除染が想定され、除染で発生する粒子状の 2 次廃棄物の管理は注意を要する。建屋構造物の除染 2 次廃棄物の SED 指標の計算結果を図 3.4-7 示す。除染 2 次廃棄物は容器に収納するが、この場合、建屋表面に付着して構造物の一部を形成している状態に対して容器収納により SED 指標が上昇している。

表 3.4-8 熱遮蔽体を対象とした廃棄物管理工程における SED 指標の計算 (1F-3 号機)

管理施設	FD	FD説明	WUD	WUD説明	SED
原子炉建屋	90	閉じ込め性能不足	100	未処理で漏洩対策は十分でない	8.89E+17
仮保管施設	50	閉じ込め性能は確保/ 問題発生時に影響	50	未処理であるが漏洩対策はある	1.91E+17
廃棄物管理施設	5	施設損傷の場合影響	5	処理済みであるが劣化の可能性	1.91E+06
廃棄物管理施設	2	施設損傷の場合でも影響なし	1	処理済み	9.76E+02
埋設処分	1	施設損傷の場合でも影響なし	1	処理済み	1.22E+00

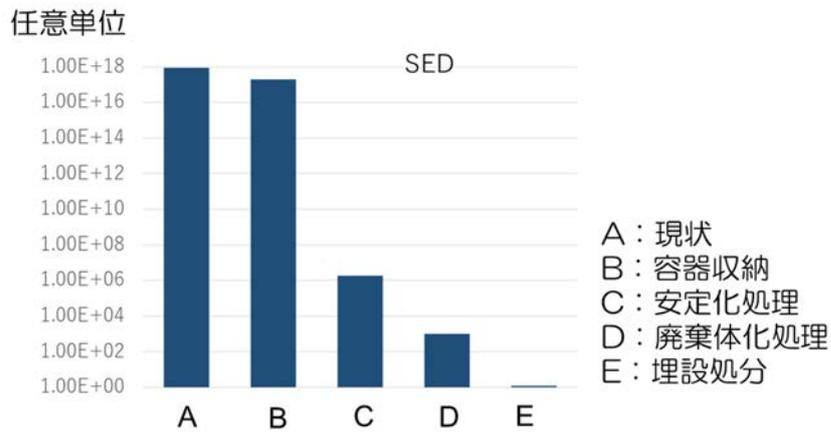


図 3.4-6 1F-3 号機の熱遮蔽体を対象とした SED 指標

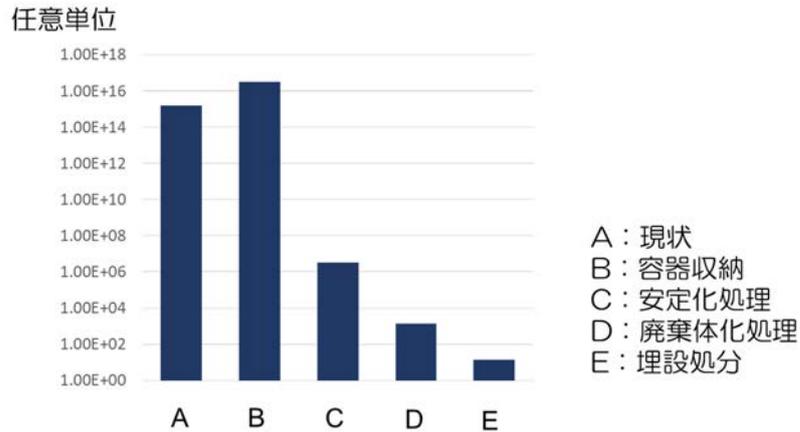


図 3.4-7 1F-3 号機の建屋表面の除染で発生する廃棄物の SED 指標

③ シナリオ検討の例

廃棄物管理シナリオに対応した SED 指標の検討は、最適なシナリオを選定する上で重要な要素となる。そこで、基本的なタイムラインに対して、1F-3 号機の R/B を対象として事故後 30 年から解体・撤去作業が始まると想定し、建屋構造物を解体・全撤去するシナリオ（ケース A）、地下部を残すシナリオ（ケース B）の 2 つのサブシナリオを設定した（図 3.4-8）。

図 3.4-8 に示したサブシナリオに基づき、廃棄物管理工程の変遷に伴う SED 指標の変化を計算した結果を図 3.4-9 に示す。なお、SED 指標は対数を取った数値で表示した。廃棄物管理工程の進捗に従って、SED 指標が低下することがわかる。このように、令和 4 年度に算出される濃度分布をもとに、複数のサブシナリオを設定し、それぞれの廃棄物管理工程を SED により評価することが可能であることが確認された。

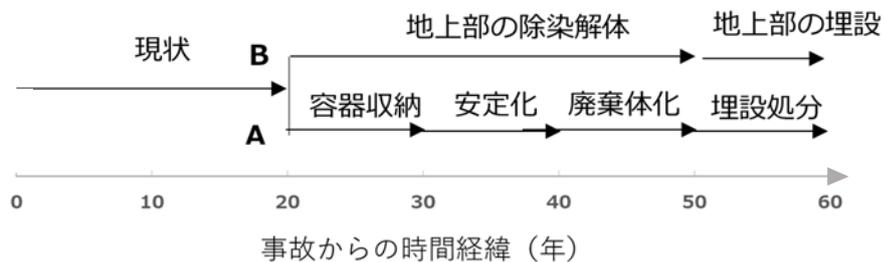


図 3.4-8 1F-3 号機を対象としたサブシナリオ

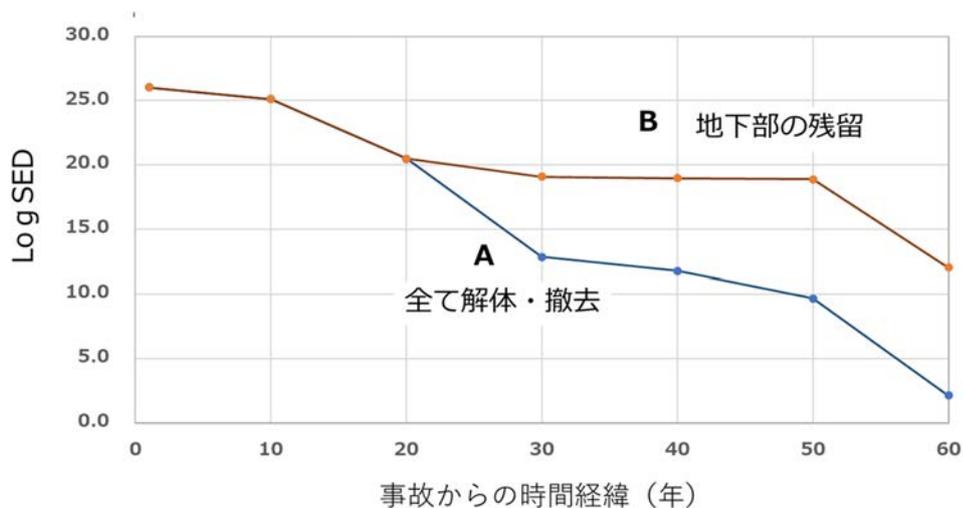


図 3.4-9 廃棄物管理工程に沿った SED 指標の変化 (1F-3 号機の建屋表面)

3.4.5 令和 3 年度の実施内容及び成果のまとめ

1F 廃炉工程における建屋及び遮蔽体などのコンクリート構造物を対象にして、解体・撤去と廃棄物管理の最適なシナリオを検討することを目的に、SED 指標計算のためのデータ整備を継続した。廃棄物管理を含む廃炉を持続的に進めていく上で、発電以外に供する施設・設備の廃止措置、汚染水の処理や燃料デブリの取り出しに伴う 2 次的な廃棄物、廃棄物の保管、処理に伴う廃棄物、エンドステートに導く処置（環境復旧など）に伴う廃棄物を考慮する必要があり、これらの情報を整理した。

廃棄物を発電所内で保管管理する条件を考慮し、東京電力ホールディングス株式会社により保管管理の計画が講じられている 10 年後からさらに将来の状況を定量的に検討することが必要であると考えられ、特に、燃料デブリの取り出しとその後の取り扱い、廃棄物の処理（固型化する優先度）が重要とみられる。

SED 指標の適用性の検討を進め、廃棄物が有する状態と廃棄物を保管する施設の放射性核種漏えい防止性能を含めて廃棄物管理工程の潜在的な放射線リスクの分析が可能になった。今後は廃棄物管理の具体的なシナリオ構築と物量及び SED 指標を含めて最適性の検討を進める。

3.5 研究推進

研究代表者の下で、各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして研究を進めた。

プログラムオフィサー (PO) および JAEA プログラムオフィサー (J-PO) による中間フォロー会議を令和 3 年 11 月 29 日に実施した。また、J-PO には、令和 3 年 8 月 13 日にオンラインでのフォロー、令和 3 年 11 月 25 日に北海道大学の実験室を視察頂いた。令和年 11 月に JAEA との間で研究成果の使用許諾に関する覚書を交わし、1F のインベントリデータの提供を受けた。

NDF の技術戦略ワークショップ (令和 3 年 10 月 9 日) 及び英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業令和 3 年度成果報告会 (令和 4 年 3 月 10 日) に研究代表者等が参加した。また、東京大学・丸山教授らの研究グループとの情報交換会を実施した (令和 3 年 12 月 8 日)。

「国民との科学・技術対話」の推進活動として、研究代表者が北海道大学「ACADEMIC FANTASISTA 2021」に参加し、札幌市内の 2 高校において出張講義を行った。

研究成果の一部を、日本原子力学会 2021 年秋の大会 (4 件)、日本原子力学会 2022 年春の年会 (1 件) 及び日本原子力学会北海道支部研究発表会 (1 件) にて口頭発表した。

以上、3 カ年計画の 2 年目である令和 3 年度の事業項目を実施し、所期の目標を達成した。

4. 結言

1F の廃炉作業を円滑かつ合理的に進めるためには、コンクリート中の放射性核種濃度分布の経時変化を考慮して、解体から最終処分までの一連の工程全体を俯瞰することが重要である。そこで、本研究では、物量が多く、また、汚染水との接触による長期溶脱変質が起きている可能性のある地下構造物のコンクリートに焦点をあて、変質コンクリート材料を対象とした放射性核種の移行挙動の解明、特性評価、放射性核種の移行挙動モデルの構築、及びそれらの情報をもととした放射性廃棄物物量の推計、コンクリート廃棄物の管理シナリオの分析を行う。

硬化セメントペースト試料及び模擬変質試料を調製し、試料固相の表面観察を SEM-EDX により行った。硬化セメントペースト試料への I⁻ の K_d は約 $10^2 \sim 10^3 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ であり、 K_d の温度依存性から決定した収着のエンタルピーの値より、I⁻ の収着は弱い吸熱反応であることが示唆された。硬化セメントペースト試料への I⁻ の K_d に比べて、C-S-H 及び C-A-S-H 試料への I⁻ の K_d 値は大幅に低く、試料により主要な収着機構が異なることが示唆された。一方、模擬変質試料中の ^{137}Cs の非定常拡散実験を実施し、IP を用いて測定した放射能分布から決定した ^{137}Cs の D_a は $4.4 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、NaI(Tl) シンチレーションカウンタを用いた測定では $3.1 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ となり、両者はほぼ一致した。また、 ^{14}C の非定常拡散実験及び透過型拡散実験を開始した。硬化セメントペースト試料中の炭酸イオンの移行は認められず、 D_a は極めて低かったことから、炭酸イオンは試料固相への強い収着により移行が大幅に遅延している可能性がある。一方で、酢酸イオンの D_a は $6.2 \times 10^{-12} \sim 1.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の範囲であり、酢酸イオンは毛細管空隙等の自由水中を拡散している可能性が示唆され、 ^{14}C の化学形によって拡散挙動が大きく異なることが示された。

U(VI) を約 1 ppm 含む U 水溶液と粉末試料を 24 時間反応させた後、セメント、溶脱セメント、C-S-H 及び C-A-S-H に対する U の分配係数 K_d はすべて $10^4 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以上と非常に高い値であった。セメントが炭酸イオンと反応して生成する炭酸カルシウムを模擬した試薬の炭酸カルシウム微粉では K_d が $1 \times 10^2 \text{ L} \cdot \text{kg}^{-1}$ と低かった。収着前後で固相の変化は認められなかった。

直径 3 mm、高さ 6 mm の微小円柱供試体の溶出試験を行い、非破壊 CT-XRD 連成法で分析した結果、CT 断面画像から変質と考えられる溶脱領域を可視化することが可能であることが推察された。溶脱領域では画素値が相対的に小さく、8bit 画像を観察することでも認識可能であった。また、溶脱領域を関心領域として XRD 測定を実施した結果、主要なセメント水和物であるポルトランドライトが溶解したことが推察された。溶出試験期間が 1 か月とすることで、溶液と接する表層部の約 0.5 cm が変質したと考えられた。

溶出試験結果を模擬計算結果と比較するために、既存の SiTraM を改良して計算した結果、溶出試験結果から得られた溶脱領域では水酸化カルシウム量が減少すること、空隙率が約 3 割増加することがわかった。また、セメントペーストと骨材の界面（遷移帯）からの水酸化カルシウムの溶解も模擬されており、遷移帯はカルシウムの溶出を容易にすることが検証できた。遷移帯の物性値を直接実験から求めることは困難であるが、本研究で改良したモデルを用いた模擬計算によって、定量化が可能であると考えられた。

コンクリート用再生粗骨材 L に相当する低品質なコンクリート塊を用いて、3 か月間溶出試験を実施した。その結果、溶出試験期間の増加とともに密度は低下しており、原骨材に付着したモルタル分の溶出によるものと推察された。また、溶出試験期間の増加に伴いコンクリート塊中への吸水量が増加したことで吸水率が大きくなったことが示された。

Ca/Si を 1.4 (健全) 及び 0.83 (変質)、Al/Si を 0.15 に設定し、核種収着用の C-S-H 及び C-A-S-H を合成した。このうち C-A-S-H を北海道大学及び JAEA に提供した。また、合成 C-S-H の微細構造の評価のために、 ^{29}Si 及び ^{27}Al を測定対象核として NMR 測定を実施した。また、 ^{29}Si の含有率を高めた合成 C-A-S-H を用いて微細構造解析に着手した。令和 3 年度は二重 NMR 測定を実施し、三重 NMR のための測定パラメータの最適化を実施した。

劣化コンクリート等から骨材成分とセメントペースト分をブロモホルムによって調製した重液を用いて分離し、セメントペーストに含有される C-S-H 及び C-A-S-H を抽出した。また、抽出した C-S-H の微細構造の評価のために、 ^{29}Si を測定対象核として NMR 測定を実施した。

固体廃棄物保管施設に保管されるコンクリート瓦礫等のコンテナ外部での線量測定結果をもとに、コンテナ内のコンクリート瓦礫の放射性核種濃度を統計的に推定する手法を開発した。計算の効率化及び精度向上については今後の課題である。滞留水中に浸かったコンクリート構造物については、その性状や放射性核種の滞留水中濃度を与条件として、コンクリート内部の多核種の放射能濃度分布を推計した。核種移行計算における与条件及び放射能濃度分布推計の不確実性を定量化した。

^{129}I の汚染水への移行は、事故発生に伴うスパイク的な一時の移行と、その後の継続した移行に支配されると見られ、これは Cs などの核種と同様である。I のコンクリートへの移行を定量的に評価するためには、陰イオン化学種を考慮した検討が必要である。 ^{14}C のソースタームとしては、燃料の被覆管の寄与が大きく、移行の挙動を定量的に議論するには被覆管に含まれる不純物、特に N の量の把握が重要となる。

1F 廃炉工程における建屋及び遮蔽体などのコンクリート構造物を対象にして、解体・撤去と廃棄物管理の最適なシナリオを検討することを目的に、SED 指標計算のためのデータ整備を継続した。廃棄物管理を含む廃炉を持続的に進めていく上で、発電以外に供する施設・設備の廃止措置、汚染水の処理や燃料デブリの取り出しに伴う 2 次的な廃棄物、廃棄物の保管、処理に伴う廃棄物、エンドステートに導く処置（環境復旧など）に伴う廃棄物を考慮する必要がある、これらの情報を整理した。廃棄物を発電所内で保管管理する条件を考慮し、東京電力ホールディングス株式会社により保管管理の計画が講じられている 10 年後からさらに将来の状況を定量的に検討することが必要であると考えられ、特に、燃料デブリの取り出しとその後の取り扱い、廃棄物の処理（固型化する優先度）が重要とみられる。

SED 指標の適用性の検討を進め、廃棄物が有する状態と廃棄物を保管する施設の放射性核種漏えい防止性能を含めて廃棄物管理工程の潜在的な放射線リスクの分析が可能になった。今後は廃棄物管理の具体的なシナリオ構築と物量及び SED 指標を含めて最適性の検討を進める。

参考文献

概略

- [1] 廃炉環境国際共同研究センター，北海道大学，溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討（委託研究）；令和2年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業，JAEA-Review 2021-070，2022，98p，
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-070>.
- 3.1 汚染水との接触により変質したコンクリート材料中の放射性核種の移行挙動の解明
- [2] 瀧谷啓晃，水セメント比の異なるセメント硬化体中の水およびイオンの拡散機構，北海道大学大学院工学院博士論文，DOI:10.14943/doctoral.k11885，2015.
- [3] Parson, R., Handbook of Electrochemical Constants, Butterworth Scientific Publications, London, 1959.
- [4] Grambow, B., López-García, M., Olmeda, J., Grivé, M., Marty, N. C. M., Grangeon, S., Claret, F., Lange, S., Deissmann, G., Klinkenberg, M., Bosbach, D., Bucur, C., Florea, I., Dobrin, R., Isaacs, M., Read, D., Kittnerová, J., Drtinová, B., Vopálka, D., Cevirim-Papaioannou, N., Ait-Mouheb, N., Gaona, X., Altmaier, M., Nedyalkova, L., Lothenbach, B., Tits, J., Landesman, C., Rasamimanana, S., Ribet, S., Retention and Diffusion of Radioactive and Toxic Species on Cementitious Systems: Main Outcome of the CEBAMA Project, Appl. Geochem., vol.112, 2020, 104480.
- [5] Pointeau, I., Coreau, N., Reiller, P. E., Uptake of Anionic Radionuclides onto Degraded Cement Pastes and Competing Effect of Organic Ligands, Radiochim. Acta, vol.96, 2008, pp.367-374.
- [6] Robinson, R. A., Stokes, R. H., Electrolyte Solutions, Butterworths Scientific Publications, London, 1955.
- [7] 日本化学会（編），化学便覧 基礎編 改訂6版，丸善出版，2021，1536p.
- 3.2 汚染水との接触により変質したコンクリート材料の特性評価
- [8] Sugiyama, T., Hitomi, T., Kajiwara, K., Non-destructive Integrated CT-XRD Method for Research on Hydrated Cement System, 4th International Conference on the Durability of Concrete Structures, Purdue University, USA, 24-26 Aug, 2014.
- [9] Takahashi, H., Sugiyama, T., Application of Non-destructive Integrated CT-XRD Method to Investigate Alteration of Cementitious Materials Subjected to High Temperature and Pure Water, Construction and Building Materials, vol.203, 2019, pp.579-588.
- [10] Andersen, M. D. et al., Characterization of White Portland Cement Hydration and the C-S-H Structure in the Presence of Sodium Aluminate by ^{27}Al and ^{29}Si MAS NMR Spectroscopy, Cem. Con. Res., vol.34, no.5, 2004, pp.857-868.
- [11] Matsushita, F. et al., Calcium Silicate Structure and Carbonation Shrinkage of a Tobermorite-based Material, Cem. Con. Res., vol.34, no.7, 2004, pp.1251-1257.

- [12] Lothenbach, B., Nonat, A., Calcium Silicate Hydrates : Solid and Liquid Phase Composition, *Cem. Con. Res.*, vol.78, A, 2015, pp.57-70.
- [13] Pardal, X., Brunet, F., Charpentier, T., Pochard, I., Nonat, A., ^{27}Al and ^{29}Si Solid-State NMR Characterization of Calcium-Aluminosilicate-Hydrate, *Inorg. Chem.*, vol.51, no.3, 2012, pp.1827-1836.
- [14] Myers, R. J., L'Hôpital, E., Provis, J. L., Lothenbach, B., Effect of Temperature and Aluminium on Calcium (Alumino) Silicate Hydrate Chemistry under Equilibrium Conditions, *Cem. Con. Res.*, vol.68, 2015, pp.83-93.
- [15] Pustovgar, E., Sangodkar, R. P., Andreev, A. S., Palacios, M., Chmelka, B. F., Flatt, R. J., d'Espinoza de Lacaille, J. B., Understanding Silicate Hydration from Quantitative Analyses of Hydrating Tricalcium Silicates, *Nature Communications*, vol.7, 2016, p.10952.
- [16] Li, B., Li, N., Brouwers, H. J. H., Yu, Q., Chen, W., Understanding Hydrogen Bonding in Calcium Silicate Hydrate Combining Solid-state NMR and First Principle Calculations, *Constr. Build. Mater.*, vol.233, 2020, p.117347.
- [17] Renaudin, G., Russias, J., Leroux, F., Cau-dit-Coumes, C., Frizon, F., Structural Characterization of C-S-H and C-A-S-H Samples-Part II : Local Environment Investigated by Spectroscopic Analyses, *J. Solid State Chem.*, vol.182, no.12, 2009, pp.3320-3329.
- [18] Morinaga, Y., Yogarajah, E., Nawa T., Yorgchaitrakul, L., Iwatsuki, E., Comparison of Alkali-Silica Chemical Reaction of Reactive Glass and Chert Aggregate, Conference Paper of Sixth International Conference on Durability of Concrete Structures, 2018, no. ICC22, pp.248-255.
- [19] Walkley, B., Provis, J. L., Solid-state Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy of Cements, *Materialtoday Adv.*, vol.1, 2019, p.100007.

3.3 変質コンクリート材料中の放射性核種の移行挙動モデルの構築及び放射性廃棄物物量の推計

- [20] Sugiyama, D., Nakabayashi, R., Tanaka, S., Koma, Y., Takahatake, Y., Stochastic estimation of Radionuclide Composition in Wastes Generated at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Using Bayesian Inference, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol.58 no.4, 2021, pp.493-506.
- [21] Sato, T., Iwamoto, Y., Hashimoto, S., Ogawa, T., Furuta, T., Abe, S., Kai, T., Tsai, P-E., Matsuda, N., Iwase, H., Shigyo, N., Sihver, L., Niita, K., Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System (PHITS) version 3.02, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol.55, no.6, 2018, pp.684-690.
- [22] 日本原子力研究開発機構, 福島第一原子力発電所事故廃棄物に関する分析データ集 (FRAnDLi), <https://frandli-db.jaea.go.jp/FRAnDLi/> (参照 : 2022 年 3 月 31 日) .
- [23] 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, *JAEA-Data/Code* 2012-018, 2012, 190p.

- [24] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合／事務局会議，廃炉・汚染水・処理水対策の概要，廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合／事務局会議（第95回），2021年10月28日，<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2021/10/95-2-1-1.pdf>（参照：2022年3月31日）。
- [25] Shibata, A., Koma, Y., Ohi, T., Estimation of the Inventory of the Radioactive Wastes in Fukushima Daiichi NPS with a Radionuclide Transport Model in the Contaminated Water, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol.53, no.12, 2016, pp.1933-1942.
- [26] Kleykamp, H., The Chemical State of the Fission Products in Oxide Fuels, *J. Nucl. Mater.*, vol.131, no.2-3, 1985, pp.221-246.
- [27] 加藤大生，嶺達也，三原守弘，大井貴夫，本田明，セメント系材料に対する核種の収着データベースの整備（研究報告），JNC TN8400 2001-029, 2002, 63p.
- [28] 堀部純男編，海水の化学，東海大学出版会，1970，381p.
- [29] 原子力安全基盤機構，東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る1号機，2号機及び3号機の炉心の状態に関する評価報告書，JNES-RE-2011-2, 2011.
- [30] 永里良彦，山口俊哉，藤田秀人，大森栄一，東海再処理施設におけるC-14の挙動，JNC TN8410 2001-021, 2001, 26p.
- [31] Ludwig, S. B., Renier, J. P., Standard- and Extended-Burnup PWR and BWR Reactor Models for the ORIGEN2 Computer Code, ORNL/TM-11018, 1989.
- [32] Koma, Y., Shibata, A., Ashida, T., Radioactive Contamination of Several Materials Following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident, *Nuclear Materials and Energy*, vol.10, 2017, pp.35-41.
- 3.4 建屋解体から発生するコンクリート廃棄物の分別基準を含む管理シナリオの分析
- [33] 野村顕雄，田中宏志，白阪靖人，9.福島原子力発電所第3号機工事報告，コンクリートジャーナル，vol.12, no.6, 1974, pp.72-81.
- [34] Oak, H. D., Holter, G. M., Kennedy, W. E. Jr., Konzek, G. J., Technology, Safety and Costs of Decommissioning a Reference Boiling Water Reactor Power Station, *NUR EG/CR-0672*, vol.1, 1980.
- [35] Evans, J. C., Lepel, E. L., Sanders, R. W., Wilkerson, C. L., Silker, W., Thomas, C. W., Abel, K. H., Robertson, D. R., Long-Lived Activation Products in Reactor Materials, *NUREG/CR-3474*, 1984, <https://www.osti.gov/servlets/purl/6776358>（参照：2022年3月31日）。
- [36] Nuclear Decommissioning Authority, Instruction for the Calculation of the Radiological Hazard Potential, Doc No EGPR02-WI01, 2010, <https://rwm.nda.gov.uk/publication/egpr02-wi01-instruction-for-the-calculation-of-the-radiological-hazard-potential-rev3>（参照：2022年3月31日）。
- [37] Murphy, E. S., Holter, G. M., Technology, Safety and Costs of Decommissioning Reference Light Water Reactors Following Postulated Accidents, *NUREG/CR-2601*, vol.1, 1982, 10p., <https://www.nrc.gov/docs/ML1402/ML14023A049.pdf>（参照：2022年3月31日）。

- [38] Kawamura, H., Yashio, S., McKinley, I. G., Decommissioning and Environmental Remediation Scenario Development for Fukushima Daiichi, TopSafe 2017, Vienna, Austria, 2017, TopSafe2017-A0012.
- [39] 東京電力ホールディングス株式会社, 福島第一原子力発電所 特定原子力施設に係る実施計画, 2.5 汚染水処理設備等,
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/implementation/pdf/2_2_5.pdf
(参照: 2022年3月31日) .
- [40] 東京電力ホールディングス株式会社, 福島第一原子力発電所 固体廃棄物の保管管理計画, ~2020年度改訂について~, 2020年7月30日,
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/07/3-4-2-1.pdf> (参照: 2022年3月31日) .
- [41] International Atomic Energy Agency, Decommissioning of Nuclear Power Plants and Research Reactors, Safety Guide, No. WS-G-2.1, 1999, 41p.
- [42] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構, 東京電力ホールディングス(株) 福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン 2020, 2020, 125p.

