

JAEA-Review 2023-027 DOI:10.11484/jaea-review-2023-027

# 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4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) – FY2022 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

**March 2024** 

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。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) 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(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) 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 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49 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.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2024

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4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

#### (2023年10月11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4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はじめとした 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、令和2年度に採択された研究課題のうち、「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2年度から令和4年度分の研究成果について取り まとめたものである。

本研究は、汚染水との接触により変質したと考えられる 1F の地下構造物コンクリートを対象とし、核種の移行挙動及び変質コンクリートの特性を評価し、その結果に基づいて核種移行モデルを構築してコンクリート廃棄物管理シナリオを評価する手法を構築することを目的とした。

収着及び拡散実験の結果、<sup>137</sup>Cs、<sup>125</sup>I、<sup>14</sup>C 等の放射性核種の健全・変質硬化セメントペースト (HCP)中の移行挙動は、核種及びその化学形に依存すること、鉄とセメント系材料が混在する系で は、高 pH では U はほとんどがセメント系材料に収着することが明らかになった。非破壊 CT-XRD 連成法及び NMR 測定の結果、溶脱試料の微細構造は、溶脱前の HCP の状態(炭酸化、水和度や Ca/Si 比等)の影響を受けることがわかった。また、イオン同時輸送モデルによるシミュレーションから、 骨材とセメントの境界に形成される遷移帯が溶脱の進行に影響を与える可能性が示唆された。

固体廃棄物貯蔵庫に保管されているガレキ類について、保管コンテナ外部の線量率測定データ からインベントリを推定するモデルを構築した。また、核種移行挙動に及ぼす溶脱変質の影響を 考慮して、1Fの地下コンクリート構造物内の放射性核種(<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、<sup>129</sup>I)の濃度分布を推定した。 さらに、重要核種である Pu 及び<sup>129</sup>I、<sup>14</sup>C については、その発生起源及び原子炉内でコンクリート に到達するまでの移行モデルを検討した。以上の結果に基づき、廃棄物管理シナリオを安全性、 経済性、実行可能性について比較・評価する手法を構築し、予備的な評価を実施したところ、安 全性、経済性については即時解体が、実行可能性については安全貯蔵が優位との比較評価を得た。

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

#### JAEA-Review 2023-027

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

- FY2022 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 October 11, 2023)

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 FY2022.

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 from FY2020 to FY2022.

The present study aims to understand migration behaviors of radionuclides in relation to the properties of concrete altered by leaching, to develop migration model of radionuclides, and to evaluate waste management scenarios, focusing on underground concrete structures in contact with contaminated water.

The results of diffusion and sorption experiments indicate that the migration of radionuclides <sup>137</sup>Cs, <sup>125</sup>I, and <sup>14</sup>C in altered/unaltered hardened cement paste (HCP) depends on nuclides and their chemical species, and also that when iron and cementitious materials co-exist, most of U sorbs onto cementitious materials under high pH conditions. Integrated CT-XRD method and NMR analysis revealed microstructures of leached HCP were influenced by the structures prior to leaching, including carbonation, degree of hydration, and Ca/Si radio. Simultaneous ion transport model simulations showed that transition bands between aggregates and HCP may affect the progress of leaching. A method to estimate radioactivity concentrations of concrete waste in storage facilities was developed using the radiation dose rate data. Radioactivity concentration profiles for <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>129</sup>I in underground concrete structures were modeled. In addition, transfer models Pu, <sup>129</sup>I and <sup>14</sup>C were also considered. Framework for evaluating different waste management scenarios was developed considering safety, cost, and feasibility. A preliminary analysis showed that immediate dismantling has advantages in safety and cost, while safe storage is advantageous in terms of feasibility.

Keywords: Concrete Leaching, Radionuclide Migration, Modeling, Waste Management Scenario 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
5.	令和3年度 採択課題 10
6.	令和4年度 採択課題 12
付给	録 成果報告書

#### Contents

1.	Outline of Nuc	lear Energy	Science &	Technology a	and Human	Resource	Development	Project
		•••••	•••••					1
2.	Accepted Propo	osal in FY20	18					2
3.	Accepted Propo	osal in FY20	19					5
4.	Accepted Propo	osal in FY20	20				••••••••••	8
5.	Accepted Propo	osal in FY20	21				••••••••••	10
6.	Accepted Propo	osal in FY20	22					12

Appendix	Result	Report	1	5
----------	--------	--------	---	---

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。

- 1 -

#### 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	山﨑 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
ー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 号機ペデ 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	渡邉 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	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合した 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 (~R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1~)	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	渡邉 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 ターベースの高度化	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 啓太朗	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	淺間 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

JAEA-Review 2023-027

#### 6. 令和4年度 採択課題

令和4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4年3月1日~令和4年5月6日(課題解決型) 令和4年4月7日~令和4年6月16日(国際協力型 日英共同研究)

課題数:8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)

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4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
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニ タの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3 次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利 用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技 術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射 線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシ ブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立 大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

#### 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
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの 開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ 微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の 探求	塚原 剛彦	東京工業 大学

本報告書は、以下の課題の令和2年度から令和4年度分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

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4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 R04I022)

## 成果報告書

# 令和5年3月

国立大学法人北海道大学

JAEA-Review 2023-027

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2年度から令和4年度分の 研究成果を取りまとめたものである。

### 目次

概略	ζ Ι	
1.	はじめ	に
2.	業務計	画2-1
2	.1 全体	本計画2-1
	2.1.1	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
	2.1.2	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 2-1
	2.1.3	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2-1
	2.1.4	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
	2.1.5	分担・推進体制2-1
2	.2 実が	極体制
2	.3 令利	n4年度の成果の目標及び業務の実施方法2-4
	2.3.1	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
	2.3.2	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2-4
	2.3.3	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
	2.3.4	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
	2.3.5	研究推進
3.	実施内	容及び成果
3.1	汚染オ	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
	3.1.1	令和3年度までの概要3-1
	3.1.2	令和4年度実施結果 [ <sup>137</sup> Cs、 <sup>125</sup> I及び <sup>14</sup> Cの移行挙動の解明]
	3.1.3	令和4年度実施結果 [Uの収着挙動]3-14
	3.1.4	令和4年度成果のまとめ3-29
3	.2 汚到	&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3年度までの概要3-31
	3.2.2	令和4年度実施結果[劣化・損傷コンクリートの安定性評価]3-33
	3.2.3	令和4年度実施結果 [C-S-Hの合成・物性評価] 3-40
	3.2.4	令和4年度実施結果「変質コンクリート系材料の物性評価]3-44
	3.2.5	令和4年度成果のまとめ3-46
3	.3 変質	雪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3年度までの概要3-48

3.3.2 令和4年度実施結果 [多核種移行モデルの構築・評価]	8
3.3.3 令和4年度実施結果 [移行モデルの検討]	8
3.3.4 令和4年度成果のまとめ3-6	0
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3-6	1
3.4.1 令和3年度までの概要3-6	1
3.4.2 令和4年度実施結果 [廃棄物管理に係るデータ整備]	1
3.4.3 令和4年度実施結果 [評価手法の検討]3-6	3
3.4.4 令和4年度実施結果 [シナリオの構築と評価]	1
3.4.5 令和4年度成果のまとめ3-8	3
3.5 研究推進	4
4. 結言	-1
参考文献5-	1

### 執筆者リスト

## 研究代表者

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
再委託先		
国立大学法人福井大学	畫師	川崎 大介

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

連携先

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	HCP 試料の溶脱に伴う固相特性の変化	 3-5
表 3.1-2	セメント系材料	 3-15
表 3.1-3	U収着実験条件	 3-15
表 3.1-4	U収着実験結果の概略	 3-16
表 3.1-5	粉末試料の BET 比表面積	 3-18
表 3.2-1	C-A-S-H 及び C-S-H の合成パラメータ	 3-32
表 3.2-2	コンクリートの主な入力値	 3-36
表 3.2-3	遷移帯の入力値	 3-36
表 3.2-4	C-A-S-H の合成パラメータ	 3-41
表 3.3-1	3号機建屋地下部のコンクリート分類	 3-56
表 3.3-2	汚染水に検出された <sup>14</sup> C 濃度	 3-58
表 3.3-3	照射した PWR 被覆管の浸漬における液相、気相への移行挙動	 3-59
表 3.4-1	3号機物量の推定	 3-63
表 3.4-2	固有毒性(Specific Toxic Potential)	 3-65
表 3.4-3	SED 指標算出に用いたパラメータ	 3-66
表 3.4-4	事故炉の解体費用の推定結果	 3-68
表 3.4-5	工程遅延に係るリスク項目(例)	 3-70
表 3.4-6	除染深さ	 3-73
表 3.4-7	廃棄物管理シナリオごとの廃棄物発生量	 3-74
表 3.4-8	3号機における主要な核種の放出量算定結果	 3-76
表 3.4-9	シナリオの比較(2)廃炉作業のコスト評価例	 3-78
表 3.4-10	AHP によるコスト評価例	 3-80
表 3.4-11	シナリオの比較(3)工程遅延リスクの評価例	 3-81
表 3.4-12	廃棄物管理シナリオの比較例	 3-83

図一覧

図 1.1-1	福島第一原発(1F)における放射性廃棄物管理の枠組み		1-1
図 1.1-2	本研究の実施内容		1-2
⊠ 2.1-1	全体工程表		2-2
⊠ 2.1-2	実施体制図		2-3
図 3.1-1	透過型拡散実験の体系の模式図		3-5
⊠ 3.1-2	HCP(未溶脱及び溶脱)試料の細孔径分布		3-6
⊠ 3.1-3	HCP 及び合成水和物への $^{137}$ Cs の $K_d$ の温度依存性		3-7
⊠ 3.1-4	溶脱 HCP 試料中の <sup>137</sup> Cs の拡散実験結果例		3-8
図 3.1-5	HCP 試料中の <sup>137</sup> Cs の見かけの拡散係数(D <sub>a</sub> )の温度依存性		3-9
図 3.1-6	HCP 試料中の <sup>125</sup> I の拡散実験結果例		3-10
図 3.1-7	HCP 試料中の <sup>125</sup> I の見かけの拡散係数(Da)の温度依存性		3-10
図 3.1-8	HCP 試料中の酢酸イオン( <sup>14</sup> C)の拡散実験結果例		3-12
図 3.1-9	HCP 試料中の酢酸イオン( $^{14}$ C)の見かけの拡散係数( $D_a$ )の温度依存性		3-12
図 3.1-10	HCP(未溶脱)試料からの酢酸イオン( <sup>14</sup> C)の破過曲線		3-13
図 3.1-11	HCP(未溶脱)試料中の酢酸イオンの D <sub>e</sub> (a)及び K <sub>d</sub> (b)の温度依存性		3-13
⊠ 3.1-12	合成したフェリハイドライトの XRD		3-15
図 3.1-13	C-S-H 0.83 粒子の SEM 像		3-18
図 3.1-14	ゲーサイト粒子の SEM 像		3-20
図 3.1-15	ゲーサイト―セメント No. 1 混合試料を用いた U 収着実験(実験		0.01
	5) 後のセメント粒子の SEM-EDX 分析(その 1)	••••	3-21
図 3.1-16	ゲーサイト―セメント No. 1 混合試料を用いた U 収着実験(実験		0 00
	5) 後のセメント粒子の SEM-EDX 分析(その 2)	• • • •	3-22
図 3.1-17	ゲーサイト—C-S-H 1.00 混合試料を用いた U 収着実験(実験 6)		0 00
	後の C-S-H 粒子の SEM-EDX 分析	• • • •	3-23
図 3.1-18	調製したフェリハイドライト		3-25
図 3.1-19	フェリハイドライト―セメント No. 1 混合試料を用いた U 収着実験		2.96
	(実験 7)後のフェリハイドライト粒子の SEM-EDX 分析	• • • •	3-20
⊠ 3.1-20	フェリハイドライト―C-S-H 1.00 混合試料を用いた U 収着実験		0.07
	(実験 8)後のフェリハイドライト粒子の SEM-EDX 分析	• • • •	5-27
⊠ 3.1-21	フェリハイドライト―C-S-H 1.00 混合試料を用いた U 収着実験		
	(実験 8)後、フェリハイドライト粒子の大部分を自然沈降させた		3-28
	後に回収した液相に含まれていた粒子の SEM-EDX 分析		
⊠ 3.2-1	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)		3-32
⊠ 3.2-2	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 ℃)		3-32
図 3.2-3	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		3-33
図 3.2-4	プッシュ缶を用いた炭酸化試験		3-34

図 3.2-5	溶出に及ぼす炭酸化の影響	 3-35
図 3.2-6	模擬計算の解析モデル	 3-35
図 3.2-7	水酸化カルシウムの濃度分布	 3-37
図 3.2-8	溶脱に及ぼす遷移帯の影響	 3-37
図 3.2-9	塩化物イオンの浸透状況	 3-38
図 3.2-10	フライアッシュ再生骨材コンクリートの圧縮強度試験結果	 3-39
図 3.2-11	300 サイクル終了後の耐久性指数	 3-40
図 3.2-12	合成 C-A-S-H 及び kaolinite の XRD プロファイル	 3-41
図 3.2-13	合成 C-A-S-H(A)及び kaolinite(B)の <sup>29</sup> Si NMR スペクトル	 3-42
⊠ 3.2-14	合成 C-A-S-H(A)及び kaolinite(B)の <sup>27</sup> Al NMR スペクトル	 3-42
図 3.2-15	kaolinite の <sup>29</sup> Si- <sup>27</sup> Al 多重核磁気共鳴スペクトル	 3-43
図 3.2-16	合成 C-A-S-H の <sup>29</sup> Si- <sup>27</sup> Al 多重核磁気共鳴スペクトル	 3-43
図 3.2-17	C-A-S-H の微細構造モデル例	 3-43
図 3.2-18	硝酸アンモニウム溶液及び中性化によって変質させたコンクリート	
	中のHCPの <sup>29</sup> Si MAS NMR(A~C)及び <sup>27</sup> A1 MAS NMR スペクトル	
	$(D \sim F)$	 3-46
⊠ 3.3-1	コンテナ内部の瓦礫のモデル化	 3-49
⊠ 3.3-2	コンテナ内部の線源モデル : 均一線源モデル(左), 不均一線源	
	モデル (右)	 3-49
⊠ 3.3-3	瓦礫重量のヒストグラムと線量率 - 線源強度換算係数の例	 3-50
図 3.3-4	均一線源モデルで得た <sup>137</sup> Cs 濃度のヒストグラム	 3-50
図 3.3-5	誤差の検討に用いた不均一な線源の設定	 3-52
図 3.3-6	インベントリ推定値と真値の比	 3-52
図 3.3-7	線源領域番号と誤差の傾向に基づく線源領域の分類	 3-52
図 3.3-8	3 号機地下部のコンクリート構造物の分類(垂直断面図)	 3-54
図 3.3-9	3 号機地下部のコンクリート構造物の分類(平面図)	 3-55
図 3.3-10	放射性核種の濃度分布評価結果	 3-57
図 3.3-11	瓦礫類の <sup>14</sup> Cと <sup>60</sup> Co濃度の相関	 3-58
図 3.3-12	汚染水に検出された <sup>14</sup> Cと <sup>60</sup> Co 濃度の相関	 3-59
図 3.3-13	事故の進展において重要と考えられる <sup>14</sup> C の移行経路	 3-60
図 3.4-1	想定した除染・解体作業の順序	 3-62
図 3.4-2	コンクリート構造物の解体と廃棄物の管理シナリオ	 3-64
図 3.4-3	処理工程の進展による SED 指標の減少例(熱遮蔽体)	 3-66
図 3.4-4	米国 NRC の評価における即時解体(DECOM)の工程	 3-68
図 3.4-5	廃棄物管理シナリオ検討のために想定した工程	 3-72
図 3.4-6	廃棄物管理シナリオ評価の基本的な考え方	 3-73
図 3.4-7	仮定した核種の移行割合	 3-76
図 3.4-8	シナリオの比較(1)SED 指標及び廃棄物量の経時変化	 3-77
図 3.4-9	AHP によるコスト評価の階層	 3-79

略語一覧

北海道大学	: 国立大学法人北海道大学
電力中央研究所	: 一般財団法人電力中央研究所
JAEA	: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
福井大学	: 国立大学法人福井大学
原子力学会	: 一般社団法人日本原子力学会
CLADS	: 廃炉環境国際共同研究センター
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
НСР	: 硬化セメントペースト
C-S-H	: カルシウムシリケート水和物
С-А-Ѕ-Н	: カルシウムアルミニウムシリケート水和物
M-S-H	: マグネシウムシリケート水和物
СН	: 水酸化カルシウム
$K_d$	: 収着分配係数
$D_a$	: 見かけの拡散係数
$D_e$	: 実効拡散係数
$E_a$	: 活性化エネルギー
$\Delta H$	: エンタルピー
IP	: イメージングプレート
SEM-EDX	: エネルギー分散型 X 線分析付き走査電子顕微鏡
СТ	: コンピュータトモグラフィ
XRD	: X 線回折
NMR	: 核磁気共鳴
RHP	: Radiological Hazard Potential (潜在的な放射線的危険度)
SED	: Safety and Environmental Detriment(安全性、環境への損傷)

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うえ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。

変質コンクリートの核種移行に関して、令和 2~3 年度には、I<sup>-</sup>の硬化セメントペースト(以 下、「HCP」と略す。)試料への収着は期間が増加すると収着分配係数(以下、「Ka」と略す。) が増加すること、HCP 試料に比べてカルシウムシリケート水和物(以下、「C-S-H」と略す。)及 びカルシウムアルミニウムシリケート水和物(以下、「C-A-S-H」と略す。) 試料への収着は大 幅に小さいこと、また、HCP 中の拡散は、自由水中の I-の拡散と類似した機構であることが示唆 された。<sup>137</sup>Cs に関しては、硝酸アンモニウム溶液との接触で溶脱を模擬した場合、Ca 溶脱に伴 いKaは増加傾向を示すこと、拡散試験ではHCP試料の溶脱変質が進行した部分に<sup>137</sup>Csが濃集し、 拡散係数が低下することを明らかにした。また、<sup>14</sup>C については、HCP 試料中の炭酸イオンの見か けの拡散係数(以下、「Da」と略す。)は極めて低く、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こと、一方で、酢酸イオンの Daは 10<sup>-12</sup>~10<sup>-11</sup> m<sup>2</sup>・s<sup>-1</sup>のオーダーであ り、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、<sup>14</sup>C はその化学形によって移行 挙動が大きく異なることが示された。さらに、腐食した鉄骨あるいは鉄筋を模擬し、コンクリー トと接した水の pH である pH 12 付近を中心に、酸化鉄粉末試料、セメント系材料、それらの混 合試料に対して U の収着実験を行った結果、全てのセメント系材料及びセメント-ヘマタイト混 合試料で Kaは 10<sup>4</sup> L・kg<sup>-1</sup>以上と非常に高く、また、Uのほぼ全てがヘマタイトでなくセメントに 収着したと考えられた。

令和4年度には、溶脱 HCP 試料での<sup>137</sup>Cs について拡散の活性化エネルギー(以下、「 $E_a$ 」と略 す。)及び収着のエンタルピー(以下、「 $\Delta H$ 」と略す。)を決定した結果、それらの和が自由 水中の Cs<sup>+</sup>イオンの拡散の  $E_a$ と一致し、<sup>137</sup>Cs は主に溶脱試料の内部間隙中の自由水中を、収着に よる遅延を受けながら拡散している可能性が示唆された。また、<sup>125</sup>I(I<sup>-</sup>イオン)は、未溶脱試 料への収着が認められた一方で、溶脱試料への収着は認められなかった。<sup>125</sup>I は溶脱処理をして いない健全試料ではセメント試料の間隙内部の自由水中を収着による遅延を受けながら拡散して いるが、溶脱試料では健全試料とは異なるプロセスで拡散している可能性が示唆された。さらに、 健全 HCP 試料を用いた酢酸イオン形の<sup>14</sup>C の透過型拡散試験では、実効拡散の  $E_a$ が自由水中の拡 散の  $E_a$ の値より高くなったことから、酢酸<sup>14</sup>C は自由水中とは異なるプロセスで拡散しているこ とが示唆された。一方、溶脱試料では酢酸イオン形の<sup>14</sup>C は破過せず、溶脱が<sup>14</sup>C の移行挙動に影 響を及ぼすことが明らかになった。酸化鉄粉末試料(ヘマタイト、ゲーサイト、フェリハイドラ イト)- セメント系材料(健全 HCP、C-S-H)混合試料でのU収着実験より、平衡 pH が 8 と低く なったフェリハイドライト粒子には U の収着が認められたものの、全ての実験でほぼ全て(> 99.8%)のU が固相に収着した。

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とし、劣化・損傷コンクリートの 安定性評価に関しては、令和 2、3 年度に、セメントペースト及び骨材から成るコンクリート供 試体を溶出した試料を X 線コンピュータトモグラフィ(以下、「CT」と略す。)を用いて測定し、 その結果に基づいて既存のイオン同時輸送モデル SiTraM を改良してシミュレーションを実施し た。溶脱領域では水酸化カルシウム量が減少し、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が模擬され、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による模擬計算により定量化が可能であると考えられ た。さらに、コンクリートの再利用を模擬し、破砕処理回数を変えた破砕骨材の粒度分布、吸水 率、密度を調べた。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結果、溶出試験期間の増加とともに密度は低下した。これは、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。C-S-H の合成・物性評価に関 しては、Ca/Siを1.4、1.0及び0.83としてC-S-Hの合成を行い、その微細構造の評価のために、 <sup>29</sup>Si及び<sup>27</sup>A1を測定対象核として核磁気共鳴(以下、「NMR」と略す。)測定を実施した。また、 <sup>29</sup>Si の含有率を高めた合成 C-A-S-H の微細構造解析のため、二重核磁気共鳴測定を実施し、三重 核磁気共鳴のための測定パラメータの最適化を実施した。さらに、変質セメント系材料の物性評 価として、解体後回収したコンクリート(材齢 50 年以上)に含有される C-S-H の微細構造評価 のため、ブロモホルムによって調製した重液を用いて骨材成分とセメントペースト分を分離して C-S-H 及び C-A-S-H を抽出し、<sup>29</sup>Si を測定対象核として NMR 測定を実施した。

令和4年度には、劣化・損傷コンクリートの安定性評価として、経年劣化を模擬した促進炭酸 化試料に対して溶脱試験を行い、炭酸化した HCP はカルサイトの生成が認められ、炭酸化なしの 試料と比較して水酸化カルシウムの溶出フロントが明確でないなど溶脱挙動が異なることがわか った。また、遷移帯の空隙構造がポーラスであり、水酸化カルシウムの溶出や塩化物イオンの移 動が速く進行することがシミュレーションによって示された。さらに、粗骨材の一部をL再生粗 骨材相当のコンクリート塊で置換した再生骨材コンクリートにおいては、圧縮強度は低下傾向で あるのに対し、凍結融解試験後の耐久性指数は同程度であることがわかった。一方、合成 C-A-S-H の微細構造解析のため多重核磁気共鳴測定を実施し、結晶性の高い kaolinite からは Si と AI の共鳴が見られた一方で、C-A-S-H では同様の共鳴は示されなかったことから、C-S-H の微細構 造はモデルで考えられている以上に非晶質的で、Si と AI の酸素原子を介した σ 結合は必ずしも 担保されていない可能性が示唆された。材齢 50 年以上のコンクリート試料及び HCP 試料につい て溶脱、炭酸化等の劣化処理を行い、<sup>29</sup>Si 及び <sup>27</sup>AI を測定対象核とした NMR 測定により微細構造 を評価した。溶脱の程度が軽い場合にはシリカゲル様の構造への変質度合い等の微細構造に差異 が出たが、これは劣化処理前の水和度や Ca/Si 比が異なるためと考えられた。

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として、これまでに滞留水中に 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。また、放射性廃棄物物量の推計では、コンクリートブロッ ク内の放射性核種の濃度分布を推計した。また、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。さらに、Pu及び<sup>129</sup>I、<sup>14</sup>Cについて放射性核種がコンク リートに到達するまでの過程を対象として移行挙動のモデルを検討した。Puについてはそのほと んどが損傷した燃料に残留しており、滞留水への溶出は今後も継続していくこと、滞留水中のス ラッジには Pu が濃集していること、Pu はコンクリートに吸着するが浸透はしないことなどが推察された。また、<sup>129</sup>Iの汚染水への移行は、Cs などの核種と同様、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考えられた。<sup>14</sup>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、特に窒素(N)の量の把握が重要となることがわかった。

令和4年度には、固体廃棄物貯蔵庫のコンテナ内部の放射能インベントリを算出するモデルを 構築し、コンテナ外部の線量率測定データからコンテナ内部のコンクリート瓦礫の放射能インベ ントリを推定する手法を構築した。コンテナ内における不均一な線源分布に由来する誤差を、コ ンテナ側面での線量測定結果のばらつきに基づき評価することが可能となった。また、滞留水中 のコンクリート構造物中の放射性核種濃度分布については、構造物の厚さや形状、滞留水中の核 種濃度を考慮して、場所に応じてコンクリートを分類し、対象となる汚染コンクリートの物量を 整理した。溶脱を考慮したコンクリート構造物内の放射性核種濃度分布を推定した。さらに、<sup>14</sup>C のソースタームに関し、瓦礫中の<sup>14</sup>C は <sup>60</sup>Co との相関がある可能性が考えられ、これは原子炉の 運転中にこれら核種が被覆管に生成あるいは移行する挙動と矛盾しない。水へ移行する<sup>14</sup>C の化 学種は無機とともに有機物を考慮して検討する必要があることがわかった。

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としては、こ れまでに、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、シナリオ構成要素に係る留意事項や物量等の必要な情報を収集・整理した。また、英 国原子力廃止措置機関(以下、「英国 NDA」と略す。)が開発した潜在的な放射線的危険度

(Radiological Hazard Potential、以下、「RHP」と略す。)や安全性、環境への損傷(Safety and Environmental Detriment、以下、「SED」と略す。)指標を参考に、シナリオ評価への適用 性を検討した。これにより、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洩防止 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。

令和4年度には、1F3号機を廃棄物管理に係る評価の対象と設定し、原子炉建屋、タービン建 屋等を領域に分割し、それぞれの領域の物量等を推定するとともに、解体工法、解体工程及び想 定した時間軸を当てはめ、廃棄物管理のシナリオを設定した。また、コンクリート廃棄物の発生 から処理、処分までを俯瞰した4つのシナリオに基づいて、RHP値及びSED指標の値を算出した。 続いて、シナリオの特性及び優先度を分析するために、安全性、経済性、実行可能性の観点から SED指標、コスト、廃棄物量、工程遅延リスクの項目について、安全貯蔵の有無、地下構造物の 原位置管理を含むこれらのシナリオについて、意思決定における単純加算法を用いて半定量的に 評価を実施した。総合評価は評価項目の重みづけに依存すること、評価に用いたデータの拡充が 必要であるため、本検討の評価は予備的であるが、時間軸が長くなる場合(安全貯蔵を含むシナ リオ)は実行可能性において有利となる一方、安全性及び経済性において不利となることがわか った。以上の結果より、廃棄物管理を含む 1F 廃炉を持続的に進めていくうえで、将来の状況を 定量的に分析し、廃棄物管理を着実に進めるための条件を検討・抽出することが重要と考えられ た。

前年度までの成果報告書:

JAEA-Review 2022-038

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 https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-038 JAEA-Review 2021-070

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 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 ト構造物の解体から最終処分までの一連の枠組み(図 1.1-1)を俯瞰して、それらを合理的に行う ことが重要である。



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、タービン建屋の地下構造物の解体 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、 地下構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、地下構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、コンクリート構造物の性状把握・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り、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 HCP 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、<sup>137</sup>Cs 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-X 線 回折(以下、「XRD」と略す。)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 核磁気共鳴法によって、H-Si-A1 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<sup>137</sup>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経由した移行の評価 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、放射能レベル区分ご と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 1.1-2 に示す。



図 1.1-2 本研究の実施内容

令和4年度は、これまでの成果を踏まえ、拡 散係数の温度依存性より求めた拡散の活性化 エネルギーから支配的な拡散プロセスを推定 した。また、収着による遅延効果も考慮に入 れた移行モデルを検討した。鉄酸化物試料と セメント構成成分試料の混合相への U 収着分 配を明らかにした。

経年劣化を模擬した促進炭酸化試料に対し て溶脱試験を行い、炭酸化が硬化体の変質に 及ぼす影響を調べた。また、骨材とセメント ペーストの遷移帯におけるカルシウムイオン と塩化物イオンの同時輸送をシミュレートし

た。さらに既存コンクリート構造物を破砕したコンクリート塊を粗骨材として用いることで、こ れらをセメント固化して作製した再生骨材コンクリートの強度と耐久性を明らかにした。一方、 C-A-S-Hの物性評価のため、<sup>29</sup>Siを95%以上に濃縮した試薬を用いて C-A-S-H を合成し、多重核磁 気共鳴によりその微細構造解析を試みた。中性化や溶脱によって劣化したコンクリートから重液 分離法等によって C-(A-)S-H を抽出し微細構造等の物性評価を行うとともに、劣化コンクリート と健全コンクリートの物性を比較し、核種移行の差をもたらす要因を整理した。

これらの情報に基づき、複数の核種の放射能濃度分布を評価するため、多核種移行モデルを構築して、区分ごとの廃棄物量を推計した。この際、コンクリートの性状や初期汚染濃度等の与条件は固体ごとに異なり、分布を持つと想定されることから、想定した分布を考慮したコンクリート物量の推計を行った。また、核種の移行挙動モデルに関して、令和4年度には、<sup>14</sup>Cの滞留水を経由した移行を検討した。

廃棄物管理シナリオ評価のため、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)の複数の選択肢に対し、時間軸を想定した解体工程を設定するとともに、 コンクリート構造物の解体及び廃棄物の貯蔵・管理に関する情報を整理した。令和3年度の検討 結果に基づき、英国 NDA が開発した SED 指標をもとにした安全性、コスト、工程遅延リスク、作 業者の被ばく等を半定量的に評価する手法を取りまとめ、それらの手法により、各シナリオの評 価を実施した。また、評価結果をもとに、各シナリオを比較し、廃棄物管理の利点・課題を整理 するとともに、最適なシナリオを選択する方法論に係る検討を行った。

- 2. 業務計画
  - 2.1 全体計画

本研究では、研究期間の3年間に、1Fの原子炉建屋及びタービン建屋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ごと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。

2.1.1 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 HCP 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。

2.1.2 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 三重核磁気共鳴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。

2.1.3 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。

2.1.4 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。

2.1.5 分担·推進体制

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、特性評価は国立大学法人北海 道大学(以下、「北海道大学」と略す。)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 IF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。

本研究の全体工程を図 2.1-1 に示す。

年度 項目	令和2年度	令和3年度	令和4年度
(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	1の拡散・収着試験・ 電子顕微鏡導入	FP核種・C-14の拡散・収着実験、 電子顕微鏡観察	収着・拡散実験、 支配的拡散機構の解明
(北海道大学、原子力機構)	鉄酸作物	のU収着実験・電子職衆鏡観察	鉄酸化物・セメント混合相への 以収発実験
(2) 汚染水との接触により変質したコンクリートの特性評価	試料の提供	物性評 の SPring-8 (ことみ非正確CT-YPA)調成は、	面データ 提供 第一 第一 第一 学の 満世
<ol> <li>劣化・損傷コンクリートの安定性評価 (北海道大学)</li> </ol>	変質・破砕試料の準備	界面夏賀を動の分析	副修体の特性評価
<ol> <li>C-S-Hの合成・物性評価</li> </ol>	O-S-Hの合成・提供	C-S-H および D-A-S-Hの合成	*- 44-44 +T /T
<ul> <li>(電力中央研究所)</li> <li>(3) 変質セメント系材料の物性評価</li> <li>(電力中央研究所)</li> </ul>	依相相違以外の初注評領		U物性評価 费利得這去了15物性評価
(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	<u>ድሥ-መመጋን / 201- ከው</u> ወ	拡散・収着データの提供	拡散・収増 データの 提供 物計動事業等の
<ol> <li></li></ol>	核種移行モデルの構築	多機種の局所に濃度分布推定 不高い性評価	廃棄物量の批計 取りまとめ
<ol> <li></li></ol>	データ提供 Puの挙動	データ提供 1挙動・C-14放射剤	
(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	虔奎物特性	放射能濃度分布 データの提供 ・解体工程調査・データベース化	廃棄物物量 推計データ の提供
<ol> <li>廃棄物管理に係るデータ整備 (北海道大学、福井大学)</li> </ol>	<	÷ >	廃棄物管理課題の整理 取りまとる
<ul> <li>② 評価手法の検討 (福井大学)</li> </ul>	潜在的放射線リス	ク評価手法、不確実性評価手法の権利	
<ol> <li>シナリオの構築・評価 (北海道大学、福井大学、原子力機構)</li> </ol>	シナリオ要素の抽出 中長期ロードマッ	・シナリオの構築・ ブ等の情報整理 ・	(集・ )整理 シナリオ評価・取りまとめ
(5) 研究推進	<b>«</b>	研究計画の協議・進捗確認	全体取りまとめ

題目 「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」 年度別全体計画

図 2.1-1 全体工程表

2.2 実施体制

実施体制を図 2.1-2 に示す。



図 2.1-2 実施体制図

2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.3.1 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 HCP 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 らの<sup>125</sup>I、<sup>137</sup>Cs、<sup>14</sup>C を対象とした実験を継続し、拡散係数の温度依存性より求めた拡散の活 性化エネルギーから支配的な拡散プロセスを推定する。収着実験は、複数の鉱物が共存した 系においても実施する。最終年度は以上の結果をまとめて、収着による遅延効果も考慮に入 れた移行モデルの構築を図る。

鉄酸化物試料とセメント構成成分試料の混合相への U 収着実験を行う。固相の組み合わせ、 及び混合比をパラメータとしたときの U 収着量の変化とともに、電子顕微鏡による U 分布を 調べる。

- 2.3.2 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
  - (1) 劣化・損傷コンクリートの安定性評価

経年劣化を模擬した促進炭酸化試料に対して溶脱試験を行い、炭酸化が硬化体の変質に 及ぼす影響を調べる。また、硬化体中の骨材周辺とペースト部との空隙構造を比較して、 これらを入力情報として、カルシウムイオンと塩化物イオンの同時輸送をシミュレートす る。さらに、既存コンクリート構造物を破砕したコンクリート塊を粗骨材として用いるこ とで、これらをセメント固化して作製した再生骨材コンクリートの強度と耐久性を明らか にする。

C-S-Hの合成・物性評価

天然存在比が低い<sup>29</sup>Siを95%以上に濃縮した試薬を用いて C-A-S-H を合成する。合成した C-A-S-H を用いて多重核磁気共鳴による構造解析を試みる。

(3) 変質セメント系材料の物性評価

中性化や溶脱によって劣化したコンクリートから重液分離法等によって C-(A-)S-H を抽 出し微細構造等の物性評価を行う。劣化コンクリートと健全コンクリートの物性を比較し、 核種収着性の差をもたらす要因を整理する。

- 2.3.3 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
  - (1) 多核種移行モデルの構築・評価

複数の核種の放射能濃度分布に基づき、区分ごとの廃棄物量を推計する。また、瓦礫等 の形状や大きさを考慮して、放射能濃度に対応したコンクリート物量を算出するモデルを 作成する。コンクリートの性状や初期汚染濃度等の与条件は固体ごとに異なり、分布を持 つと想定されることから、想定した分布を考慮したコンクリート物量の推計を行う。

(2) 移行モデルの検討

核種の移行挙動モデルに関して、<sup>14</sup>Cの滞留水を経由した移行を検討する。

- 2.3.4 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
  - (1) 廃棄物管理に係るデータ整備

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)の複数の選択肢に対し、解体工法の調査結果を当てはめて解体工程を設定する。また、設定した解体工程に時間軸を想定して当てはめ、コンクリート構造物の解体及び廃棄物の貯蔵・ 管理に関する情報を整理する。

(2) 評価手法の検討

令和 3 年度の検討結果に基づき、英国 NDA が開発した SED 指標のうちの RHP (Radiological Hazard Potential)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する。それらの指標をもとに、潜在的放射線リスク、コ スト、工程遅延リスク、作業者の被ばく等を半定量的に評価する手法を取りまとめる。

(3) シナリオの構築・評価

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)の複 数の選択肢を組み合わせ、解体工法・解体工程の調査結果に基づいて全体工程及び時間軸 を検討する。潜在的放射線リスクの時間変化や放射性廃棄物の発生量、発生タイミングな どについて各シナリオの評価を実施する。評価結果をもとに、各シナリオの比較から、廃 棄物管理の利点・課題を整理するとともに、最適なシナリオを選択する方法論に係る検討 を行う。

2.3.5 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3年度までの概要[1、2]
    - (1) <sup>137</sup>Cs、<sup>125</sup>I及び<sup>14</sup>Cの移行挙動の解明

令和2年度には、HCP 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。 <sup>137</sup>Cs 及び<sup>125</sup>Iをトレーサーとし、一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*D*aを求め、拡散係数の温度依存性から拡散の*E*a 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 HCP 試料では、固相からの Ca の 溶脱に伴って <sup>137</sup>Cs の収着分配係数( $K_d$ )が増加した。溶脱セメント試料中の <sup>137</sup>Cs の拡散実 験では、溶脱変質が進行した部分に <sup>137</sup>Cs が濃集し  $D_a$ は低下することが明らかになった。 HCP 試料中の <sup>125</sup>I の  $K_d$ は収着期間の増加に伴い増加した。一方、<sup>125</sup>I の  $E_a$ は、自由水中の I<sup>-</sup>の  $E_a$ と近い値を示したことから、HCP 試料中の I<sup>-</sup>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。

令和3年度には、模擬変質試料中の<sup>137</sup>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<sup>137</sup>Csの見かけの拡散係数 $D_a$ は4.4×10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>、NaI(T1) シンチレーションカウンタを用いた測定では3.1×10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>となり、両者はほぼ一致し たことから、より簡便な IPを用いた方法により $D_a$ を決定可能と判断した。一方、HCP 試 料への I<sup>-</sup>の K<sub>d</sub>は約 400~600 L·kg<sup>-1</sup>であり、K<sub>d</sub>の温度依存性から決定した収着の  $\Delta$ Hの値 より、I<sup>-</sup>の収着は吸熱反応であることが示唆された。HCP 試料への I<sup>-</sup>の K<sub>d</sub>に比べて、C-S-H 及び C-A-S-H 試料への I<sup>-</sup>の K<sub>d</sub>値は5 L·kg<sup>-1</sup>と大幅に低く、試料により主要な収着機構が 異なることが示唆された。<sup>14</sup>C の移行挙動に関して、非定常拡散実験及び透過型拡散実験 を開始した。未溶脱の HCP 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 示唆された。一方で、未溶脱 HCP 試料中の酢酸イオンの見かけの拡散係数は 6.2×10<sup>-12</sup>~ 1.4×10<sup>-11</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>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、<sup>14</sup>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。

(2) Uの収着挙動

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pH12付近を中心に行った。

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 $K_d$ は全て $10^4$ L·kg<sup>-1</sup>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 $1x10^2$ L·kg<sup>-1</sup>と低かった。収着前後で固相の変化 は認められなかった。 3.1.2 令和4年度実施結果[<sup>137</sup>Cs、<sup>125</sup>I及び<sup>14</sup>Cの移行挙動の解明]

(1) 概要

令和4年度は、令和3年度以前と同様の方法で調製した HCP 試料及び硝酸アンモニウム 溶液により溶脱変質処理した試料の他に、新たに人工海水及びイオン交換水への浸漬によ り溶脱処理した試料を作製した。これらの未溶脱(健全)及び溶脱変質試料に対して、FP 核種として<sup>137</sup>Cs 及び<sup>129</sup>I(実験には<sup>125</sup>Iを代用)をトレーサーとした一次元非定常拡散法 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。収着実験では、合成水和物試料 を実験対象に加え、核種の収着メカニズムを明らかにするため、新たに収着温度をパラメ ータとして試験を実施した。また、放射化生成核種である<sup>14</sup>Cの非定常拡散実験及び透過 型拡散実験を実施した。

(2) 試料及び方法

① HCP 及び模擬溶脱変質試料ならびに合成水和物試料の調製

普通ポルトランドセメントとイオン交換水を、水セメント比(w/c比) 0.36 で混錬後、 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、HCP 試 料を調製した[1]。この試料を、縦 19 mm×横 40 mm×厚さ 5 mmの薄片状に切り出した ものを「未溶脱試料」とする。また、円柱状の HCP 試料を粉砕後、ふるい分けにより粒 径 46~75 µm 画分を選別した試料を「未溶脱粉末試料」とする。

次に、IF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、HCP 試料を異なる組成の溶液に浸漬することにより溶脱処理を実施した。本研究の溶脱処理には、硝酸アンモニウム (NH4N03) 溶液、人工海水、またはイオン交換水を用いた。NH4N03 溶液による溶脱処理は、調製した HCP(未溶脱試料)のサイズが 19 mm×40 mmの2面を、NH4N03 溶液に接触・浸漬させることにより行った。ここでは、溶脱変質の進行したコンクリート中のセメントペーストを模擬するため、既往の研究において、6 mol・L<sup>-1</sup> NH4N03 溶液による溶脱処理により HCP を構成するポルトランダイト及び C-S-H 中の Ca 成分がほぼ全量溶解したとの報告(例えば、[3])に基づき、本研究の溶脱条件を、NH4N03 溶液濃度 6 mol・L<sup>-1</sup>、浸漬期間7日間とした。なお、浸漬の際、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、事前にエポキシ樹脂で覆った。浸漬期間終了後、試料中の過剰なNH4N03を除くため、試料をセメント平衡水に3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水分飽和させた。なお、セメント平衡水には、普通ポルトランドセメントとイオン交換水を、質量比1:10 で混合後撹拌し、2日以上置いた後に孔径 0.45 µm のフィルタによりろ過して得た液相を用いた(以下同様)。

用いた人工海水は、市販の合成試薬(マリンアート SF-1、富田製薬製)を所定量の イオン交換水に溶解させることで調製した。浸漬期間は、NH4NO3溶液では7日、人工海 水では24日間、イオン交換水では54日間とし、人工海水及びイオン交換水による溶脱 処理では、浸漬期間中1日ごとに液相を新たな溶液と交換した。いずれの処理とも、浸 漬期間終了後に、固相試料をセメント平衡水に3日間浸漬した後、真空乾燥した。なお、 浸漬処理はいずれも298 K 一定の条件で実施した。

また、核種の収着実験に用いるため、以下の合成水和物試料を調製した。調製した試料は、一般にHCPの主要な構成水和物の一つである C-S-H 及び海水等による溶脱変質に伴い HCP 中において生成が報告されているマグネシウムシリケート水和物(以下、「M-S-H」と略す。)である。合成 C-S-H 試料の調製には、Ca 源として Ca (OH)2 (高純度化

学研究所製、純度 99%以上)、Si 源として親水性ヒュームドシリカ(アエロジル社製、 AEROSIL®380)及び超純水を用いた。Ca/Si モル比 0.8 及び液固比 80 の条件で秤量した 各試薬を、2 L のポリエチレン製容器内に全体量が 1.5 L になるよう混合した後、20 ℃ 環境下にて調製を行った。合成期間は 1 週間とした。合成 M-S-H 試料の調製には、Mg 源 として MgO(高純度化学研究所製、純度 99.99%以上)、Si 源として親水性ヒュームドシ リカ(アエロジル社製、AEROSIL®200)及び超純水を用いた。Mg/Si モル比 1.7 及び液固 比 80 の条件で秤量した各試薬を、2 L のポリエチレン製容器内に全体量が 1.5 L になる よう混合した後、20 ℃環境下にて調製を行った。M-S-H の合成には長時間を要すること が報告されているため、本研究では合成期間を4年5ヶ月とした。合成 C-S-H 及び M-S-H 試料いずれも、合成期間終了後、混合液を吸引濾過することにより固液分離した後、 D-Dry 乾燥を行った固相を収着試験用の試料とした。なお、以上の合成水和物の調製は、 電力中央研究所にて行った。

## HCP 試料の特性評価

未溶脱及び溶脱 HCP 試料の一部をセメント平衡水中に浸漬・飽和させた後に真空乾燥 を行い、乾燥前後の質量差及び試料サイズから、空隙率及びかさ密度を決定した。未溶 脱及び溶脱試料中の空隙径別の空隙容積分布を、水銀圧入法(AutoPore V9600、 Micromeritics 製)を用いて測定した。また、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。 JCM-7000 NeoScope<sup>™</sup>、 日本電子株式会社)観察 を行い、溶脱試料の固相中の Ca 及び Si 含有量を決定した。

③ <sup>137</sup>Cs の収着・拡散実験

<sup>137</sup>Csをトレーサーとしてバッチ式収着実験を行った。固相には、溶脱 HCP 粉末試料な らびに合成水和物試料を用いた。溶脱 HCP 試料は、(2)①において 6 mol・L<sup>-1</sup> NH4N0<sub>3</sub> 溶 液、人工海水またはイオン交換水に浸漬することで溶脱処理した試料を使用した。合成 水和物試料には、本研究において電力中央研究所にて Ca/Si 比が 0.8 の条件で合成した C-S-H 及び Mg/Si 比が 1.7 の条件で合成した M-S-H 試料を使用した。液相には、日本ア イソトープ協会から購入した <sup>137</sup>CsCl 溶液(製品コード 6137、Eckert & Ziegler 製)を 分取し、セメント平衡水と混合し、<sup>137</sup>Cs 濃度が約 100 kBq・L<sup>-1</sup> となるように希釈・調製 した溶液を用いた。この液相中の Cs 濃度は  $2 \times 10^{-10}$  mol・L<sup>-1</sup>であった。固相と液相を固 液比 1:100 の条件で混合し、所定の収着温度(288、298、313 及び 323 K) で 28 日間振 とうさせた。その後、遠心分離及び上澄み液のろ過により固液分離を行い、NaI(T1)シ ンチレーションカウンター(2480 Wizard2、PerkinElmer 製)を用いて液相中の<sup>137</sup>Cs 放 射能を測定した。

一方、HCP 試料中の<sup>137</sup>Cs の非定常拡散実験を、IP を用いた方法[1]により、拡散温度 をパラメータとして実施した。実験には、6 mol·L<sup>-1</sup> NH4NO<sub>3</sub> 溶液により溶脱変質処理し た薄片状 HCP 試料を、予めセメント平衡水により水分飽和させた試料を用いた。HCP 試 料への<sup>137</sup>Cs トレーサーの塗布は、片方の HCP 試料の 5 mm×19 mm の面に<sup>137</sup>CsCl 溶液 15  $\mu$ L (<sup>137</sup>Cs 10 kBq) を含ませたろ紙を置き、このろ紙をもう一方の水分飽和した HCP 試 料で挟み固定することで行った。次に、この状態の試料を所定温度(288~323 K)で所 定時間静置し、<sup>137</sup>Cs を拡散させた。拡散期間終了後、HCP 試料からろ紙を取り除き、 <sup>137</sup>Cs 塗布面と垂直になる面(横 19 mm×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(FLA 7000、GE HealthCare 製)を用いて、 HCP 試料中の<sup>137</sup>Cs 放射能の二次元分布を取得した。

<sup>125</sup>Iの収着・拡散実験

<sup>125</sup>I をトレーサーとして収着実験を行った。固相には、(2)①に記述した 6 mol·L<sup>-1</sup> NH4NO<sub>3</sub>溶液により溶脱処理した HCP 粉末試料を用いた。液相には、日本アイソトープ協 会から購入した Na<sup>125</sup>I 溶液 (NEZ033A、PerkinElmer 製)を分取し、セメント平衡水及び (非放射性) NaI 溶液と混合することで、<sup>125</sup>I 濃度が約 100 kBq·L<sup>-1</sup>、NaI キャリア濃度 が 1×10<sup>-6</sup> mol·L<sup>-1</sup>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(288~323 K)で所定期間(28 日間)振とうした。収着期間終了 後、固液分離を行い、液相中の <sup>125</sup>I の放射能を NaI (T1) シンチレーションカウンタに より測定した。

一方、HCP 試料中の<sup>125</sup>I の非定常拡散実験を行った。試料には、未溶脱 HCP 試料なら びに 6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>溶液により溶脱変質処理した薄片状 HCP 試料(縦 19 mm×横 20 mm×厚さ 5 mm) 各 2 個を用いた。HCP 試料への<sup>125</sup>I トレーサーの塗布は、飽和後の片方 の試料の 5 mm×19 mm の面に Na<sup>125</sup>I 溶液(<sup>125</sup>I 濃度 10 GBq L<sup>-1</sup>、NaI キャリア濃度 1×10<sup>-6</sup> mol·L<sup>-1</sup>を 10 µL(<sup>125</sup>I 100 kBq) 含ませたろ紙を置き、もう一方の飽和した HCP 試料で挟 み固定することで行った。この試料を所定温度(288~323 K) で所定時間静置し、<sup>125</sup>I を拡散させた。拡散期間終了後、HCP 試料からろ紙を取り除き、<sup>125</sup>I 塗布面と垂直にな る面(横 19 mm×高さ 20 mm)をラップを介して IP に密着させ、鉛製の遮蔽箱中に1 h 静置した。その後、IP 読み取り装置を用いて、HCP 試料中の<sup>125</sup>I 放射能の二次元分布を 取得した。

## ⑤ 酢酸イオン形<sup>14</sup>Cの収着及び拡散実験

HCP 試料への酢酸イオン形 <sup>14</sup>C のバッチ式収着実験を行った。固相には、未溶脱粉末 HCP 試料及び 6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 溶液により溶脱処理した粉末 HCP 試料を用いた。液相に は、<sup>14</sup>C でラベルした酢酸ナトリウム (CH<sub>3</sub><sup>14</sup>COONa) 溶液 (NEC084A、PerkinElmer 製) を イオン交換水と混合して調製した原液を、セメント平衡水に混合して <sup>14</sup>C 濃度が約 500 kBq·L<sup>-1</sup> となるように調製した溶液を用いた。固相と液相を固液比 1:100 で混合し、298 K で 28 日間振とうした。収着期間終了後、固液分離により得た液相をシンチレーション カクテル (Insta-Gel Plus、PerkinElmer 製) と混合し、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)を用いて <sup>14</sup>C の放射能を定量した。

一方、HCP 試料中の<sup>14</sup>C の非定常拡散実験を実施した。用いた試料は、薄片状(縦 16 mm×横 20 mm×厚さ5 mm)の未溶脱及び6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>溶液により溶脱処理した HCP 試料である。<sup>14</sup>C トレーサーの塗布及び拡散実験は、希釈した CH<sub>3</sub><sup>14</sup>COONa 溶液を微量(<sup>14</sup>C 10~30 kBq)含ませたろ紙を、水分飽和した HCP 試料の 5×16 mm の面に置き、別の HCP 試料でろ紙を挟み込み密着し固定した後、所定温度(288~323 K)で所定期間(116~370 時間)保持することで行った。拡散期間終了後、HCP 試料をラップを介して IP 上に固定し、試料中の放射能濃度分布を決定した。

HCP 試料中の<sup>14</sup>C の透過型拡散実験は、図 3.1-1 に示す実験体系で実施した。固相試料には、未溶脱 HCP 及び6 mol·L<sup>-1</sup> NH4N0<sub>3</sub>溶液への浸漬により調製した溶脱 HCP 試料を用いた。固相試料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、<sup>14</sup>C

濃度が 1.1 MBq・L<sup>-1</sup>となるように酢酸ナトリウムトレーサーを加えた。拡散試験は所定 温度条件下(288~323 K)で実施し、所定時間(1~7日)間隔で高濃度側及び低濃度側 の溶液を採取し、シンチレーションカクテルと混合後、<sup>14</sup>C の放射能を液体シンチレー ションカウンタにより測定した。



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 HCP 試料の特性評価

HCP 試料の含水量から求めた空隙率及びかさ密度ならびに SEM-EDX 観察にて得られた 固相中の Ca 及び Si 含有量から算出した Ca/Si 比を表 3.1-1 に示す。また、水銀圧入法 から決定した HCP 試料の細孔径分布を、図 3.1-2 に示す。溶脱処理に伴って毛細管空隙 に相当する直径 0.003~1 µm の細孔容積が大幅に増加すること、これに伴って空隙率が 増加すること、かさ密度が減少することが明らかになった。また、固相の Ca/Si 比が低 下することが示された。これらは既往の研究[3]にて報告された溶脱に伴う HCP 固相か らの Ca 成分の溶出及び空隙構造変化と整合した。溶脱 HCP 試料の Ca/Si モル比におい て溶脱面からの深さの影響は認められなかったことから、本実験条件下において均一な 溶脱試料を調製できたと判断した。

	未溶脱試料	溶脱試料(NH4NO3溶液処理)
空隙率(-)	0.32	0.67
かさ密度 (Mg·m <sup>-3</sup> )	1.67	0.95
固相 Ca/Si モル比(–)	1.9~3.4	0.5~0.9

表 3.1-1 HCP 試料の溶脱に伴う固相特性の変化



図 3.1-2 HCP(未溶脱及び溶脱)試料の細孔径分布

② <sup>137</sup>Cs の収着・拡散挙動

核種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<sup>-1</sup>)を求めた。  $K_d = C_S / C_L$  (式 3.1-1)

ここで、 $C_L$  (Bq·L<sup>-1</sup>) は収着期間後の液相の核種濃度、 $C_s$  (Bq·kg<sup>-1</sup>) は固相に収着した 核種(本項では<sup>137</sup>Cs)の濃度であり、(式 3.1-2) により算出した。

 $C_{S} = (C_{0} - C_{L}) \times V/W$  (式 3.1-2)

なお、 $C_0$ は初期の液相の核種濃度( $Bq \cdot L^{-1}$ )、Vは液量(L)、wは固相重量(kg)である。

得られた<sup>137</sup>Cs の  $K_d$ の収着温度依存性を図 3.1-3 に示す。イオン交換水により溶脱した HCP 試料では、25 °Cにおいてほぼ収着は認められなかった。また、合成 C-S-H 試料 (Ca/Si 比 0.8)では、収着は認められたものの、収着温度による  $K_d$ の違いは見られなかった。一方、6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>溶液及び人工海水に浸漬処理した溶脱 HCP 試料ならび に合成 M-S-H 試料では、 $K_d$ の値は比較的大きく、また収着温度の増加に伴い  $K_d$ は低下する傾向を示した。このことから、6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>溶液及び人工海水により処理した溶 脱 HCP 試料においては、試料に含まれる C-S-H の <sup>137</sup>Cs 収着への寄与は小さく、その他の水和物が主要な収着サイトであることが示唆された。

 $K_d$ の温度依存性から求めた収着のエンタルピー ( $\Delta H$ ) は、6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>溶脱 HCP 試料では $-34\pm3.5$  kJ·mol<sup>-1</sup>、人工海水溶脱試料では $-21\pm1.9$  kJ·mol<sup>-1</sup>、合成 M-S-H 試 料 (Mg/Si 比 1.7) で $-17\pm1.9$  kJ·mol<sup>-1</sup>となった (図 3.1-3) 。これらの  $\Delta H$ はいずれ も負の値であったことから、溶脱 HCP 及び合成 M-S-H 試料への <sup>137</sup>Cs の収着は発熱反応 であることが確認された。また、人工海水溶脱試料の  $\Delta H$ が、合成 M-S-H 試料の  $\Delta H$ と 近い値となった。固相分析において、人工海水溶脱試料中に M-S-H が確認できたことか ら、人工海水溶脱試料への <sup>137</sup>Cs 収着は M-S-H への収着の寄与が支配的である可能性が 示唆された。



図 3.1-3 HCP 及び合成水和物への  $^{137}$ Cs の  $K_d$ の収着温度依存性 実線は回帰直線、 $\Delta H$ は回帰直線の傾きから決定した収着のエンタルピーを示す。

溶脱HCP試料中の<sup>137</sup>Csの拡散実験において、IPを用いて得られた試料中の輝度(<sup>137</sup>Cs 放射能濃度)の二次元分布を図 3.1-4(a)に示す。試料位置を示す図中赤枠内において、 <sup>137</sup>Csは塗布面(赤枠の左辺位置)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(赤枠左辺のどの高さ)でも 同程度であり、HCP試料は均質であり、Csの拡散に差がないことが示された。

そこで、塗布面からの距離ごとの<sup>137</sup>Csの放射能濃度を平均し、その自然対数値を距離の2乗に対してプロットした(図3.1-4(b))。なお、<sup>137</sup>Cs放射能濃度としてIPの輝度を用いた。この<sup>137</sup>Csの放射能分布は良い直線性を示していることから、<sup>137</sup>Csは薄膜拡散源からの拡散と考えられた。直線の傾きから、Fickの第二法則を所定の初期・境界条件下で解いた解を用いて<sup>137</sup>CsのD<sub>a</sub>を決定した。他のHCP試料においても、IPにより得た放射能二次元分布を同様の方法で解析し、試料が不均質であり亀裂等を介して拡散した可能性のある試料を除外したうえで、放射能プロファイルが直線性を示した試料についてD<sub>a</sub>を決定した。決定した溶脱試料中の<sup>137</sup>CsのD<sub>a</sub>を、健全試料に対する報告値[4]とともに図3.1-5に示す。D<sub>a</sub>は溶脱によって若干減少した。

一般に、トレーサーが HCP 試料のような多孔質媒体中において、比較的大きな空隙を 収着による遅延を伴って拡散する場合、その拡散係数は(式 3.1-3)により表現できる (細孔拡散モデル)。

$$D_a = \frac{\varepsilon}{\varepsilon + \rho K_d} FF \times D_0 \qquad ( \vec{\mathfrak{X}} \ 3.1 - 3 )$$

ここで  $\epsilon$  は空隙率 (-) ,  $\rho$  はかさ密度(kg·L<sup>-1</sup>)、  $K_d$ は収着分配係数(L·kg<sup>-1</sup>)、 FF は 幾何学的形状因子 (-) 、  $D_0$ は自由水中の拡散係数(m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>)である。

一般に、HCPの溶脱に伴い<sup>137</sup>Csの拡散挙動が変化する主要な因子として、(1)水和物の
 溶出に伴う空隙率の増加と毛細管空隙サイズの増大、及び(2)溶脱変質した HCP 固相への<sup>137</sup>Csの K<sub>d</sub>の増加が挙げられる。このうち前者は D<sub>a</sub>を増加させ、後者は D<sub>a</sub>を低下さ

せる方向に寄与する。本研究では、<sup>137</sup>Cs の  $D_a$ は溶脱によって若干減少したことから、 細孔拡散モデルに従えば、<sup>137</sup>Cs の  $K_d$ が増加した可能性を示唆しており、 $K_d$ の増加によ る  $D_a$ の低下が幾何学的形状の変化に起因する  $D_a$ の上昇に比べて卓越した可能性が示唆 された。

対数軸上に示した  $D_a$  の値は、拡散温度の逆数に対して直線性を示したため(図 3.1-5)、当てはめた回帰直線の傾きからアレニウスの式を用いて  $E_a$ を決定した。得られた  $E_a$ は 52±4.3 kJ·mol<sup>-1</sup>となった。これは、Cs<sup>+</sup>イオンの自由水中の拡散の  $E_a$  (16.2 kJ· mol<sup>-1</sup>) [4] より高く、また未溶脱 HCP 試料に対する報告値(37±2.2 kJ·mol<sup>-1</sup>)[5]より も高い。一方で、 $D_a$ の温度依存性から決定した  $E_a$ の値には、収着係数の温度依存性の寄 与分(収着エンタルピー寄与分)も含まれる。すなわち、 $D_a$ の温度依存性から決定した 拡散の  $E_a$ は、収着のエンタルピー( $\Delta$  H)との間に(式 3.1-4)の関係を持つ可能性があ る。

$$E_a = E_a^{net} - \Delta H \qquad ( \vec{\mathfrak{X}} \ 3.1 - 4)$$

ここで、 $E_a^{\text{net}}$ は収着の影響を除いた拡散の活性化エネルギーである。そこで、拡散実験から得られた溶脱 HCP 試料の  $E_a$ に、収着実験から得た<sup>137</sup>Cs の  $\Delta H$ を加えたところ、収着係数の温度依存性の寄与分を除いた拡散のみの  $E_a$  ( $E_a^{\text{net}}$ )は約 18 kJ·mol<sup>-1</sup>となり、Cs<sup>+</sup>イオンの自由水中の拡散の  $E_a$ とほぼ一致することが明らかになった。

- 以上の結果から、
- 1) HCP 試料中のCs は内部の空隙を拡散経路として、収着による遅延を伴って拡散して いること、
- 2) HCP 試料の溶脱によって、拡散経路は拡散係数を増加する方向に変化すること、しかしながら、
- 3) 試料の溶脱によって収着係数が増加し移行遅延効果が働くこと、
- 4) 溶脱の進行した試料では 2)の拡散経路の変化よりも 3)の収着による遅延効果が卓 越していること、

を考慮することで、本研究で得られた HCP 試料中の Cs の拡散係数に及ぼす溶脱の影響 を矛盾なく説明できた。



図 3.1-4 溶脱 HCP 試料中の<sup>137</sup>Cs の拡散実験結果例

(a) HCP 試料中の輝度(<sup>137</sup>Cs 放射能)の二次元分布例(拡散温度 298K、拡散時間 219h) 黒枠は試料位置、赤枠は放射能プロファイルの算出に用いた領域を示す。 (b)試料中の放射能プロファイル



図 3.1-5 HCP 試料中の<sup>137</sup>Cs の見かけの拡散係数(Da)の温度依存性

黒の実線は回帰直線、E。は回帰直線の傾きから決定した拡散の活性化エネルギーを示す。

③ <sup>125</sup>Iの収着・拡散挙動

溶脱 HCP 試料への <sup>125</sup>I (I<sup>-</sup>イオン)の収着は、いずれの温度条件においてもほぼ認められず、未溶脱試料では <sup>125</sup>I の収着が確認されたとの報告 ( $K_d$  = 400~600 L·kg<sup>-1</sup>、収着エンタルピー $\Delta H$  = 2.2±0.6 kJ·mol<sup>-1</sup>) [1]と異なる結果となった。

非定常拡散実験において、IPにより得られた HCP 試料中の<sup>125</sup>I 放射能濃度分布の一例 を、図 3.1-6(a)に示す。試料位置を示す図中青枠内において、HCP 試料中に移行した <sup>125</sup>I の放射能濃度分布はトレーサー塗布面(青枠の左辺)のどの位置でも同程度であり、 試料は均質であることが示唆された。そこで、図中赤枠内において、塗布面から一定距 離ごとの<sup>125</sup>I 放射能を平均して得たプロファイル(図 3.1-6(b))は直線性を示したことか ら、直線の傾きから<sup>125</sup>I の  $D_a$ を決定した。 $D_a$ の温度依存性を図 3.1-7 に示す。未溶脱 HCP 試料中の  $D_a$ は 10<sup>-13</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>のオーダーであったのに対して、溶脱試料中における  $D_a$ は 10<sup>-10</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>のオーダーとなり大幅に増加した。 $D_a$ の温度依存性からアレニウスの式を 用いて決定した  $E_a$ は、未溶脱試料では 12.3±5.8 kJ·mol<sup>-1</sup>、溶脱試料では 1.2±1.4 kJ· mol<sup>-1</sup> となった。この値のうち、未溶脱試料の  $E_a$ 及び  $\Delta H$  の値から(式 3.1-4)により、 収着の温度依存性の影響を除いた拡散の活性化エネルギー $E_a^{net}$ は 13.5±5.9 kJ·mol<sup>-1</sup> と なった。この値は自由水中の I<sup>-1</sup>イオンの拡散の  $E_a$ (17.0 kJ·mol<sup>-1</sup>) [4]とほぼ一致する ことから、<sup>125</sup>I は HCP 試料の間隙内部の自由水中を収着による遅延を受けながら拡散し ていることが示唆された。



図 3.1-6 HCP 試料中の<sup>125</sup>I の拡散実験結果例

(a) HCP 試料中の輝度(<sup>125</sup>Iの放射能濃度)の二次元分布例(未溶脱試料、拡散温度 288 K、拡散時間 72.2日)。青色枠は試料位置、赤色枠は放射能濃度プロファイルの算 出に用いた領域を示す。

(b) 試料中の<sup>125</sup>Iの放射能濃度プロファイル



図 3.1-7 HCP 試料中の  $^{125}$ I の見かけの拡散係数 ( $D_a$ ) の温度依存性 黒の実線は回帰直線、 $E_a$ は回帰直線の傾きから決定した拡散の活性化エネルギーを示 す。

バッチ式収着試験より、試料の溶脱処理の有無に関わらず、酢酸イオン(CH<sub>3</sub><sup>14</sup>COO<sup>-</sup>)の 収着は認められなかった( $K_d$ <5 L·kg<sup>-1</sup>)。非定常拡散試験から得た HCP 試料中の輝度 (<sup>14</sup>C 放射能濃度)の二次元分布の一例を、図 3.1-8(a)に示す。<sup>14</sup>C トレーサー塗布面 (黒枠の左辺)の位置に関わらず、HCP 試料中(図中黒枠内)に移行した <sup>14</sup>C 放射能濃 度は同程度であったため、図中赤枠内の放射能濃度を塗布面からの一定距離ごとに平均 してその位置(拡散距離)における放射能濃度とした。得られた放射能濃度プロファイ ルを、図 3.1-8(b)に示す。 このプロファイルは直線性を示したため、傾きから酢酸イオンの  $D_a$ を決定した。図 3.1-9 に、得られた酢酸イオンの  $D_a$ の温度依存性を示す。温度 288~323 K における酢 酸イオンの  $D_a$ は、未溶脱 HCP 試料では 4.6×10<sup>-12</sup>~1.4×10<sup>-11</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>であったのに対し て、溶脱試料では (1.6~3.4) ×10<sup>-10</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>であり、試料の溶脱に伴い  $D_a$ は約 1 桁増加 した。 $D_a$ の温度依存性から決定した酢酸イオンの拡散の  $E_a$ は、未溶脱試料において 15.2±4.8 kJ·mol<sup>-1</sup>、溶脱試料において 12.5±1.8 kJ·mol<sup>-1</sup>となり、未溶脱試料中の拡 散の  $E_a$ の値は自由水中の拡散の  $E_a$  (21.8±0.9 kJ·mol<sup>-1</sup>) [6, 7] より僅かに低い程度 であった。未溶脱試料において、バッチ式収着試験からは酢酸イオンの収着は認められ なかったことから、収着係数が温度依存性を示さない場合は、酢酸イオンの支配的な拡 散経路は自由水中であり、主に試料中の毛細管空隙内を拡散している可能性が示唆され た。HCP 試料の溶脱に伴う  $D_a$ の増加は、3.1.2(3)①に示した空隙率の増加及び空隙サイ ズの増大等に伴って、毛細管空隙等の酢酸イオンの拡散経路の幾何学的形状が変化した ことに起因すると考えられる。

透過型拡散試験では、未溶脱試料を用いた実験において高濃度側溶液から低濃度側溶液への酢酸イオン形<sup>14</sup>Cの破過が確認された。HCP 試料を透過した<sup>14</sup>Cの累積透過量の経時変化(破過曲線)を、図 3.1-10 に示す。いずれの温度条件においても、実験開始から 18~47 日目以降において破過曲線の増加が直線的となり、<sup>14</sup>C の拡散が定常状態に達したことが確認された。破過曲線の定常拡散の領域に当てはめた回帰直線を、図 3.1-10 中に赤色実線で示す。破過に伴う低濃度側溶液の<sup>14</sup>C 濃度増加及び高濃度溶液の<sup>14</sup>C 濃度低下は、最大で高濃度側溶液の初期濃度の 3%以下であったため、高濃度側及び低濃度側溶液いずれも<sup>14</sup>C 濃度は初期濃度のまま一定であったとみなし、Fick の第一法則を所定の初期及び境界条件下で解いた解[8]を用いて、直線の傾きから酢酸イオンの実効拡散係数(以下、「 $D_{e}$ 」と略す。)を、直線を外挿した切片の値から  $K_{d}$ をそれぞれ決定した。得られた係数の温度依存性を、図 3.1-11 に示す。298 K において得られた  $K_{d}$ 

(0.32 L·kg<sup>-1</sup>) は、既往の研究の透過型拡散試験による HCP への酢酸イオンの  $K_d$ の報告 値(温度 296 K; 0.48 L·kg<sup>-1</sup>) [9]と同程度の値であった。図 3.1-11(a)において、対数 軸上にプロットした  $D_e$ は拡散温度の逆数に対して直線性を示したことから、その直線の 傾きから  $E_a$ を決定した。得られた酢酸イオンの拡散の  $E_a$ は、41.0±3.0 kJ·mol<sup>-1</sup>となっ た。また、 $K_d$ の温度依存性に当てはめた直線の傾きから決定した酢酸イオンの収着のエ ンタルピー( $\Delta H$ ) は、20.3±2.1 kJ·mol<sup>-1</sup>であった(図 3.1-11(b))。一方で、溶脱 HCP 試料では、試験開始から 160 日間、酢酸イオンの破過が確認されていない。

 $D_e$ の温度依存性から決定した拡散の活性化エネルギーは、収着の影響を含まず、すなわち  $E_a^{net}$ に相当する。透過拡散試験から決定した未溶脱 HCP 試料における酢酸イオンの  $E_a^{net}$ は 41.0±3.0 kJ·mol<sup>-1</sup>と、自由水中の拡散の  $E_a$ に比べて高い値となったことから、未溶脱試料中の酢酸イオンの拡散プロセスは、自由水中とは異なることが見出された。また、酢酸イオンの  $K_d$  は 0.30~0.59 L·kg<sup>-1</sup>と比較的弱い収着であった一方で、 $K_d$ は温度依存性を示し、 $\Delta H$  は正の値であったことから、未溶脱試料への酢酸イオンの収着は吸熱反応であることが明らかとなった。本試験から得られた  $E_a^{net}$ 及び  $\Delta H$ を用いて、 $K_d$ の温度依存性の影響を含む拡散の  $E_a$ の値を算出すると、(式 3.1-4)より、

 $E_a = (41.0 \pm 3.0) - (20.3 \pm 2.1) = 20.7 \pm 3.7$  (kJ·mol<sup>-1</sup>) となり、非定常拡散試験から得た  $D_a$ の温度依存性から決定した  $E_a$ の値(15.2 ± 4.8 kJ·mol<sup>-1</sup>) とほぼ整合した。このことから、非定常拡散試験から決定した  $E_a$ の値は見かけ 上自由水中の拡散の  $E_a$ の値にほぼ一致したものの、この  $E_a$ は収着係数の温度依存性の 影響を含んでおり、その影響を除いた  $E_a^{net}$ の値は自由水中の  $E_a$ より高くなるため、試 料中の酢酸イオンの拡散プロセスは、自由水中が支配的ではないことが示唆された。

一方、溶脱 HCP 試料の透過型拡散試験において<sup>14</sup>C の破過が確認されず移行が大幅に 遅延したことは、溶脱に伴い空隙率が増加し空隙径が増大したこと及び非定常拡散試験 において試料の溶脱に伴い酢酸イオンの D<sub>a</sub>が増加したことと整合しない。このことは、 酢酸イオンの拡散プロセスは単純な自由水中の拡散のみからは説明できないことを示唆 している。 以上のことから、未溶脱試料中において、酢酸イオンの支配的な拡散プロセスは自由 水中の拡散ではないことが示唆され、例えばゲル空隙等の微細な空隙中等を、固相表面 との相互作用あるいは液相中のイオンとの相互作用等の影響を受けながら拡散している 可能性が推察された。試料の溶脱変質に伴い、非定常拡散試験の結果からは、酢酸イオ ンは試料固相からの水和物の溶出に伴い形成された毛細管空隙内部を拡散すると示唆さ れた一方で、定常拡散試験の結果からは自由水中とは異なる拡散プロセスの寄与が示唆 された。



図 3.1-8 HCP 試料中の酢酸イオン(<sup>14</sup>C)の拡散実験結果例

(a) HCP 試料中の輝度(<sup>14</sup>C 放射能)の二次元分布例(溶脱試料、拡散温度 288 K、拡散時間 21 h)。黒枠は試料位置、赤枠は放射能プロファイルの算出に用いた領域を示す。

(b) 試料中の<sup>14</sup>Cの放射能濃度プロファイル



図 3.1-9 HCP 試料中の酢酸イオン(<sup>14</sup>C)の見かけの拡散係数(*D<sub>a</sub>*)の温度依存性 黒の実線は回帰直線、*E<sub>a</sub>*は拡散の活性化エネルギーを示す。



図 3.1-10 HCP(未溶脱) 試料からの酢酸イオン(<sup>14</sup>C)の破過曲線 拡散温度条件:(a) 288 K、(b) 298 K、(c) 313 K、(d) 323 K。 各図中の赤色実線は、累積透過量の経時変化が定常になった範囲に当てはめ た直線を示す。



図 3.1-11 HCP(未溶脱) 試料中の酢酸イオンの *D<sub>e</sub>*(a) 及び *K<sub>d</sub>*(b) の温度依存性 各図中の赤色実線は、当てはめた回帰直線を示す。

- 3.1.3 令和4年度実施結果 [Uの収着挙動]
  - (1) 概要

令和4年度は、鉄腐食生成物(酸化鉄粒子)とセメントが混在する条件でのUの収着・分配を調べるため、酸化鉄粉末とセメント系試料(健全セメント、C-S-H)の混合 試料に対するU収着実験を行った。

- (2) 方法
  - Uストック溶液の調製

U(VI)の硝酸水溶液(XSTC-3325-500、SPEX 社製)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、1%硝酸水溶液で希釈した。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、その一部あるいは全部が溶解する。固相の溶解をで きるだけ少なくするため、以下に述べるU収着実験では、酸化鉄粉末とセメント系試料 の混合粉末試料を純水に浸漬させて得た平衡水を液相として用いた。しかし、U 硝酸酸 性水溶液を平衡水に入れることによって pH が低下する。そこで、pH の低下を少なくし、 かつUが加水分解しない pH で収着実験用U 水溶液を保存するため、希釈した NaOH 水溶 液を用いて、この収着実験用U 水溶液の pH を約 4.0 に調整した。この収着実験用U 水 溶液のU 濃度は約 650 ppm であった。

混合試料

セメント系試料として、養生条件が異なる 2 つの健全セメント(セメント No.1 と No.3)及び 2 つの C-S-H 試料(C-S-H 0.83 と 1.00)を用いた。表 3.1-2 にセメント系 試料の情報をまとめた。

酸化鉄粉末として、令和2年度に用いたヘマタイト( $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、高純度化学研究所)、 天然のゲーサイト( $\alpha$ -FeOOH、アメリカ、ミシガン産)及び非晶質水酸化鉄であるフェ リハイドライト(下記の方法により合成した)を用いた。ヘマタイトはメノウ乳鉢中で 粉砕し、ステンレス篩を用いて純水をかけながら粒径を20-46 µm または46-105 µm に 分画した。ゲーサイトは同様に粉砕分級し、20-46 µm の粒径画分を得た。

フェリハイドライトは Guo 等の方法[10]を一部変えて以下の通り合成した。0.2 M Fe (NO<sub>3</sub>) 3 9H<sub>2</sub>O 水溶液に、撹拌しながら pH が約 7.0 になるまで 1M NaOH を滴下した。撹 拌を停止してから 2 時間室温で静置した。遠心分離により固液分離し、液相を捨てた。 回収した固相に純水を加えてよく混合したのちに遠心分離により固液分離し、液相を捨てた。 てた。この純水による洗浄を合計 5 回行った。洗浄後、固相を凍結し、凍結真空乾燥し た。フェリハイドライトはメノウ乳鉢中で粉砕し、ステンレス篩を用いて純水をかけな がら粒径を 20-46 µm に分画した。乾燥後の試料は非晶質の 2-1 ine フェリハイドライト であった(図 3.1-12)。一部の粉末試料の BET 比表面積を、比表面積測定装置(NOVA touch、 Quantachrome 製)を用いて測定した。

令和2年度の結果から、酸化鉄粉末はpH6~10で最もUを収着し、pHが上昇するとUの収着が低下することが明らかとなった。令和3年度の結果から、健全セメントとC-S-HはUをよく収着するが、pHは健全セメントでpH12以上、C-S-Hで10~11と高かった。酸化鉄粉末とこれらセメント系試料を混合すると、pHが高くなり、Uがセメント系試料に選択的に収着しやすくなると考えた。そこで、酸化鉄粉末とセメント系試料の重量比を0.95:0.05とし、酸化鉄が多い状態におけるUの収着を調べた。表3.1-3に混合試料の組み合わせ、表3.1-4にU収着実験結果の概略をまとめた。

表 3.1-2 セメント系材料

試料名	調製条件など
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
С-S-Н 0.83	Ca/Si=0.83
С-S-Н 1.00	Ca/Si=1.00



図 3.1-12 合成したフェリハイドライトの XRD

表 3.1-3 U 収着実験条件

実験番号	酸化鉄粒子	セメント系粒子
1 2 3 4 5 6 7 8	ヘマタイト (46-105µm) ヘマタイト (46-105µm) ヘマタイト (20-46µm) ヘマタイト (20-46µm) ゲーサイト (20-46µm) ゲーサイト (20-46µm) フェリハイドライト (20-46µm) フェリハイドライト (20-46µm)	セメント No. 3 C-S-H 0. 83 セメント No. 3 C-S-H 0. 83 セメント No. 1 C-S-H 1. 00 セメント No. 1 C-S-H 1. 00

実験 番号	実験前の 平衡水 pH	実験後の pH	酸化鉄粒子 の U	セメント系粒子 の U	U 収着 (%)	U 収着分配 係数 (mL・g <sup>-1</sup> )
1	12.87	12.85	不検出	検出された	98.6	7. $2 \times 10^{3}$
2	10.74	10.67	不検出	検出された	99.7	3. $4 \times 10^4$
3	12.44	12.33	不検出	検出された	98.8	8. $2 \times 10^3$
4	10.81	10.29	不検出	検出された	99.7	3. $5 \times 10^4$
5	12.37	12.44	不検出	検出された	98.5	6. $7 \times 10^{3}$
6	11.45	11.28	不検出	検出された	>99.9	4. $3 \times 10^{5}$
7	約 8	7.15	一部で検出	—*	>99.9	$1.7 \times 10^{6}$
8	約 8	6.97	一部で検出	*	>99. 9	$1.9 \times 10^{6}$

表 3.1-4 U 収着実験結果の概略

\*セメント系粒子は全て溶解したと思われる。このためUの収着は確認できなかった。

③ U 収着実験

U 収着実験の液相には、酸化鉄とセメント系試料の 0.95:0.05 混合試料を純水に 3 日 以上浸漬した後、濾過して得た水相を用いた。

15 mL のプラスチック遠沈管にセメント系試料が 0.0025±0.0002 g、ヘマタイトが 0.0475 ±0.0002 gとなるように直接秤量した。この遠沈管に平衡水 4.68 mL を入れて 振とうした後、実験用 U 水溶液 (pH4、U 濃度約 650 ppm)を 0.32 mL 添加した。混合後 の液相の U 初期濃度は約 40 ppm であった。遠沈管に蓋をつけ、25 ℃で振とうした。7 日後、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、7700cs、アジレント・テクノロジー製)により測定した。U 収着の収着率(%)、分配 係数  $K_d$  (mL·g<sup>-1</sup>) は (式 3.1–5) から (式 3.1–7) により求めた。

収着率(%)	=	$(C_0 - C) / C \times 100$	(式 3.1-5)
$K_d = Q / C$			(式 3.1-6)

ここで  $C_0$ は U 初期濃度 (g·mL<sup>-1</sup>)、 Cは実験後の U 濃度 (g·mL<sup>-1</sup>)、 Qは固相に収着した U 濃度 (g·g<sup>-1</sup>) であり、 Qは、

 $Q = (C_0 - C) \times V / w$  (式 3.1-7) である。ここで、Vは液量(mL)、wは固相重量(g)である。

U 収着後の固相は、SEM-EDX (Phenom ProX、Phenom-World) により分析した。分析に 用いるため、以下の方法により固相の洗浄及びセメント系試料と酸化鉄試料の分離を行 った。U 収着実験の初期U濃度は約40 ppmと高い。U 収着実験後に遠心分離し、上澄み 液を除去した固相にも微量の液相が残っており、そこに収着しなかったUが残っている 可能性があるので、この未収着のUを除去する必要があると考えた。また、固相はセメ ント系試料と酸化鉄粉末が混合しているため、固相をそのまま SEM-EDX により分析した 場合、微細なセメント系粒子が酸化鉄粒子に付着した状態となり、正しい評価ができな くなると考えた。そこで、純水に希薄な NaOH 水溶液を入れて、その pH をU 収着後の液 相 pH に近くなるように調整した平衡 pH 水を固相に入れ、よく混合したのち静置し、酸 化鉄粒子が選択的に自然沈殿するのを待ってから、主にセメント系微粒子が懸濁してい る懸濁液をピペットで回収した。回収した懸濁液を10,000 rpm で3分間遠心分離した のち、液相を除去し、セメント系粒子を回収した。主に酸化鉄粒子が沈殿した固相には 平衡 pH 水をもう一度入れ、酸化鉄粒子の多くが自然沈殿した後に液相をピペットで除 去した。沈殿した酸化鉄粒子を乾燥させて分析した。このように処理した酸化鉄試料と セメント系試料をパラジウムで蒸着したのちに SEM-EDX 分析した。

(3) 結果

① 実験用 U 水溶液を平衡水に混合することによる pH 変化

pH 4の実験用U水溶液を平衡水に混合するとpHが低下すると予想されたものの、その低下は小さいとも予想された。平衡水がアルカリ性の場合、混合後の水溶液に pH 電極を入れて pH を測定すると、測定中にUが沈殿する可能性あるいは pH 電極に収着する可能性が考えられた。そのため、次のように模擬的に pH 変化を調べた。希薄な水酸化ナトリウム水溶液を純水に加えることによって平衡水とほぼ同じ pH になるように調整した水溶液 4.68 mL に、希薄な塩酸を純水に加えて pH を 4.0 にした水溶液 0.32 mL を加えたときの pH 変化を調べた。

平衡 pH 水の pH が 8 程度では、pH が約 0.7 低下した。pH の低下は平衡 pH 水の pH が 高くなるほど小さくなり、平衡 pH 水の pH12.3 以上ではほぼ変化しなかった。

② ヘマタイトーセメント系粒子混合試料へのUの収着

令和3年度に、粒径46-105 µmのヘマタイトとセメント No.1を質量比0.95:0.05 で 混合した試料をU初期濃度が1 ppmの平衡水に入れたときのUの収着を調べた。Uの99% 以上が収着したものの、収着実験後の固相の SEM-EDX 分析では、固相にUは検出されな かった。これは、収着したUの固相中濃度が SEM-EDX の検出下限を下回ったためと考え た。そこで、本年度は、Uの初期濃度を約40 ppm に高めた水溶液を用いて実験を行っ た。

表 3.1-4 に実験結果のまとめを示す。粒径 46-105 µm のヘマタイトとセメント系試料 の 9.5:0.5 混合試料(実験 1, 2)では、U はセメント系粒子にのみ検出され、ヘマタイ ト粒子には検出されなかった。無孔質のヘマタイト粒子の反応性を高める 1 つの方法は、 粒径を小さくすることにより、ヘマタイト粒子の総表面積を増やすことである。そこで、 ヘマタイト粒子をさらに粉砕し、粒子サイズ 20-46 µm のヘマタイト粒子を得た。目開 き 20 µm は、市販品では最も小さい目開きである。このヘマタイト粒子とセメント系粒 子の混合試料に対する U 収着実験(実験 3, 4)を行ったが、U はセメント系粒子にのみ 検出され、ヘマタイト粒子には検出されなかった。表 3.1-5 に、収着実験に用いた粉末 試料の一部に対して得た BET 比表面積の値を示す。粒子サイズ 20-46 µm のヘマタイト 粒子の比表面積は約 1 m<sup>2</sup>/g である。この値は、セメント No.3 と C-S-H 0.83 と類似する セメント No.1 と C-S-H 1.00 の比表面積の 1/10 以下であった。しかし、混合試料 0.05 g 中の総面積は、ヘマタイトが約 0.05 m<sup>2</sup>、セメント系試料で 0.03~0.04 m<sup>2</sup>であり、ヘ マタイトの方が僅かに多かった。

このヘマタイト粒子は、大きな粒子を粉砕して粒径調整した。目開き 20 µm 以下の篩 がないため、20 µm 以下で狭い粒子サイズ範囲の粒子を篩分することはできない。また 粒径が小さくなるほど、収着実験後にセメント系粒子と分離することが困難になる。そ のため、粒子サイズ 20 µm 以下の粉末を用いた実験は行わなかった。U は酸化鉄粒子表 面の水酸基に結合する可能性が高いが、粉砕して得たヘマタイトの表面は新鮮なため、 表面の水酸基が少ない可能性が考えられる。そこで、③に述べる次の実験では水酸化鉄 粒子(ゲーサイト)を用いた。

U 収着実験(実験 4) 前後の C-S-H 0.83 の SEM 像を図 3.1-13 に示す。実験前 A)に比べて U 収着実験後 B)には、収着実験前には存在しなかった平滑かつ微細な直方体様粒子が認められる。収着実験後の任意の 20 粒子を点分析したところ、Si と Ca の原子数比 Si/Ca は、最大 6.4%、最小 0.17%、平均 1.9±1.2%であった。実験前の分析値(0.84) と比較し、概ね Ca が Si より多く溶けたことを示す。収着実験後の金属元素(Na、A1、Si、Ca、U) に占める U の原子数は、最大 4.8%、最小 0.5%、平均 2.7±1.2 であり、U は 特定の状態で著しく濃集することなく、概ね一様に全ての C-S-H 粒子に収着したことが わかった。

試料	比表面積(m²/g)
ヘマタイト 20-46µm	0.94
ゲーサイト 20-46µm	1.3
フェリハイドライト 20-46µm	2.8 $\times 10^{2}$
セメント No.1 <74 µm	17
溶脱セメント No. 12 <74 µm	$1.0  imes 10^2$
С-S-Н 1.00	13







図 3.1-13 C-S-H 0.83 粒子の SEM 像 A) 収着実験前、B)収着実験後 (矢印は直方体様粒子の例)

③ ゲーサイトーセメント系粒子混合試料への U 収着

新鮮なヘマタイト粒子よりも水酸基密度が高い酸化鉄として、針状結晶質の水酸化鉄 であるゲーサイト(粒子サイズ20-46 µm)を用いて同様の実験を行った。ゲーサイトの SEM 像を図 3.1-14 に示す。このゲーサイトの BET 比表面積は、同じ粒子サイズのヘマ タイトとほぼ同じであった(表 3.1-5)。このゲーサイト粉末を用いた実験(実験 5, 6) においても、ゲーサイト粒子にはUは検出されず、セメント系粒子にのみUが検出され た。実験後の液相 pH は 11 以上であった(表 3.1-4)。この混合試料のゲーサイトの総 表面積は約 0.06 m<sup>2</sup>であり、セメント系試料の総表面積 0.03~0.04 m<sup>2</sup>より多かった。 酸化鉄試料の水酸基密度が高いにも関わらず酸化鉄にUが検出されなかった主な理由と して、混合試料の平衡 pH が高いことが考えられる。

収着実験(実験5)後に回収したセメントのSEM像を図3.1-15と図3.1-16に示す。 粒子の中には、周囲の粒子よりも明るいものがある。それらの粒子にはUが多く含まれ ていた。図3.1-15のB)に示したSpot1及び図3.1-16のB)とC)に示したSpot1とSpot2 において、それらの粒子の主要金属元素(Na、A1、Si、Mg、Ca、Fe、U)に占めるUの 原子数%は30%を超えた。64箇所の点分析におけるUの最大値は51%であった。Uの原子 数%が高いこれらの粒子では、Uが析出したと考えられる。暗い粒子も含め、点分析し た全ての箇所でUが検出され、主要金属元素に対するUの最小値は1.2%であった。平均 値は17±13%であり、この結果は、Uが不均一に分布していることを示す。また、これ らの粒子のSiとCaの原子数比Si/Caは、実験前で0.21%、収着実験後では平均 0.62±0.34%(64点の分析、最大1.35%、最小0.03%)であり、多くの粒子でCaが選択 的に溶解したことがわかる。Si/Caが0.03の粒子では、主要金属元素に占めるCaの原 子数%が86%であり、Caの水酸化物が沈殿したと考えられる。この粒子のUは6%程度で あり、Uの割合は高くない。

収着実験(実験6)後に回収した C-S-HのSEM像を図3.1-17に示す。これらの粒子の中には、Feが主要金属元素であるためゲーサイト粒子と推定される粒子も一部含まれていた。ただし、Feが主要元素であっても、CaやSiなど C-S-H 由来の元素が含まれていた。これらも含めて、全ての粒子にUが検出された。セメントの結果と同様に、多くの粒子は暗く写っている。暗い粒子の内、Spot 1と2のEDX スペクトルを図3.1-17のB)とC)に示す。これらは CaとSiが主たる金属元素であるので C-S-H 粒子と考えられるが、U の割合は低い。主要金属元素(A1、Si、Ca、Fe、U)における U の原子数は Spot1で約3%、Spot2で約5%であった。明るい粒子では U の割合が高く、図3.1-17のD)に示す Spot3 で U は約49%、E)に示す Spot4 で約26%であった。実験前の C-S-H の Si/Ca は 0.95 であったが、収着実験後は 1.4±0.4 (80 箇所の点分析の平均、最大 2.2、最小 0.09)となり、多くの粒子で Ca が選択的に溶解したことがわかる。Si/Ca が 0.03 の粒子では、主要金属元素に占める Ca の原子数%が82%であり、Ca の水酸化物が沈殿したと考えられる。この粒子の U は 1.7%程度であり、U の割合は低い。



図 3.1-14 ゲーサイト粒子の SEM 像



図 3.1-15 ゲーサイト—セメント No.1 混合試料を用いた U 収着実験(実験 5)後のセメント粒子の SEM-EDX 分析(その 1) A) SEM 像、B) Spot1 における EDX スペクトル、C) Spot2 における EDX スペクトル



図 3.1-16 ゲーサイト—セメント No.1 混合試料を用いた U 収着実験(実験 5)後のセメント粒子の SEM-EDX 分析(その 2) A) SEM 像、B) Spot1 における EDX スペクトル、C) Spot2 における EDX スペクトル



図 3.1-17 ゲーサイト—C-S-H 1.00 混合試料を用いた U 収着実験(実験 6)後の C-S-H 粒子の SEM-EDX 分析 A) SEM 像、B-E) Spot1~Spot4 における EDX スペクトル

④ フェリハイド-セメント系粒子混合試料へのUの収着

pH 7 で調製したフェリハイドライトの SEM 像を図 3.1-18 の A) に示す。微細な粒子が 含まれるが、主な粒子は数十 µm の大きさであることがわかる。比表面積は 2.8×10<sup>2</sup> m<sup>2</sup>・g<sup>-1</sup>であり(表 3.1-5)、この値はセメントと C-S-H の比表面積より 10 倍大きく、フ ェリハイドライトが多孔質であることを示す。フェリハイド—セメント系粒子混合試料 と純水の平衡 pH は約8 であった(表3.1-4、pH 値は7~8 付近の間で安定しなかった)。 セメント系粒子と混合したにも関わらずこのように pH が低かったため、0.050 g のフェ リハイドライト粒子のみを純水 5 mL に入れたところ、水相の pH は約3.3 となった。

U収着実験後(実験7,8)のpHは約7であり、99.9%以上のUが収着した(表3.1-4)。U収着実験後にセメント系試料の分離回収を試みたが、SEM-EDX分析によって明らかにセメント系試料であると判断できる粒子を見つけることができなかった。実験前にpHが約8であった液相にセメント系粒子を含む混合試料を加えたにも関わらず収着実験後もpH値が高くならなかった。混合試料のフェリハイドライトが酸性であったため、 セメント系粒子の大部分が溶解したと考えられる。したがって、液相から減少したUは、フェリハイドライト粒子に収着したか沈殿したと考えられる。

U収着実験後の固相から回収したフェリハイドライト粒子のSEM像を図 3.1-19のA)、 図 3.1-20 の A) 及び図 3.1-21 の A) に示す。フェリハイドライト―セメント No.1 混合試 料の場合(実験7、図3.1-19のA))、実験前後で粒子の形状に顕著な違いは見られな かった。フェリハイドライト--C-S-H 1.00 混合試料の場合、収着実験後に自然沈降させ た粒子(実験 8、図 3.1-20 の A))は実験前と顕著な違いは見られなかった。しかし、 自然沈降させたあとの液相から回収した粒子には微細な粒子が多く含まれていた(実験 8、図 3.1-21 の A))。これらの微細粒子も Fe が主成分元素であった。どの粒子にも Ca、 A1、Si が検出され(図 3.1-19 の B)、C)、図 3.1-20 の B)、C)及び図 3.1-21 の B)、 C)、A1 と Si は実験前(図 3.1-18 の B))に比べ明らかに増加した。Ca は実験前のフェ リハイドライト粒子には全く検出されない。これらの結果は、収着実験前の平衡水に含 まれるこれらの元素の一部、または収着実験中にセメント系粒子から溶け出たこれらの 元素の一部がフェリハイドライト粒子に結合したことを示唆する。なお、ヘマタイト-セメント系粒子混合試料及びゲーサイト―セメント系粒子混合試料を用いた U 収着実験 後のヘマタイト及びゲーサイト粒子にも、これらの元素が増えたものがあった。フェリ ハイドライト―セメント No.1 混合試料及びフェリハイドライト―C-S-H 1.00 混合試料 のどちらにおいても、一部のフェリハイドライト粒子にUが検出された。セメントNo.1 との混合系では、54 箇所の点分析で、主要金属元素(Ca、A1、Fe、U)の原子数に対す る U の原子数は 0.24±0.24%(最大 0.85%、最小 0.0%)、C-S-H1.00 との混合系では、 66 箇所の点分析で 0.42±0.40% (最大 1.4%、最小 0.0%) であった。この U 原子数の%値 は、ヘマタイト及びゲーサイトとセメント系試料を用いた実験でセメント系粒子に検出 されたUの値よりも小さい。これは、フェリハイドライト粒子がセメント系試料より19 倍(95÷5=19)多く含まれており、さらにフェリハイドライトが多孔質で比表面積が大き いため、フェリハイドライト粒子表面に収着したUの表面数密度が小さくなったためと 考えられる。





図 3.1-18 調製したフェリハイドライト A) SEM 像、B) EDX 分析



図 3.1-19 フェリハイドライト―セメント No.1 混合試料を用いた U 収着実験(実験 7)後のフェリハイドライト粒子の SEM-EDX 分析 A) SEM 像、B) Spot1 における EDX スペクトル、C) Spot2 における EDX スペクトル



図 3.1-20 フェリハイドライト—C-S-H1.00 混合試料を用いた U 収着実験(実験 8)後のフェリハイドライト粒子の SEM-EDX 分析 A) SEM 像、B) Spot1 における EDX スペクトル、C) Spot2 における EDX スペクトル



- 図 3.1-21 フェリハイドライト—C-S-H 1.00 混合試料を用いた U 収着実験(実験 8) 後、フェリハイドライト粒子の大部分を自然沈降させた後に回収した液相に 含まれていた粒子の SEM-EDX 分析
- A) SEM 像、B) Spot1 における EDX スペクトル、C) Spot2 における EDX スペクトル

- 3.1.4 令和4年度成果のまとめ
  - (1) <sup>137</sup>Cs、<sup>125</sup>I及び<sup>14</sup>Cの移行挙動の解明

HCP 試料及び溶脱変質試料を調製し、<sup>137</sup>Cs、<sup>125</sup>I 及び<sup>14</sup>C をトレーサーとした収着及び拡 散実験を実施した。未溶脱試料への<sup>137</sup>Csの収着は認められなかった一方、溶脱試料(6 mol·L<sup>-1</sup> NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>溶液処理)への<sup>137</sup>Csの  $K_d$ は40~230 L·kg<sup>-1</sup>であり、その温度依存性から決 定した収着エンタルピー  $\Delta H$ は-34±3.5 kJ·mol<sup>-1</sup> と負の値、すなわち収着は発熱反応で あることを明らかにした。非定常拡散試験では、試料の溶脱に伴い<sup>137</sup>Csの  $D_a$ は低下傾向 を示したことから、溶脱に伴う拡散経路の幾何学的形状の変化の影響に比べ、固相への収 着分配係数の増加による移行遅延効果が卓越したことが示唆された。溶脱試料中の<sup>137</sup>Cs の見かけの拡散係数の温度依存性から決定した拡散の $E_a$ は、52±4.3 kJ·mol<sup>-1</sup>となった。 得られた  $E_a$ 及び  $\Delta H$ の値から、<sup>137</sup>Cs は主に溶脱試料の空隙内部の自由水中を、収着によ る遅延を受けながら拡散している可能性が示唆された。溶脱試料中の<sup>137</sup>Csの移行挙動は、 収着による遅延効果を考慮したモデル(細孔拡散モデル)によって矛盾なく説明できた。

<sup>125</sup>I(I<sup>-</sup>イオン)は、未溶脱試料への収着が認められた一方で、溶脱試料への収着は認められなかった。非定常拡散試験より決定した<sup>125</sup>Iの $E_a$ は、未溶脱試料では 12.3±5.6 kJ·mol<sup>-1</sup>、溶脱試料では 1.2±1.4 kJ·mol<sup>-1</sup>であった。未溶脱試料への<sup>125</sup>Iの $E_a$ 及び $\Delta H$ より、<sup>125</sup>I はセメント試料の間隙内部の自由水中を収着による遅延を受けながら拡散していることが示唆された。一方で溶脱試料では、健全試料とは異なるプロセスで拡散している可能性がある。

酢酸イオン形の<sup>14</sup>C をトレーサーとしたバッチ式収着試験より、試料の溶脱処理の有無 に関わらず、固相への収着は認められなかった。非定常拡散試験から決定した<sup>14</sup>C の  $D_a$ は、 未溶脱試料では 10<sup>-12</sup>~10<sup>-11</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>、溶脱試料では 10<sup>-10</sup> m<sup>2</sup>·s<sup>-1</sup>のオーダーであり、試料の溶 脱に伴い  $D_a$ は約 1 桁増加した。未溶脱試料中の  $D_a$ の温度依存性から決定した  $E_a$ は、自由 水中の酢酸イオンの拡散の  $E_a$ とほぼ一致した。透過型拡散試験では、未溶脱試料への酢酸 イオン形<sup>14</sup>C の  $K_d$ は 0.30~0.59 L·kg<sup>-1</sup>となり、 $\Delta H$ は、20.3±2.1 kJ·mol<sup>-1</sup>と正の値であ ったことから、酢酸イオンの収着は吸熱反応であることが明らかになった。 $D_a$ の温度依存 性から決定した  $E_a$ は 41.0±3.0 kJ·mol<sup>-1</sup>であり、自由水中の拡散の  $E_a$ より高いことから、 支配的な拡散プロセスは自由水中とは異なることが示唆された。一方、溶脱試料では<sup>14</sup>C は破過せず、溶脱が<sup>14</sup>C の移行挙動に影響を及ぼすことが明らかになった。

以上の研究により、溶脱変質セメント中の<sup>137</sup>Cs、<sup>129</sup>I及び<sup>14</sup>Cの拡散係数、収着分配係 数等の基礎データが得られた他、過去の報告例の少ない溶脱セメント中の核種の拡散の活 性化エネルギーや収着のエンタルピーが得られ、核種の支配的な移行プロセスを解明した。 これらの知見は、1Fにおける溶脱変質が進行したコンクリート構造物中の核種移行予測 の高度化に寄与するとともに、1Fから生じる放射性コンクリート廃棄物の物量推計なら びに廃棄物管理シナリオ評価の高精度化に寄与すると考えられる。

(2) Uの収着挙動

本研究では、酸化鉄粒子とセメント系粒子が混在する固相へのUの収着と分配を調べた。 セメント系粒子が存在すると水相は強アルカリ性になる。令和2年度及び3年度に報告し たように、強アルカリ性では、酸化鉄にはUは収着しにくくなり、セメント系粒子にはU はよく収着する。これらの結果と、本年度に行ったヘマタイト--セメント系混合試料及び ゲーサイト--セメント系混合試料の実験結果は一致する。つまり、酸化鉄粒子とセメント 系粒子が混在する固相では、液相が強アルカリ性になるためUはセメント系粒子に選択的 に収着し、酸化鉄粉末にはほとんど収着しない可能性が高い。これらの実験ではUの初期 濃度が約40 ppmであったが、全ての実験でほぼ全て(>99.8%)のUが固相に収着した。

酸性を示す多孔質のフェリハイド粒子とセメント系粒子の混合試料では、U 収着実験後の pH は 7 であり、99.9%以上のU が収着した。収着実験後のフェリハイドライト粒子にU が検出されたが、セメント系粒子の存在が確認できなかった。セメント系粒子の大部分は 溶解したと考えられる。非酸性の多孔質酸化鉄粒子を用いて同様の実験を行った場合には、

強アルカリ性においても酸化鉄粒子に一部のUが収着する可能性が考えられるが、酸化鉄 粒子の比表面積が高くなるため、酸化鉄粒子に収着したUを機器分析することは難しい可 能性が高い。

U が酸化鉄粒子に収着するケースとしては、セメント(コンクリート)から離れた水相 で、溶存形の鉄が酸化鉄として析出するときに溶存形Uが酸化鉄に収着あるいは酸化鉄と 共沈するという2つのケースが考えられる。酸化鉄がUをよく収着することは、令和2年 度に報告した。酸化鉄が沈殿するときにUが共沈しやすいことは、Bruno等(1995)[11]、 Hobbs(1999)[12]、Hossain等(2002)[13]、Noubactep等(2006)[14]によって報告されて いる。本研究では試すことができなかったが、非酸性の多孔質酸化鉄粒子がセメント系粒 子と混在する場合には、アルカリ性条件でもUの一部が酸化鉄粒子に収着する可能性が考 えられる。しかし、フェリハイドライトを用いた実験で示したように、多孔質酸化鉄粒子 に収着したUの表面密度が小さくなるため、Uを検出することが難しくなると予想される。
- 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3年度までの概要[1、2]
    - (1) 劣化・損傷コンクリートの安定性評価

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、細孔組織が変質する。先行研究から、主要な水和物の一つである水酸化カルシ ウム(以下、「CH」と略す。)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。通常のコンクリート構造物においては、 水和物変質に伴う耐荷力の低下に至るまで長期間を要すため、あまり問題とならない。し かし、カルシウムイオンの溶出による表層品質の低下の観点から、コンクリートの微細構 造を調べることが重要である。従来の検出手法の精度は数 mm 程度であり、セメント水和 物組織の変質を精度よく調べるには、この範囲に及ぶ変質を再現するため比較的長期の試 験期間が必要とされた。そこで、大型放射光施設(SPring-8)のビームラインで開発された 非破壊 CT-XRD 連成法を用いて、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。

令和2年度には、水セメント比が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、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、実験から求 めた溶脱状況と比較するために、既存の模擬計算手法を改良してコンクリート、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 破砕処理に伴う粒度分布、吸水率、密度に及ぼす破砕処理回数の影響を調べ、破砕機(ジ ョークラッシャー)による2回の破砕処理まで影響を受けないことを示した。

令和3年度には、直径が3 mmで高さが6 mmの微小円柱供試体を採用し、溶出試験後の 供試体に対して大型放射光施設(SPring-8)BL28B2 の放射光白色 X 線を用いた非破壊 CT-XRD 連成法によってその変質状況を調べた。CT 断面画像及び関心領域の XRD 解析の結果、 1 か月の溶出試験で供試体の表層部の約 500 µm の範囲まで溶出フロントが進行することが 示唆された。また、骨材とセメントペーストの界面における遷移帯で溶脱領域と思われる 領域が認められた。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。これより、遷移帯の物性値をセメントペーストと異なるように設定することで、模 擬計算の結果から再現できることが示された。さらに、コンクリート用再生粗骨材に相当 するコンクリート塊の水中浸漬試験を実施し、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。

(2) C-S-H の合成・物性評価

令和2年度に C-S-Hを、令和3年度には C-A-S-Hの合成を行い、微細構造測定等の物性 評価を実施するとともに、北海道大学及び JAEA に C-S-H と C-A-S-H を提供した。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(高純度化学研究所社製、純 度 99%以上)、Si 源として親水性ヒュームドシリカ(日本アエロジル社製、AEROSIL 380)、A1 源として A1<sub>2</sub>0<sub>3</sub>(シグマアルドリッチ社製、粒径 50 nm 以下)及び超純水を用い た。C-A-S-H 及び C-S-H の合成パラメータは表 3.2-1 に示す通り、Ca/Si(Ca/(Si+A1))を モル比で 0.83、1.4 とし、A1/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、 20 ℃あるいは 40 ℃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。 図 3.2-1 及び図 3.2-2 にそれぞれ Ca/Si : 0.83、1.4、A1/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。

			// • -	-	// <b>·</b>		
液固比 (g)	CASH	Ca/Si	Al/Si	CaO	SiO <sub>2</sub>	$Al_2O_3$	合成温度
	(g)	(mol)	(mol)	(g)	(g)	(g)	(°C)
90	1	0.83	0.15	0.46	0.50	0.06	40
00	1	1.40	0.15	0.54	0.41	0.05	40
	CSH	Ca/Si	Al/Si	CaO	SiO <sub>2</sub>	$AI_2O_3$	
	(g)	(mol)	(mol)	(g)	(g)	(g)	
00	1	0.83	-	0.44	0.56	-	20
00	1	1.40	_	0.57	0.43	-	20

表 3.2-1 C-A-S-H 及び C-S-H の合成パラメータ



図 3.2-1 合成 C-S-Hの XRD プロファイル (Ca/Si: 0.83、1.4 合成温度: 20 ℃)



図 3.2-2 合成 C-A-S-Hの XRD プロファイル (Ca/Si:0.83、1.4、A1/Si =0.15、合成温度:40 ℃)

(3) 変質コンクリート系材料の物性評価

令和3年度は健全コンクリートにおいてブロモホルム及びエタノールから調整した重液 を用いて骨材とHCPを分離し、上澄みの粉体に対してXRD及びNMRの測定を実施した結果、 図3.2-3に示すように重液分離によりセメントペースト部が抽出されていることを確認した。



図 3.2-3 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

3.2.2 令和4年度実施結果 [劣化・損傷コンクリートの安定性評価]

(1) 概要

微小供試体に対して、打設後に所定の期間封緘養生し炭酸化試験を実施した。その後、 溶出試験を実施した。そして、非破壊 CT-XRD 連成法によって、水和物の溶脱に及ぼす炭 酸化の影響を調べた。改良した模擬計算手法を用いて、カルシウムイオン及び塩化物イオ ンの移動を再現して、長期に及ぶコンクリートの変質を予測した。特に硬化体中のマトリ ックス一骨材の界面(遷移帯)が及ぼす影響を調べるために、遷移帯の空隙構造に関する 入力値を変化させて模擬計算を実施した。さらに、既存コンクリート構造物を破砕したコ ンクリート塊を再生粗骨材として砕石と混合使用した再生骨材コンクリートの強度と耐久 性を調べた。

(2) 炭酸化の影響

微小円柱供試体(直径3 mm、高さ6 mm)は水セメント比が0.6のセメントペースト硬 化体である。結合材は研究用の普通ポルトランドセメントを用いた。所定の形状と寸法の アクリル製型枠を用いて、その型枠内ヘセメントペーストを打ち込んだ。脱型後、微小円 柱供試体を直接各種試験で用いることで、作製時の供試体の乱れの原因となる切り出しや 成型を不要とした。微小供試体は、恒温室(20±2 ℃)内で封緘養生を行い、その後、真 空デシケータ内で一定期間乾燥させた。炭酸化試験では、デシケータ内を真空ポンプで脱 気した後、バルブからプッシュ缶型の二酸化炭素ガスを注入して、硬化体を一定期間静置 した。(図 3.2-4 参照)。

炭酸化した硬化体を取り出し、溶出試験用の容器内へセットして、精製水(10 mL)で 満たし溶出試験を実施した。溶出試験は恒温室(20±2 ℃)において、定期的に溶液を全 量交換しながら 120 日間行った。溶出試験後は、非破壊 CT-XRD 連成法によって硬化体内 部を分析した。



図 3.2-4 プッシュ缶を用いた炭酸化試験

図 3.2-5 は、非破壊 CT-XRD 連成法の測定結果である。溶出に及ぼす炭酸化の影響を調べるために、炭酸化試験の有無で比較している。CT 断面画像及び関心領域(CT 画像における 1~3)における XRD 解析結果である。XRD チャートは、測定結果に加えて、カルサイト(Calcite)、ポルトランダイト(Portlandite)の解析値を示した。

炭酸化した硬化体は、溶出後のCT断面画像から変質は特に視認できない。また、XRD分析結果では硬化体の関心領域の位置に関わらずXRD チャートは同形であり、かつカルサイトの生成が顕著に認められる。これは炭酸化試験によって、硬化体全体が炭酸化したことによると思われる。さらに、炭酸化後、水と接することによる水和物の溶脱による変質はほとんど生じていないと思われる。一方、炭酸化なしの硬化体では水と常時接していた円縁の一部が白く変質している箇所が認められる。これは、溶出試験によってCHが溶脱し、非破壊試験の実施に伴う硬化体のハンドリングにおいて、空気中の二酸化炭素ガスと接触することで炭酸化カルシウムが生成したことによると推察される。また、関心領域2及び3ではポルトランダイトのピークが認められるが、円縁の関心領域1では認められない。したがって、溶出試験によって円縁からポルトランダイトが溶脱したことを示している。

一般に空気中におけるコンクリートの炭酸化は、カルシウム型セメント水和物が二酸化 炭素ガスと長期間触れることで生じるとされる。また、セメント硬化体の細孔構造が密に なる場合もある。これより、炭酸化した硬化体で溶出による変質が顕著でなかった理由は、 溶出の元となるポルトランダイトが炭酸化によって消失し、さらに空隙率の減少によって 溶出に関係するイオン種の移動が制限されたことが原因と推察される。このように、本研 究では微小円柱供試体を用いて非破壊 CT-XRD 連成法を適用することで、数か月の試験期 間で炭酸化による溶出現象への影響を評価できると考えられる。



図 3.2-5 溶出に及ぼす炭酸化の影響 非破壊 CT-XRD 連成法の測定結果 (左:炭酸化あり、右:炭酸化なし)

(3) 模擬計算

イオン同時輸送モデル SiTraM2D を用いて塩水(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4年度の模擬計算では、普通コンクリートをモデル化 して複数骨材がランダムに存在するようにスケールアップして実施した。解析モデルは図 3.2-6に示すように横が33 mm、縦が29 mm である(実寸法:横30 mm、縦26 mm)。境界 条件は、左辺が3%塩水(Cl<sup>-=</sup>0.51 mol·L<sup>-1</sup>)に常時接していると設定した。

模擬計算に用いたコンクリート及び遷移帯の物性値を表 3.2-2 及び表 3.2-3 に示す。遷 移帯の空隙構造及びセメント水和物の定量的な評価はほとんどなされていない。一般に遷 移帯は、母材(コンクリート)と比較してポーラスであることから、初期実効拡散係数及 び初期空隙率をそれぞれ 4 水準に設定した。実効拡散係数は、物質移動における屈曲度を 反映する空隙構造係数であり、解析では空隙率とは別に設定している。なお、Case 1 の遷 移帯の物性値は母材と同じ物性値を用いた。また、セメント水和物である CH 及び C-S-H 量は母材の 5 割と仮定した。最大 100 か月(約 8.2 年)までの変質を予測した。



図 3.2-6 模擬計算の解析モデル

**<sup>3-35</sup>** - 71 -

コンクリート	入力値
単位セメント量 (kg/m <sup>3</sup> )	300
単位水量 (kg/m <sup>3</sup> )	173
セメント種類	OPC
初期空隙率	0.12
初期実効拡散係数 (× 10 <sup>-8</sup> cm <sup>2</sup> /s)	3.76

表 3.2-2 コンクリートの主な入力値

表 3.2-3 遷移帯の入力値

	初期実効拡散係数	初期空隙率	CH(%)	CSH(%)
Case 1	3.76×10 <sup>-8</sup> cm <sup>2</sup> /s	0.12	50	50
Case 2	3.76×10 <sup>-8</sup> cm <sup>2</sup> /s	0.6	50	50
Case 3	3.00×10 <sup>-7</sup> cm <sup>2</sup> /s	0.6	50	50
Case 4	6.00×10 <sup>-7</sup> cm <sup>2</sup> /s	0.8	50	50

図 3.2-7 は模擬計算の結果を、ポルトランダイト(CH)の分布図として示した。カルシ ウムイオンは溶液と接する左辺から溶出して、固相水和物である CH が主要な供給源とな ることから、溶液との接触面に近接するほど濃度は低下する。Buil らによると CH の溶脱 が終了すると、液相のカルシウムイオン濃度が低下して C-S-H からカルシウムが溶出する とされる[15]。本解析では CH の溶脱フロントを変質とみなし、100か月後の変質範囲はお よそ 5~8 mm 程度であることがわかる。また、遷移帯の影響をみると、実効拡散係数や空 隙率が母材よりも大きく設定した Case 3、Case 4 において、変質の範囲は拡大している。

図 3.2-8 は図 3.2-7 の解析結果の一部領域を拡大した図である(図 3.2-6 の赤点線で囲まれた領域)。この図からも初期実効拡散係数及び空隙率が最も大きい Case 4 において、変質は遷移帯に沿ってより深部へ進行していることがわかる。また、Case 1 と Case 2 を比較すると、初期実効拡散係数を母材と同じ値として、初期空隙率だけを 0.12 から 0.6 へと大きくしても、変質範囲の相違は大きくない。空隙構造係数は、空隙率よりも屈曲度に関係しており、カルシウムイオンの拡散は屈曲度に大きく影響を受けたためである。



図 3.2-7 水酸化カルシウムの濃度分布



図 3.2-8 溶脱に及ぼす遷移帯の影響 (図 3.2-6 の赤点線内)

図 3.2-9 は、7200 時間(10 か月)経過後の塩化物イオンの浸透状況を比較した結果 である。なお、比較は、遷移帯の実効拡散係数と空隙率を母材と同じ値に設定した Case 1 及び各物性値を大きく設定した Case 3 である。コンクリート中へ浸透する塩化 物イオンは、外部溶液から供給されるので、外部溶液と接する面に近いほど塩化物イオ ン濃度は大きく、内部につれて濃度は低下する。解析結果より、Case 3 で塩化物イオン は深部まで浸透している。このことから、外部環境から浸透する塩化物イオンの移動に おいても遷移帯の影響が顕著であった。

72000 時間 (100 か月) 経過後のコンクリート内部における塩化物イオン濃度は、すでに飽和 (18.1 kg・m<sup>-3</sup> or 0.51 mol・L<sup>-1</sup>) に達しており、塩化物イオンの浸透は比較的速く進行することを確認した。これよりカルシウム溶出によって変質する範囲を大き

く超えて塩化物イオンは内部へ浸透することが確認された。なお、電気泳動試験からストロンチウムの移動係数を測定し、塩化物イオンとの差異を評価した。



図 3.2-9 塩化物イオンの浸透状況

(4) 粗骨材の一部をコンクリート塊で置換したコンクリートの性質

コンクリート構造物の解体によって発生したコンクリート塊に対して、ジョークラッシャーを用いて粒度調整した。粒度区分は再生粗骨材 L2005 相当である。また、破砕したコンクリート塊は「JIS A 5023:2018 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、破砕機による粉砕だけで製造される。逆に言うと、処理にかかる余計なエネルギーを必要とせず、さらに 2 次的な微粉末の発生も抑制できる。しかし、吸水率が大きく再生骨材コンクリートの品質が低下することにつながる。ここでは、本研究で製造したコンクリート塊も再生粗骨材と称する。なお、細骨材は全て普通骨材であり本配合では砕砂を用いた。

再生粗骨材の表乾密度は 2.41 g・cm<sup>-3</sup>、吸水率は 6.59%であった。再生骨材コンクリートの配合では、再生粗骨材の容積混合率は 0%、20%、50%とした。すなわち、普通粗骨材との混合使用における上限である 50%までを再生粗骨材で置換した。これによって、再生骨材コンクリートM(再生M1種)相当への適用が可能になると想定している。結合材は普通ポルトランドセメント及び混和材としてフライアッシュ(北海道電力産 JIS A 6201 II 種灰:強熱減量 2.0%、ブレーン比表面積:4500 cm<sup>2</sup>・g<sup>-1</sup>)を用いた。水結合材比は 46.6%として、フライアッシュ(F)は普通ポルトランドセメント(C)の内割(F/(C+F))で 20%置換した。また、目標スランプを 12±2.5 cm、目標空気量を 6±1.0%として、高性能 AE 減水剤及び AE 剤を練混ぜ時に添加した。打設後 24 時間以内に脱型して、材齢 21 日まで水中養生を実施した。その後、圧縮強度試験及び凍結融解試験開始まで封緘養生した。養生は恒温室(20±2 ℃)で行った。

圧縮強度試験は、JIS A 1108 コンクリートの圧縮強度試験方法に準じて実施した。強度試験の材齢は14日、28日、91日の3水準で行い、フライアッシュを用いた再生骨材コンクリートの強度発現について調べた。供試体の形状と寸法は標準に従い、直径が100 mm で高さが200 mmの円柱供試体である。

圧縮強度試験結果を図 3.2-10 に示す。再生骨材の容積混合率に従い、供試体名は NAF (容積混合率 0%)、RAGF20(容積混合率 20%)、RAGF50(容積混合率 50%)とする。強度 試験結果から、再生骨材コンクリートの圧縮強度は、各材齢において普通コンクリート (NAF)よりも若干小さい。NAF の各材齢における圧縮強度と比較して、材齢 14 日の場合、 RAGF20 が 98.7%、RAGF50 が 85.0%、28 日材齢でそれぞれ 96.1%、86.8%、91 日材齢でそれ ぞれ 96.6%、89.9%である。また、試験時の材齢が増加すると、全てのコンクリートにお いて強度が増加しており、フライアッシュのポゾラン反応による長期材齢における強度発 現が、再生骨材コンクリートに対しても確認することができた。すなわち、材齢 28 日に 比較して材齢 91 日の強度比は、RAGF20 で 145.9%、RAGF50 で 152.7%の増加を示した。こ のように、再生骨材の混合の有無にかかわらず、フライアッシュの効果が示された。



図 3.2-10 フライアッシュ再生骨材コンクリートの圧縮強度試験結果

凍結融解試験は、供試体を用いて凍結及び融解の急速な繰り返しによって試験する方法 であり、本研究では「JIS A 1148:コンクリートの凍結融解試験方法」に準拠して、水中 凍結融解試験方法(A 法)によって実施した。すなわち、供試体の断面は正方形で、その 1辺の長さは100 mmとし、供試体の長さは400 mmである。凍結融解の1サイクルは、供 試体の中心部温度が5±2 ℃から-18±2 ℃に下がり、-18±2 ℃から5±2 ℃まで上が る。本研究では8サイクル/日として、300サイクルで試験を終了した。所定の累積サイク ル数において、共鳴振動数を測定した。相対動弾性係数及び耐久性指数は次のように計算 した。

$$P_n = \left(\frac{f_n^2}{f_0^2}\right) \times 100$$

P<sub>n</sub>: 凍結融解n サイクル後の相対動弾性係数(%) f<sub>n</sub>: 凍結融解n サイクル後のたわみ振動の一次共鳴振動数(Hz) f<sub>0</sub>: 凍結融解0 サイクルにおけるたわみ振動の一次共鳴振動数(Hz)

$$DF = \frac{P \times N}{M}$$

3-39

- 75 -

## DF(DurabilityFactor): 耐久性指数 P:Nサイクルのときの相対動弾性係数(%) N: 相対動弾性係数が60%になるサイクル数、または300 サイクル M:300 サイクル

凍結融解試験の結果を耐久性指数(DF: Durability Factor)として図 3.2-11 に示す。 この DF は 300 サイクル終了時の値である。一般に劣化の許容限界は 60%とされている場合 がある[16]。これによると、RAGF20 及び RAGF50 の DF は 60%よりも大きく、本研究におけ る再生骨材コンクリートは良好な耐久性を有していると判定される。凍結融解試験の結果 は、コンクリート中の空気量に大きく支配されるが、本研究における再生骨材コンクリー トの配合計画及び供試体の作製にあたっては、質及び量において適正な気泡が導入された ためである。したがって、本研究で使用した再生骨材を容積混合率が上限の 50%で再生骨 材コンクリートを作製する際にも、母材の空気量や気泡分布を適切に実現することが重要 であることを示した。ただし、300 サイクル終了時の供試体の外観を調べるとスケーリン グが生じており、供試体の質量は減少していた。これは、再生骨材を使用しない NAF でも 観察され、再生骨材コンクリートとの差は明確ではなく、再生骨材によるものかは不明で あった。



図 3.2-11 300 サイクル終了後の耐久性指数

- 3.2.3 令和4年度実施結果 [C-S-Hの合成・物性評価]
  - (1) 実験概要

本研究における多重核磁気共鳴の測定対象核は<sup>1</sup>H、<sup>29</sup>Si及び<sup>27</sup>Alである。同測定ではこ れらの核種間で磁化移動等を生じさせるため、対象核同士が近傍に存在する必要がある。 <sup>1</sup>Hの天然存在比は 99.98%、<sup>29</sup>Siは 4.67%、<sup>27</sup>Al が 99.99%以上であり、<sup>29</sup>Siのみが著しく低 い。このため、核種間の磁化移動が充分に行われない懸念がある。

本研究では<sup>29</sup>Si の存在比率を 95%以上に濃縮した試薬を用いて C-A-S-H を合成することで、核磁気共鳴測定時の測定感度の上昇を試みた。C-A-S-H 及び C-S-H は、表 3.2-1 に示した通り、Ca/Si (Ca/(Si+A1))をモル比で1.4(健全)、0.83(変質)、A1/Si をモル比で0.15となるよう調製した。

(2) 実験結果

表 3.2-4 に C-A-S-H の合成パラメータを示す。合成期間は 182 日間とし、40 ℃に保っ た養生槽内で2回/1日ハンドシェイクにて攪拌を行った。また、天然鉱物中でSiとAlを 含有し結晶性が高い試料として kaolinite (Al<sub>4</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>10</sub>(OH)<sub>8</sub>)も用意した。

XRD(全自動多目的 X 線回折装置 SmartLab、株式会社リガク製)は、ターゲット CuKα、 管電圧 45 kV、管電流 40 mA、走査範囲 5~60 deg. 2θ、計測時間 2 s、 ステップ幅 0.02°、発散スリット0.5°、 散乱スリット0.5°、 受光スリット0.3 mm、モノクロ メーターを使用し測定した。図 3.2-12 に合成 C-A-S-H 及び kaolinite の XRD プロファイ ルを示す。合成 C-A-S-H 及び kaolinite ともにそれぞれに典型的な XRD プロファイルを示 した[17、18]。

NMR (INM-ECZ500R 11.7T、日本電子株式会社製) は、シングルパルス法を用い、測定対 象核は<sup>29</sup>Si 及び<sup>27</sup>Al として、MAS 回転数:12000 Hz あるいは15000 Hz、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。図3.2-13に合成 C-A-S-H及 び kaolinite の<sup>29</sup>Si NMR スペクトルを、図 3.2-14 に合成 C-A-S-H 及び kaolinite の<sup>27</sup>Al NMR スペクトルを示す。合成 C-A-S-H 及び kaolinite はそれぞれに典型的な <sup>29</sup>Si 及び <sup>27</sup>Al NMR スペクトルを示した[17、18]。特に kaolinite の <sup>29</sup>Si NMR スペクトルは  $Q_3$  シグナル (他の SiO<sub>4</sub><sup>4</sup>との共有架橋を 3 つ有する)のみ、<sup>27</sup>A1 NMR スペクトルは 6 配位に帰属する シグナルが得られた。これらのシグナルは一般的に結晶性の高い鉱物などに含有される Si 及び Al から得られることが多いため[18]、本研究で用いた kaolinite もまた高い結晶 性を有することが示された。

表 3.2-4 C-A-S-Hの合成パラメータ

液固比	CASH	Ca/Si	Al/Si	CaO	SiO <sub>2</sub> ( <sup>29</sup> Si)	$AI_2O_3$
	(g)	(mol)	(mol)	(g)	(g)	(g)
80	1.0	1.00	0.15	0.4598	0.5000	0.0627



図 3.2-12 合成 C-A-S-H 及び kaolinite の XRD プロファイル



図 3.2-13 合成 C-A-S-H(A) 及び kaolinite(B) の<sup>29</sup>Si NMR スペクトル



図 3.2-14 合成 C-A-S-H(A) 及び kaolinite(B) の<sup>27</sup>A1 NMR スペクトル

当初、交差分極法によって  ${}^{1}\text{H} \rightarrow {}^{29}\text{Si} \rightarrow {}^{27}\text{A1}$  と磁化を移動させ NMR スペクトルを取得する 計画であったが、kaolinite を用いた検討では、上記の手法では有意なスペクトルが得ら れないことがわかった。このため、本研究では  ${}^{1}\text{H}$  を励起せず直接  ${}^{29}\text{Si} \rightarrow {}^{27}\text{A1}$  への磁化移動 を試みた。本測定においては交差分極法を用いて MAS 回転数: 18000 Hz として総積算回 数 10240 回とした。図 3. 2-15 に kaolinite の  ${}^{29}\text{Si} - {}^{27}\text{A1}$  多重核磁気共鳴スペクトルを示す。  ${}^{29}\text{Si}$  における約 100 ppm の  $Q_3$  シグナルと  ${}^{27}\text{A1}$  約 0 ppm における 6 配位シグナルの共鳴が示 された。これは kaolinite の微細構造において、Si と A1 が磁化移動可能な距離に存在す ることを示す。実際に kaolinite では Si と A1 は酸素原子を介して  $\sigma$  結合を保持してい るため、この結合が共鳴として示されたと考えられる。

図 3.2-16 に合成 C-A-S-H の <sup>29</sup>Si-<sup>27</sup>Al 多重核磁気共鳴スペクトルを示す。Kaolinite と 同様の測定を実施したが、共鳴は検出されなかった。図 3.2-17 に C-A-S-H の微細構造モ デルを示す。セメント化学の分野では同モデルが C-S-H の微細構造を考えるうえでの前提 となる場合が多く、微細構造において Si と Al は酸素原子を介し  $\sigma$  結合を有すると考え られている。しかしながら、本研究では結晶性の高い kaolinite からは Si と Al の共鳴が 見られた一方で、C-A-S-H では同様の共鳴は示されなかった。これは、C-S-H の微細構造 はモデルで考えられている以上に非晶質的で、Si と Al の酸素原子を介した  $\sigma$  結合は必ず しも担保されていないことを示唆する。今回は合成 C-A-S-H を対象とし、合成パラメータ も限られていた。今後は検討を広げ、C-A-S-H の微細構造の同定につなげたい。

## JAEA-Review 2023-027



図 3.2-15 kaolinite の<sup>29</sup>Si-<sup>27</sup>Al 多重核磁気共鳴スペクトル



図 3. 2-16 合成 C-A-S-H の <sup>29</sup>Si-<sup>27</sup>Al 多重核磁気共鳴スペクトル



図 3.2-17 C-A-S-Hの微細構造モデル例

- 3.2.4 令和4年度実施結果 [変質コンクリート系材料の物性評価]
  - (1) 実験概要

コンクリート及び比較対象として HCP を用いて劣化試験を実施した。コンクリートは昨 年度健全試料として用いたものと同様の 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 まで粉砕した粉体及び300 μm~1 mm に粉砕した試料を用意した。300 μm~1 mm の粉体は 0.5M 及び 6M の硝酸アンモニウム水溶液中でそれぞれ 4 日及び 7 日間浸漬させた。90 µm 以下まで粉砕した試料においては、温度 25 ℃、湿度 95%、CO2 濃度 20%に設定した中性化 促進装置の中で 28 日間炭酸化を行った。浸漬あるいは炭酸化後の試料は D-dry により乾 燥を実施し、ブロモホルム(密度2.5 g·cm<sup>-3</sup>)及びエタノール(密度0.8 g·cm<sup>-3</sup>)を用い て密度 2.3 g・cm<sup>-3</sup>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。 HCP 試料は 3.1.1 で記載した通り北海道大学が作製し、0.5M、6M の硝酸アンモニウム溶液 に浸漬させた試料及び健全試料の3 試料を用いた。3 種類の試料においては、NMR (JNM-ECZ500R 11.7T、日本電子株式会社製)を用い、シングルパルス法、測定対象核は <sup>29</sup>Si 及 び<sup>27</sup>A1として、MAS回転数:12000 Hz あるいは15000 Hz、待ち時間:40秒(積算回数: 1600回)及び2秒(積算回数200回)としてHCP部の測定を実施した。

(2) 実験結果

図 3. 2-18 (A) に健全コンクリート及び 0.5 M、6 M 硝酸アンモニウム浸漬試料及び中性化 させたコンクリート試料の <sup>29</sup>Si MAS NMR スペクトルを示す。通常のセメント中では Si は SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>の正四面体で存在しており、他の SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>との共有架橋 0 の数に応じて Q<sup>0</sup>: -66~-78 ppm (他の SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>との共有架橋 0 なし)、Q<sup>1</sup>: -78~-81 ppm (他の SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>との共有架橋 0 -つ)、Q<sup>2</sup>: -81~-86 ppm (他の SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>との共有架橋二つ)、Q<sup>3</sup>: -86~-110 ppm (他の SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>との共有架橋三つ)、Q<sup>4</sup>: -110 ppm~(他の SiO<sub>4</sub><sup>4-</sup>との共有架橋四つ/飽和)で表さ れる[19、20]。健全な HCP 粉末において Q<sup>0</sup> は未水和セメント、Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup> が C-S-H であること が知られているが、健全試料のシグナルにおいてはQ<sup>1</sup>及びQ<sup>2</sup>が確認されたものの、0.5M、 6M の硝酸アンモニウム溶液浸漬させた試料においては Q<sup>1</sup> シグナルがほとんどなく Q<sup>2</sup> 及び Q<sup>3</sup> シグナルの比率が高いことから C-S-H はシリカゲル様の構造に変質していることが推察 される。

硝酸アンモニウム 0.5M 及び 6 M の溶液で浸漬させたコンクリート試料及び HCP 試料の 比較結果を図 3.2-18(B)に示す。6 M の硝酸アンモニウムで浸漬させた場合はコンクリー トと HCP の変質の状態に大差はないものの、0.5M の硝酸アンモニウム溶液に浸漬させた場 合においては HCP が未水和セメント及び C-S-H で構成されているに対してコンクリートは シリカゲルに変質していることが推察される。図 3.2-18(C)に示す健全試料のスペクトル の比較結果よりコンクリート試料の NMR スペクトルでは Q<sup>0</sup> シグナルが認められない且つ Q<sup>2</sup>/Q<sup>1</sup>が高いことからコンクリート試料は水和率が非常に高く C-S-H の Ca/Si は HCP に比べ て低いことが考えられる。コンクリートは材齢 50 年を超える試料であり、健全試料です でに Ca/Si が低いことから、若材齢で Ca/Si の高い HCP 試料に比べて少量の溶脱 Ca 量で シリカゲル様の構造に劣化したことが示唆される。 健全コンクリート及び硝酸アンモニウム 0.5 M、6 M 浸漬試料及び中性化させたコンク リート試料の<sup>27</sup>A1 MAS NMR スペクトルを図 3.2-18(D)に示す。<sup>27</sup>A1 MAS NMR においては 80 ~50 ppm 及び 40~30 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 A1 を示す。20~0 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[21]。<sup>27</sup>A1 MAS NMR スペクトルにおいては、劣化させた 3 試料は劣化条件によらずスペクトルが概ね一致した。 しかし、図 3.2-18(E)に示すコンクリートと HCP 試料の比較結果においては、0.5M の硝酸 アンモニウム溶液に浸漬させた HCP のみ異なるスペクトルを示した。これは<sup>29</sup>Si MAS NMR の結果と同様にコンクリートと HCP では材齢が異なり、図 3.2-18(F)に示す健全試料のス ペクトル結果においても C-S-H の構造及びアルミネート系の水和物が異なることが示され たため、低濃度の硝酸アンモニウムを用いた溶脱試験においては、溶脱試験後のコンクリ ートと、HCP の微細構造に差異が生じたことが推察された。



図 3. 2-18 硝酸アンモニウム溶液及び中性化によって変質させたコンクリート中の HCP の<sup>29</sup>Si MAS NMR(A~C)及び<sup>27</sup>A1 MAS NMR スペクトル(D~F)

A、D:健全コンクリート(材齢50年以上)、0.5 M、6 M 硝酸アンモニウム浸漬コンクリ ート試料及び中性化させたコンクリート試料

B、E:硝酸アンモニウム 0.5M 及び 6M の溶液で浸漬させたコンクリート試料(材齢 50 年 以上)及び HCP 試料

- C、F:コンクリート(材齢 50 年以上)及び HCP の健全試料
- 3.2.5 令和4年度成果のまとめ

(1) 劣化・損傷コンクリートの安定性評価

炭酸化したセメントペーストに対して 120 日間の溶出試験を行い、非破壊 CT-XRD 連成 法によって分析した。CT 断面画像から変質した様子は認められず、関心領域における XRD 測定では、カルサイトのピークが断面中心部まで認められた。一方、炭酸化なしでは、溶 液と常時接していた硬化体円縁において画素値が大きな箇所が認められた。また、断面中 心部近傍ではポルトランダイトのピークが認められた。

改良した SiTraM2D を用いた模擬計算によって、100 か月後のコンクリートの変質を予測 した。カルシウムイオンの溶出に伴う水酸化カルシウムの溶脱から判定した変質深さは5 ~8 mm 程度であった。この差は母材と骨材の界面である遷移帯が溶脱を促進するために生じたことを示した。また、塩化物イオンの浸透においても遷移帯は影響を与えるが、100か月後のコンクリート内部は塩化物イオンによって飽和状態に達していた。

コンクリート構造物から採取して粒度調整したコンクリート塊を普通粗骨材と混合して 作製したフライアッシュ再生骨材コンクリートの圧縮強度試験では、容積混合率が 50%に おいて約1割の強度低下を示したが、長期的に強度は増加していた。また、凍結融解試験 から求めた耐久性指数は、300 サイクル終了後も 60%を上回っていたが、表面のスケーリ ングが比較的多く生じていた。

(2) C-S-H の合成・物性評価

<sup>29</sup>Siの存在比率を高めた試薬を用いて合成した C-A-S-H は、典型的な XRD プロファイル、 <sup>29</sup>Si 及び <sup>27</sup>Al NMR スペクトルを示した。この C-A-S-H を対象に、直接、<sup>29</sup>Si→<sup>27</sup>Al へ磁化 移動による多重核磁気共鳴スペクトルの取得を試みた。同様の方法で結晶性の高い kaoliniteからはSi と Al の共鳴が見られた一方で、C-A-S-H では共鳴は示されなかった。 このことから、C-S-H の微細構造がセメント化学で考えられているモデル以上に非晶質的 で、Si と Al の酸素原子を介した  $\sigma$  結合は必ずしも担保されていない可能性が示唆され た。

(3) 変質コンクリート系材料の物性評価

材齢 50 年以上のコンクリート試料及び HCP 試料について、0.5 M、6 M の硝酸アンモニ ウム溶液への浸漬及び中性化処理により劣化させた後、<sup>29</sup>Si 及び <sup>27</sup>Al を対象核とした NMR 測定により微細構造を評価した。0.5 M の硝酸アンモニウムで浸漬し、溶脱の程度が軽い 場合には、シリカゲル様の構造への変質度合い等の微細構造に差異が出たが、これは劣化 処理前の水和度や Ca/Si 比が異なるためと考えられた。

- 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3年度までの概要[1、2]
    - (1) 多核種移行モデルの構築・評価

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。

(2) 移行モデルの検討

<sup>129</sup>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った。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こと、また、<sup>14</sup>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、特に窒素(N)の量の把握が重要であることがわかった。

3.3.2 令和4年度実施結果 [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
  - ①概要

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<sup>137</sup>Cs 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 礫等の高線量固体廃棄物(>30 mSv/h)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、固体廃棄物保管施設内に収容されている。線 量は、底面及び3つの側面において計測され、コンテナごとに4つの線量測定結果がま とめられている。

昨年度のコンテナ内の放射能インベントリの推計の検討では、コンテナ内の瓦礫の形 状を直方体で模擬し、その表面に線源を配置してモデル化し、線量計での線量率測定の シミュレーションを行った。線源強度の分布をランダムに設定するモンテカルロ計算に より、線量率と線源強度の関係を統計的に取得した。ただし、線源強度の分布を表現す るために必要となる入力パラメータの数が多いため、モンテカルロ計算の効率や得られ る統計情報の代表性・網羅性に課題が残っている。また、線源強度の確率分布に関して 事前の知識を全く前提としない現状の解析においては、モンテカルロ計算によって得た 線量率の確率密度分布から逆算する線源強度について、その変動範囲以外の確率分布の 情報に物理的意味はない。

そこで本年度は、コンテナ内の線源強度の推計のために、より簡易なモデルを用い、 効率的に誤差を求める手法の開発を目的とした。線量率のばらつきと線源のコンテナ内 の分布や線源強度の誤差との関係についても検討を行った。

②方法

コンテナ内の瓦礫のモデル化は、以下の2つの観点に分けられる。

1) 線源の分布に関するモデル

2) 遮蔽体としてのモデル

本検討では、以下のように遮蔽体としての瓦礫をモデル化した。コンテナ内部の個々の 瓦礫の形状は無視し、コンクリートと空気の混合物(密度 1.48 t・m<sup>-3</sup>)がコンテナ内 部の底面から高さ H (cm)まで均一に充填されているものとしてモデル化した(図 3.3-1)。コンテナごとの重量をもとに混合物の高さ H を設定した。

線源の分布については、上記の混合物中に均一に線源が分布している均一線源モデル と、不均一性などを表現するため、混合物領域を 32 分割(4×4×2)して、分割された 各々の領域に線源強度を設定する不均一線源モデルを用いた(図 3.3-2)。

線量率測定シミュレーションにおいて、コンテナは 2.2 m×2.2 m×1.5 m (肉厚 5 mm) の鉄製容器とした。コンテナ側面に設置した 3 つの線量計は、各々の側面中央の外側表 面から 1m の位置に配置した。コンテナ底面の線量計は、底面中央の外側表面から 0.5 m の位置に配置した。



図 3.3-1 コンテナ内部の瓦礫のモデル化



空隙とコンクリートの均一な混合物

図 3.3-2 コンテナ内部の線源モデル:均一線源モデル(左)、不均一線源モデル(右)

③ 結果

線量計の値からコンテナ内部の放射能インベントリを推定するために、まずコンテナ 内の線源強度と線量率の換算係数を取得した。単一の単位放射能インベントリを持つガ レキ等を模した線源をコンテナ内に設置し、コンテナ外に設置した線量計でコンテナか らの線量率を求めるシミュレーションを行った。この単位放射能あたりの線量率が、線 源と、線量率との換算係数となる。

求められた換算係数と線量率の実測データを用いることで放射能インベントリを推定 することができる。ここで、コンテナ内に設置した線源の位置や、線量計の位置に依存 して換算係数が変化する。そのため、各々の位置の線源から各々の位置の線量計への換 算係数を取得した。コンテナ内部に複数の線源がある場合の線量計の線量率は、各々の 線源からの寄与を加算したものに等しい。

さらに、コンテナ内の瓦礫重量によって瓦礫の高さHが変化するため、線源強度と線 量率の換算係数も瓦礫重量に依存して変化する。ここでは、5 種類の重量において換算 係数を PHITS[22]計算から取得し、その他の重量においては換算係数を補間した(図 3.3-3)。



図 3.3-3 瓦礫重量のヒストグラムと線量率 - 線源強度換算係数の例

均一線源モデルにおいては、モデルの特性上、各線量計の線量率と線源強度が1対1 で対応するため、4つの線量計から個別の線源強度(<sup>137</sup>Csインベントリ)が得られる。 本検討では、これら4つの値の平均値をもって均一線源モデルによるインベントリ推定 値とした。得られたインベントリ(Bq)を瓦礫重量で除して放射能濃度を推定した。 786個のコンテナについて得られた放射能濃度のヒストグラムを図3.3-4に示す。



図 3.3-4 均一線源モデルで得た<sup>137</sup>Cs 濃度のヒストグラム (縦軸はコンテナ個数を表す)

均一線源モデルで実際には不均一な線源分布のコンテナのインベントリ推定を行うと、 どれほどの誤差が生じるのかを以下のように評価した。32 分割された不均一線源モデ ルによる PHITS シミュレーションから得られた線量率データを用い、均一線源モデルで インベントリの推定を行い、不均一線源モデルに設定したインベントリの真値に対する 均一線源モデルの推定値の比を計算した(図 3.3-5)。極端な不均一性を表現するために、 32 分割された領域のうち、線源領域 *i* の線源強度を  $\alpha$  [Bq]とし、それ以外の線源領 域 *j* における線源強度を  $k\alpha$  [Bq]とした ( $j \neq i, 0 \le k \le 1$ )。k = 0 の場合、線源は 領域 *i* のみに分布し、線量計の値のばらつきが大きくなる。k = 1 の場合、線源は均 一に分布することになり、この場合のみ均一線源モデルで正確に線源分布を表現するこ とが可能である。

この条件で、インベントリの真値に対する均一線源モデルの推定値の比を計算した瓦 礫の高さ H=96 cmの場合の結果を図 3.3-6 に示す。図中、縦軸が真値に対する推定値 の比を表す。横軸は、3 つ(右側、正面、左側)の側面線量率の平均値に対する比の標 準偏差を表す。16本の曲線は各々が領域 *i* に対応する(左右の対称性のため 32 個の領 域は 16本の曲線に対応する)。図 3.3-6の各々の曲線には線源強度  $\alpha$  (Bq)を配置し た領域番号 *i*の値を記しており、それぞれの領域番号は図 3.3-7 に示す線源領域に対応 する。図 3.3-6の各々の曲線は、 $0 \le k \le 1$ の範囲で *k* を変化させた際の縦軸・横軸 の値の変化を表している。k = 0 において、線源の分布が最も極端に不均一となり、線 量率の値も場所によってばらつくため、横軸の標準偏差  $\sigma$  が最も大きくなる。すなわち、 各々の曲線の右側の端点が k = 0 に相当する。*k* の値が大きくなり 1 に近づくにつれ、 線源分布は徐々に均一になり、側面線量率に関する標準偏差  $\sigma$  (横軸) は小さくなり 0 に向かう。k = 1 においては、均一線源モデルでの推定値が真値と一致するため、全て の曲線は縦軸の値 1 に収束する。

図 3.3-6 の曲線は、推定値/真値の比が 1 以上のものと 1 未満のものに大きく分かれ る。線源領域 *i* の場所で色分けすると、図 3.3-7 のように線量計のあるコンテナ側面 に接する外側領域(赤・緑)と接しない内側(裏側)領域(青)に分けられた。均一線 源モデルでは、外側領域では過大評価される傾向が強く、内側領域では過小評価される ことがわかる。なお、均一線源モデルでは底面側を含めた 4 つの線量計によるインベン トリ推定値の平均をとるため、線源が下段に偏った場合の方が、上段にある場合よりも インベントリ推定値が高くなる傾向がみられた。例えば、領域 *i* = 1 (下段)の真上に 領域 *i* = 7 (上段)があるが、線源が領域 1 にある場合の方が領域 7 にある場合よりも インベントリが高く推定されている。

側面線量率の平均値に対する比の標準偏差 $\sigma$ と線源位置の関連性が示されたことにより、均一線源モデルにおけるインベントリ推定値の誤差の範囲を見積もることが可能となった。図 3.3-6の例では  $\sigma < 0.4$ においては、推定値/真値の比は 0.06~1.3 であり、推定値がインベントリを大きく過小評価する可能性が示された。一方、 $\sigma > 0.4$ においては、推定値/真値の比は 0.86~1.7 の範囲に収まり、推定値が過小評価してもその誤差は比較的小さいということが言える。

以上のように、側面線量率の平均値に対する比の標準偏差から、均一線源モデルにお けるインベントリ推定値の誤差の範囲を大まかに見積もることが可能であり、不均一な 線源分布に関する情報もある程度得られることがわかった。



図 3.3-5 誤差の検討に用いた不均一な線源の設定



図 3.3-6 インベントリ推定値と真値の比



図 3.3-7 線源領域番号と誤差の傾向に基づく線源領域の分類

(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、構造物の厚さや形状、放射性核種 の滞留水中濃度を与条件として、場所に応じてコンクリートを分類し、コンクリート内部 の複数核種の放射能濃度分布を推計した。

コンクリート構造物の厚さや形状によって、放射性核種濃度分布の計算における境界条 件等が異なる。ここでは、大きく以下の4種類の形状による分類を行った。

- ・ 建屋外周の壁(内側:滞留水、外側:地下水)
- ・ 建屋内部の壁(両面から汚染)

・ 格納容器台座基礎(円筒形状、側面から汚染)

・ 床・基礎マット(上面:滞留水、下面:地下水)

図 3.3-8 及び図 3.3-9 に 3 号機原子炉建屋等における分類の例を図示する[25、26]。本 検討では、建屋内部の壁については厚さを1 mに、建屋外周の壁については厚さを 1.5 m と一律に設定した。

また、建屋地下部に滞留した汚染水中の放射性核種濃度は、場所によって異なる。ここでは、原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物処理建屋、サービス建屋に分類した。表3.3-1 に3 号機建屋地下部のコンクリート分類と滞留水に晒されたコンクリートの物量の推計についてまとめる。ここで、3 号機原子炉建屋における滞留水の水位は時間とともに低下してきた経緯があるが、東京電力ホールディングス[23]によると、2011年12月23日時点で0.P.+3,434 mm あった。3 号機原子炉建屋の床面が T.P.-3,496 mm であることを考慮して[24]、床面から 8,230 mm 以上の高さまで過去に滞留水に浸かったことがわかる。ここでは、床面から 10 m の高さまで汚染水に晒されたこととした。

滞留水中の核種濃度については、時間とともに変化させず一定な値として保守的に濃度 を過大評価することとした。図 3. 3-10 に <sup>137</sup>Cs 及び <sup>129</sup>I の事故後 10 年及び 40 年における 濃度分布計算結果を示す。<sup>137</sup>Cs に関して溶脱の有無に対しては見かけの拡散係数及び収着 分配係数の実験値を反映した。セメントペースト中における Cs の収着分配係数は 0 m<sup>3</sup>・ kg<sup>-1</sup>(溶脱なし)及び 0.198 m<sup>3</sup>・kg<sup>-1</sup>(溶脱あり)とした。また、セメントペースト中で の Cs の見かけの拡散係数は 4.52×10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>・s<sup>-1</sup>(溶脱なし)及び 2.29×10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>・s<sup>-1</sup>(溶 脱あり)とした。これらの値と空隙率の測定値(表 3.1-1)に基づき実効拡散係数を求めた。 (a1)と(a2)及び (b1)と(b2)の比較より、溶脱が進展したコンクリートにおいては、収着 分配係数がより高いため、表面付近における濃度がより高い。さらに、より深くまで Cs が拡散していることがわかる。溶脱していない健全なコンクリートでは、セメントペース ト中に侵入した Cs の大部分が骨材に拡散・収着するために、奥までの拡散が遅くなって いることがわかった。



図3.3-8 3 号機地下部のコンクリート構造物の分類(垂直断面図)([25]を参考にイメージを作成)



3号機地下部のコンクリート構造物の分類(平面図)([25][26]を参考にイメージを作成) 図 3.3-9

							第 留 水 中 の ※	農度[Bq/m <sup>3</sup> ]
ービクイロ	ト構造物の分類	厚さ[m]	橫幅[m]	高さ[m]	面積[m <sup>2</sup> ]※1	体積[m <sup>3</sup> ]	Cs-137	I-129
	建屋外周壁(内側:滞留水、外側:地下水	1.5	204.8	10.0	2048	3072	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
原子炉	建屋内部の壁(両面から汚染)	1.0	127.4	10.0	1274	1274	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
建屋	床・基礎マット(上面:滞留水、下面:地下水)	4.0			2179	8716	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
	格納容器台座基礎(側面から汚染)	1		10.0	415	4155	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
1 N N	建屋外周壁(内側:滞留水、外側:地下水	1.5	341.5	10.0	3415	5123	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
	建屋内部の壁(両面から汚染)	1.0	448.4	10.0	4484	4484	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
年月	床・基礎マット(上面:滞留水、下面:地下水)	2.0			6936	13878	$1.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{5}$
ok 茲 Ma hu III	建屋外周壁(内側:滞留水、外側:地下水	1.5	198.2	10.0	1982	2973	$1.0 \times 10^{11}$	$1.0 \times 10^4$
<u> </u>	建屋内部の壁(両面から汚染)	1.0	173.2	10.0	1732	1732	$1.0 \times 10^{11}$	$1.0 \times 10^4$
IJ IJ	床・基礎マット(上面:滞留水、下面:地下水)	2.0			1224	2448	$1.0 \times 10^{11}$	$1.0 \times 10^4$
サービス	建屋外周壁(内侧:滞留水、外侧:地下水	1.5	191	10.0	1910	2865	$1.0 \times 10^{11}$	$1.0 \times 10^4$
建屋	床・基礎マット(上面:滞留水、下面:地下水)	2.0			1124	2247	$1.0 \times 10^{11}$	$1.0 \times 10^4$
※1 壁にた	ついては片面の表面積(横幅×高さ)を表す。また、	床については	は汚染水に晒	される床面移	きを、格納容	器台座基礎		
に関しては	水平断面積を表す。							

表3.3-1 3 号機建屋地下部のコンクリート分類

**3-56** - 92 -



図 3.3-10 放射性核種の濃度分布評価結果 青線は事故から 10 年後、オレンジ線は 40 年後における濃度分布を示す。

- 3.3.3 令和4年度実施結果 [移行モデルの検討]
  - (1) <sup>14</sup>Cの移行挙動

<sup>14</sup>C の移行挙動に関して、瓦礫試料の分析データを整理し、<sup>3</sup>H の濃度との相関から被覆 管に含まれる放射化生成物に由来するものと考察した。瓦礫類に検出された <sup>14</sup>C とやはり 放射化生成物である <sup>60</sup>Co 濃度の相関を図 3.3-11 に示す[27]。瓦礫中の <sup>14</sup>C は <sup>60</sup>Co との相関 がうかがわれる。 <sup>60</sup>Co は原子炉の構造材料に多く生成するが、<sup>137</sup>Cs に比べても濃度の相関 が良い核種が多い[28]。事故が進展する過程の初期に <sup>60</sup>Co が放出、移行したとすると、<sup>14</sup>C と相関が認められることも妥当であると考えやすい。

<sup>14</sup>C は汚染水中にも分析データの数が少ないものの検出されており、水を経由した汚染 の挙動を検討した。<sup>14</sup>C の分析値を公開されているデータベースから抽出した結果を表 3.3-2 に示す[27]。種々の汚染水が分析されている中で、データは 3 点に限られ、その内 訳は、1 から 4 号機から集中廃棄物処理施設の高温焼却炉建屋(HTI/B) へと移送された滞 留水が 1 点、第二セシウム吸着装置(SARRY)において処理された水が 2 点である。<sup>14</sup>C の 挙動を推定するにはデータは断片的であり、これは濃度がごく低いことの証左であると見 られる。

放射化生成物としての由来に関して、<sup>60</sup>Co 濃度との相関を図 3.3-12 に示す。いずれの 核種についても検出されている試料は HTI/B 滞留水のみであり、<sup>60</sup>Co の濃度が 2 桁ほど高 い場合にあっても <sup>14</sup>C は検出されなかった。鉄鋼系材料に由来するであろう <sup>60</sup>Co と明確な 相関が見られず、<sup>14</sup>C の挙動は <sup>60</sup>Co とは独立して水中に溶存すると捉え、また、炭素が 種々の化学形を取りうることを考慮しつつ検討することが適当と考えられる。



図 3. 3-11 瓦礫類の<sup>14</sup>C と<sup>60</sup>Co 濃度の相関

表 3.3-2 汚染水に検出された <sup>14</sup>C 濃度

採取場所*	試料	採取日	試料番号	分析值(Bq/cm <sup>3</sup> )
高温焼却炉建屋(HTI/B)	地下滞留水	2015/3/3	LI-HTI4-2	$(2.6\pm0.2)\times10^{-1}$
第二セシウム吸着装置	S-1A 出口水	2018/3/15	LI-SA11-2	$(1.0\pm0.2)\times10^{-1}$
(SARRY)	S-3A出口水	2018/10/10	LI-SA13-2	$(7.9\pm1.2)\times10^{-2}$

\*1、2及び3号機原子炉建屋滞留水(高温焼却炉建屋採水口にて2017年2~5月に採取)、 集中RW建屋滞留水(2011年8月~2014年9月)、高温焼却炉建屋滞留水(2011年11月 ~2018年10月)、セシウム吸着装置(KURION)出口水(2013年2月)、淡水化装置濃廃 水(2012年8月)、蒸発濃縮装置濃廃水(2011年11月)、第二セシウム吸着装置(SARRY) 工程水(2012年5月~2018年10月)、多核種除去設備(ALPS)工程水(2013年4月~ 2014年5月)からは不検出。



図 3.3-12 汚染水に検出された <sup>14</sup>C と <sup>60</sup>Co 濃度の相関

ジルコニウム-水素反応により生成した水素は、水素原子として酸化物層に取り込まれる[29]。その一部はジルコニウム合金中に拡散していき、結晶中の格子間に配置される。 安定的に保持されている水素が金属から拡散する際の化学種が重要となる。

被覆管に含まれる<sup>14</sup>C は、使用済みの被覆管を処分するうえで重要な核種であり、処分 の際の挙動が調べられている。処分場において水と接触し、地中で移行するふるまいが着 目されており、Yamaguchi らによる PWR 被覆管を試料とした検討では、無機と有機化学種 が考慮された[30]。燃焼度が 47.9 GWd/t の PWR 被覆管を水に浸漬し、炭素の物質収支に 関するデータが示された。液相、気相への移行に関する物質収支を表 3.3-3 に示す。液相 へ移行した<sup>14</sup>C は多くが有機炭素として観察され、さらに気相へと二次的に移行した<sup>14</sup>C は 検出されなかった。1F では、被覆管と過熱した水蒸気が接触、反応したので、生成した 化学種と水と空気への移行挙動は異なる可能性がある。

表 3.3-3	照射した PWR 被覆管の浸漬における液相、	気相への移行挙動

試験期間(月)	液	相	気相		
	無機 <sup>14</sup> C	有機 <sup>14</sup> C	$CO_2$	CO	CH <sub>4</sub>
3	<0.1%	100%	<0.1%	<0.1%	<0.1%
5.5	21.1%	78.9%	<0.1%	<0.1%	<0.1%

事故が進展する中で、被覆管が損傷し<sup>14</sup>C が拡散する過程は、炭素が化学的に多様な形態を取りうるために現時点で未だモデル化には至らない。しかしながら、<sup>14</sup>C の挙動は重要であり、モデル化に向けた努力を継続して進めるべきである。想定する体系は図 3.3-13 に示すように、被覆管の損傷時とその後の損傷した燃料の冷却時を主要な段階として考え、被覆管の損傷時には、空気と飽和水蒸気の系における<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 高温の水粒子へ溶解する反応、損傷した燃料の冷却時には、常温下での被覆管から水への溶解する反応が重要と考えられる。



図 3.3-13 事故の進展において重要と考えられる<sup>14</sup>Cの移行経路

3.3.4 令和4年度成果のまとめ

(1) 多核種移行モデルの構築・評価

固体廃棄物貯蔵庫のコンテナ内部の放射能インベントリを算出するモデルを構築し、コ ンテナ外部の線量率測定データからコンテナ内部のコンクリート瓦礫の放射能インベント リを推定した。コンテナ内における不均一な線源分布に由来する誤差を、コンテナ側面で の線量測定結果のばらつきに基づき評価することが可能となった。また、滞留水中のコン クリート構造物中の放射性核種濃度分布については、構造物の厚さや形状、滞留水中の核 種濃度を考慮して、場所に応じてコンクリートを分類し、対象となる汚染コンクリートの 物量を整理した。溶脱を考慮したコンクリート構造物内の放射性核種濃度分布を推定した。 (2) 移行モデルの検討

瓦礫試料の分析データを整理すると<sup>14</sup>C と<sup>3</sup>H の濃度との相関から被覆管に含まれる放射 化生成物に由来する可能性が考えられる。<sup>14</sup>C は汚染水中にも検出されているが、データ が断片的であり、これは濃度がごく低いため、その挙動を推定するのは困難である。事故 が進展する中で、被覆管が損傷し<sup>14</sup>C が拡散する過程は、被覆管の損傷時とその後の損傷 した燃料の冷却時を主要な段階として考え、被覆管の損傷時には、空気と飽和水蒸気の系 における<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> の高温の水粒子へ溶解する反応、損傷した燃料の冷却時には、常温下での 被覆管から水へ溶解する反応が重要であると考えられた。また、水へ移行する<sup>14</sup>C の化学 種は無機とともに有機物を考慮して検討すべきであることがわかった。炭素は多様な化学 形態を取りうるために現時点で未だモデル化には至らないが、<sup>14</sup>C の挙動は重要であり、 モデル化に向けた努力を継続して進める必要がある。

- 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3年度までの概要
    - (1) 廃棄物管理に係るデータ整備

令和3年度までには、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行った。また、廃棄物管理を含む廃炉を持続的に進めていく うえで、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 に伴う二次的な廃棄物、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 (環境修復など)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。

(2) 評価手法の検討

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 核種漏洩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。

(3) シナリオの構築・評価

廃棄物を発電所内で保管管理する条件を考慮した。東京電力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)が重要と考えられた。

タイムラインとエンドステートを組み合わせて、コンクリート構造物の解体・撤去と廃 棄物管理に係る具体的なシナリオを構築するための基本的考え方を整理した。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 処分と分類した。このシナリオに対し、SED 指標の他、コスト、実行可能性等の観点から 比較・評価を行った。

3.4.2 令和4年度実施結果 [廃棄物管理に係るデータ整備]

(1) シナリオの構成要素

廃棄物管理シナリオを構築するうえで重要な構成要素として、廃炉の最終状態、解体の 範囲、解体物の貯蔵・保管方法が挙げられる。これらの観点を整理する。

廃炉の最終状態

廃炉は、予め定められている最終状態(エンドステート)が達成されたときに完了す る。エンドステートは国の法規制に則している必要があり、環境、資金の有無、ステー クホルダーの意向、次の土地利用の用途などの影響を受ける。エンドステートとして、 施設、サイトの全部、または一部の除染・解体が完了した状態、また、跡地の将来利用 についても無制限利用あるいは制限付き利用とすることができるなど、設定できる範囲 が広くなっている[31]。

本検討では、エンドステートとして 1)サイト全体が無制限利用できる状態(グリー ンフィールド)、2)建屋の地下構造物を残存させて管理を継続し、サイトの一部が利用 可能な状態(ブラウンフィールド)を設定する。

2 解体の範囲

エンドステートに合わせて、解体範囲としては、1)グリーンフィールドとなるよう、 全ての建屋構造物を解体する場合と、2)原子炉建屋及びタービン建屋の地下部分を残存 させ、地上部を解体する場合の2通りを設定する。

③ 解体物の貯蔵・保管方法

解体物の保管方法としては、大まかに、1)容器等に収納して簡易建屋等に仮に収納、 2)安定化処理後に保管建屋に収納、3)処分施設に搬入して処分という段階を踏むと仮定 する。 (2) 除染・解体の工法と廃棄物の形状

「地上構造物の撤去」は格納容器内のコンクリート構造物(熱遮蔽など)、生体遮蔽体、 建屋構造物が対象になる。基本的な解体工法として、格納容器内のコンクリート構造物 (熱遮蔽など)と生体遮蔽は「遠隔解体」、その他の領域は除染により放射性廃棄物とな る部分を取り除いた後に、「重機等を用いる在来工法」と設定する。「地下構造物の撤去」 も、除染により放射性廃棄物となる部分を取り除いた後に「在来工法」によって解体する と設定するが、重機を適時適用して作業の効率化を図る。「地下構造物の撤去」について は、建屋が汚染水に浸かっていた部分が存在すること、閉じ込められた空間であることな ど、除染・解体作業の条件や廃棄物の運搬の方法が地上部の構造物と異なる。これらの作 業では粉塵の発生が予想されるため、ビニールテントなどを用いて汚染拡大の防止を図る 必要がある。

「在来工法」の前に実施する表面除染の深さが cm オーダーとなる場合には、ブレーカー などの適用が必要となり、除染によって発生する廃棄物は塊状となる。mm オーダーの場 合にはプレーナー、サンドブラスト、ショットブラストなどの工法が用いられ、粉状の廃 棄物が発生する。遠隔解体工法を用いる場合には、解体作業で発生する放射性廃棄物は固 体ブロック状と想定される。図 3.4-1 に想定した除染・解体作業の順序を示す。



図 3.4-1 想定した除染・解体作業の順序 オレンジは遠隔解体、青は在来工法による解体

(3) 物量

本検討は、1F3 号機を対象とし、物量については、NUREG/CR-0672[32]及び野村ら[25] に基づいて各領域に割り振った。物量の推計結果を表 3.4-1 に示す。コンクリート物量と の図面[25]から概算した原子炉建屋内の壁・天井・床面積は地上部が約 3.5×10<sup>4</sup> m<sup>2</sup>、地下 部が約 6.7×10<sup>3</sup> m<sup>2</sup>、タービン建屋は地上部が約 4.5×10<sup>4</sup> m<sup>2</sup>、地下部が約 2.8×10<sup>3</sup> m<sup>2</sup>、廃 棄物処理建屋が約 3.0×10<sup>4</sup> m<sup>2</sup>となった。

	容積(m <sup>3</sup> )	<u>重</u> 量(t) <sup>a</sup>	地上部(t)	地下部(t)
原子炉建屋				
一般構造用	27, 100	62, 330	$39,833^{d}$	$22, 497^{d}$
遮蔽用	14, 700	33, 810	22, 787	11,025
熱遮蔽b	(320)	(737)	(737)	(0)
格納容器。	(1, 431)	(3, 292)	(2, 195) <sup>e</sup>	$(1, 097)^{e}$
生体遮蔽	(12, 949)	(29, 783)	$(19, 855)^{e}$	(9, 928) <sup>e</sup>
人工岩	6,100	14,030	0	14,030
小計	47,900	110, 170	62, 620	47, 552
タービン建屋				
一般構造用	31, 700	72,910	$54,921^{d}$	$17,989^{d}$
遮蔽用	19, 100	43, 930	29, 287	14, 643
人工岩	24, 350	56,005	0	56,005
小計	75, 150	172, 845	84, 208	88,637
廃棄物処理建屋				
一般構造用	2, 100	4,830	4,830	0
遮蔽用	4,200	9,660	9,660	0
人工岩	1,000	2, 300	0	2, 300
小計	7, 300	16, 790	14, 490	2, 300
合 計	130, 350	299, 805	161, 318	138, 489

表 3.4-1 3 号機物量の推定

()は内数。四捨五入のため、合計が一致しない場合がある。

a: コンクリートの比重を 2.3 t·m<sup>-3</sup>として計算。

b、c: NUREG/CR-0672[32]から換算。

d:野村ら[25]より各階の容積に基づいて割り振り。

e: 格納容器、生体遮蔽については 1/3 を地下とした。

3.4.3 令和4年度実施結果 [評価手法の検討]

(1) 基本的考え方

1F 廃炉で発生する放射性廃棄物の特性は多様であり、建屋構造物の除染や解体で発生 するコンクリート廃棄物については比較的放射能レベルは低いものの、大量になることが 予想される。発生するコンクリート廃棄物の特性や量を含めて、最終処分に向けてどのよ うに廃棄物管理を実施するかは重要な課題である。このため、1F 廃炉の安全性、効率性、 社会受容性等の観点から、3.4.2 で示した廃棄物の量と特性に基づいて廃棄物管理シナリ オを検討することが必要である。

廃棄物管理シナリオは、除染・解体による廃棄物の発生、発生した廃棄物の一次保管、 処理、長期保管、廃棄体化処理、処分場への搬出までの一連の工程が対象になる。廃棄物 管理シナリオの評価における検討項目(シナリオの属性)はその目的に応じて様々である が、ここでは、安全性、経済性、実行可能性を評価の対象とする。すなわち、安全性に関 しては「SED 指標」、経済性については「コスト」、実行可能性については「工程遅延リ スク」を対象とする。また、本研究では1F3 号機を例として取り上げ、廃棄物管理シナリ オの構築と評価に係る方法を検討した。

## (2) 廃棄物管理シナリオの基本形

1Fの廃止措置等に向けた中長期ロードマップ(中長期ロードマップ)[33]では 2021 年 を目途に残存燃料及び燃料デブリ(コリウム〔溶融燃料とコンクリート構造物が反応した もの〕を含む)の取り出しが開始される(第3期計画)ことになっていたが、新型コロナ ウイルス感染症の流行等の影響で2年延期となり、2023 年から第3期計画が始められる予 定である。ただし、1F 廃炉の終了時期に変更はなく、事故から 30 年~40 年で廃炉作業が 終了する計画となっている。

本検討では、1F 廃炉作業の範囲を燃料デブリ取出しから建屋構造物の解体までに限定 し、この期間に実施される工程の概略を、①燃料デブリ取り出し及び格納容器内の機器・ 構造物の解体、②建屋の除染、③建屋の解体、④廃棄物の管理、と想定した。通常炉の廃 止措置では、設備機器の解体の後に建屋の除染が行われ、この後、管理区域が解除され、 在来工法により建屋構造物の解体が行われる。しかし、1F の場合、建屋内面は放射性核 種(<sup>137</sup>Cs等)により汚染されており、地下構造物の一部は、汚染水に浸漬していたことに よる汚染が存在する。このような特徴を考慮して、建屋の除染・解体は地下部と地上部に 領域を分けて検討する必要がある。

以上の観点から、1F 廃炉の基本形として、燃料デブリの取り出しの完了後から格納容 器内の機器・構造物の撤去、建屋内表面の除染(地上部・地下部を区分)、建屋の解体 (地上部・地下部を区分)を設定した。また、除染・解体で取り出された放射性廃棄物に 係る管理は、仮容器に収納、暫定的な処理後に容器に収納、分別処理後に保管容器に収納、 廃棄体化処理、処分施設での処分の各段階を考慮することとした(図 3.4-2)。



図 3.4-2 コンクリート構造物の解体と廃棄物の管理シナリオ

## (3) SED 指標

本検討では英国 NDA が主に異なる施設の有害度を比較するために開発した SED 指標の考 え方を参考に、1F コンクリート構造物の解体で発生する放射性廃棄物の管理に係る SED 指 標を算出した[34、35、36、37]。SED 指標は「放射性廃棄物自身が有する人体に対する危 害の可能性」と「放射性廃棄物を保管する(又は処分する)施設の健全性」の双方を加味 して評価する指標であり、放射性廃棄物管理状態に係る安全性を表すと考えることができ る。SED 指標の算定は以下の式による。

$$SED = RHP \times (FD \times WD)^n \qquad ( \vec{x} \ 3.4-1 )$$

ここで、RHP は潜在的な放射線的危険性(Radiological Hazard Potential) であり、以下のように計算する。

$$RHP = \frac{\sum_{Allnuclidesi} A_i \times P_i \times FF}{CF} \qquad ( \vec{x} \ 3.4-2 )$$

 $A_i$ は対象物に存在する核種 iの放射能、 $P_i$ は固有毒性 (Specific Toxic Potential)、FF

(Form Factor:形態係数)は対象物の物理特性に基づく放射性物質の放出の容易度、CF (Control Factor:監視・管理係数)は対象物の管理の程度を表している。なお、P<sub>i</sub>は A<sub>i</sub> を水で希釈して人体に影響を及ぼさない程度に放射能濃度を低減する水量(m<sup>3</sup>/TBq)として定義されている。

他方、RHP 以外の項目は廃棄物を保管する施設の健全性を示す指標であり以下のように 計算する。

$$Facility \ Factor = (FD \times WD)^n \qquad (\exists 3.4-3)$$

ここで、FDは放射性物質の閉じ込め性能、WDは放射性物質の不安定性、nは RHP とその閉じ込め効果との均衡を採るための係数である。

$$SED = RHP \times (FD \times WD)^n \qquad (\exists 3.4-4)$$

本検討ではコンクリート構造物の除染・解体で発生する廃棄物を対象にしているため、 廃棄物の管理方法(保管施設、保管容器、処理状態など)によって SED 指標は異なる。表 3.4-2、表3.4-3に示す固有毒性 P<sub>i</sub>、FF、CF、FD、WDDを用いて熱遮蔽体の解体から保管、 処理、処分までの工程での SED 指標の変化を図 3.4-3 に例として示す。放射性核種の閉じ 込め性能の向上や容器がより頑丈になることにより、SED 指標が減少する。(7)廃棄物管 理シナリオの比較で詳しく述べるが、SED 指標は放射線による潜在的な危険度を表してお り、工程を進め、廃棄物処理が進むと大きく減少することになる。

放射性核種	$P_i(\mathbf{m}^3 \cdot \mathbf{T} \mathbf{B} \mathbf{q}^{-1})$
Co-60	2.04 $\times 10^{6}$
Kr-85	-
Sr-90	1.68 $\times 10^{7}$
Ru-106	4.20 $\times 10^{6}$
Cs-134	1.14 $\times 10^{7}$
Cs-137	7.80 $ imes 10^{6}$
Ce-144	3.12 $\times 10^{6}$
Pu-238	1.38 $\times 10^{8}$
Pu-239	1.50 $\times 10^{8}$
Pu-240	1.50 $\times 10^{8}$
Pu-241	2.88 $\times 10^{6}$
Am-241	$1.20 \times 10^{8}$
Cm-244	7.20 $\times 10^{7}$

表 3.4-2 固有毒性 (Specific Toxic Potential) [34]

廃棄物形態	FF	監視・管理	CF
粉状 塊状(容器収納) 塊状(安定化) 大塊状	$1. 00 \times 10^{-1}  1. 00 \times 10^{-2}  1. 00 \times 10^{-2}  1. 00 \times 10^{-3}$	現状 容器収納 安定化 廃棄体化 処分	$\begin{array}{c} 1.\ 00 \times 10^{1} \\ 1.\ 00 \times 10^{2} \\ 1.\ 00 \times 10^{3} \\ 1.\ 00 \times 10^{4} \\ 1.\ 00 \times 10^{5} \end{array}$

表 3.4-3 SED 指標算出に用いたパラメータ

管理施設	FD	説明
現状	80	閉じ込め性能不足
仮保管施設	50	閉じ込め性能確保/問題発生時に影響
廃棄物管理施設	5	施設損傷の場合、影響あり
廃棄物管理施設	2	施設損傷の場合でも影響なし
処分施設	2	施設損傷の場合でも影響なし

安定性	WUD	説明
現状	80	未処理で漏洩対策は十分でない
容器収納	50	未処理であるが漏洩対策はある
安定化	5	処理済みであるが劣化の可能性
廃棄体化	2	処理済みで劣化の可能性が小さい
処分	2	処理・処分済み



図 3.4-3 処理工程の進展による SED 指標の減少例(熱遮蔽体)

(4) コスト評価

プロジェクト計画を立案するうえでコスト評価は必須の要件である。通常炉の廃止措置 に関しては、運転中に廃止措置に必要な費用を準備しておく必要があることから、原子力 発電所の廃止措置に係るコスト評価の検討結果が多く報告されている[38、39、40、41]。
本検討では、実際のコストを積算するのではなく、異なる廃棄物管理シナリオ間の違い を評価することを目的とし、NRC による大型(1100 MWe 級)BWR の解体に係るコスト評価 [32]及び事故炉の廃止措置に係るコスト評価[40]の報告に基づいてコストの検討を行った。

BWR (1100 MWe 級)通常炉の廃止措置のコスト評価では、即時解体、安全貯蔵-解体、原 位置処分に係るシナリオの検討結果が報告されている[32]。ここでは廃止措置の作業工程 は、図 3.4-4 に示すように基本的に 4 段階に区分されており、第 2 段階で炉内構造物など 比較的放射能レベルが高い機器の解体が、第 4 段階では残りの機器・構造物が解体される。 この報告書においては、除染後の建屋解体は通常の構造物解体となるため廃止措置のコス ト評価の対象にはなっておらず、コスト評価は建屋の除染までとなっている[32]。事故炉 では廃止措置の作業に取りかかる前にクリーンアップ(浄化)の作業が必要となることが、 通常炉と事故炉の廃止措置に係る主要な相違である[40]。

本検討では、燃料デブリ取り出しを含むクリーンアップが終了した後、廃止措置の作業 に移行してからをコスト検討の対象とした。また、本来はコンクリート構造物の除染・解 体及び処理・保管などの取り組みを対象にしているが、参考にしているコスト評価[32、 40]でコンクリート構造物と設備機器の解体のコストが区分されていないため、格納容器 内における解体作業としてまとめて検討することとした。すなわち、除染・解体作業のコ ストを以下のように区分して検討したが、格納容器内の解体作業においては、コンクリー ト構造物と金属機器の解体の両方のコストが含まれている。

- 格納容器内の機器・構造汚物の解体(コンクリート構造物・金属機器)
- <コンクリート構造物の解体>
- 原子炉建屋(生体遮蔽を含む)の解体(地下部・地上部を区分)
- タービン建屋の解体(地下部・地上部を区分)
- 廃棄物建屋の解体(地下部・地上部を区分)
- 建屋の除染(地上部・地下部を区分)

上記作業に加えて、安全貯蔵、廃棄物管理、施設管理に係るコスト項目を加えてコスト 評価に係る分析を実施した。NUREG報告書[32、40]に示されたコストを整理した結果を表 3.4-4に示す。

除染に係る費用は参考文献[32]からは直接人件費\$15.5 m<sup>-2</sup>・cm<sup>-1</sup>、間接人件費\$15.5 m<sup>-2</sup>・ cm<sup>-1</sup>と概算できる。参考文献[40]では事故シナリオ 2 の場合には人工数が 1.2 倍、事故シ ナリオ 3 の場合には 2 倍と想定されているので、原子炉建屋では \$ 47.1 m<sup>-2</sup>・cm<sup>-1</sup>、タービ ン建屋、廃棄物処理建屋では\$28.5 m<sup>-2</sup>・cm<sup>-1</sup>と仮定する。



図 3.4-4 米国 NRC の評価における即時解体 (DECOM) の工程[32]

表 3.4-4 事故炉の解体費用の推定結果(1/2)[40より抜粋] 1)即時解体の場合 (単位:百万ドル(1981年))

	事故シナリオ1	事故シナリオ?	事故シナリオ3
1.44		<b>→</b> 取◆ / / / 2	予政マ / / / / 0
人件資			
間接人件費	10.1	10.6	10.9
解体人件費	13.2	26.5	52.6
小計	23. 3	37.1	<i>63. 5</i>
廃棄物管理			
放射化	1.7	1.7	1.4
汚染	9.8	10.3	10.8
放射性廃棄物	2.2	2.3	2.4
小計	13. 7	14.3	14.6
エネルギー	8.9	9.3	9.7
機器・道具類	2.6	2.6	2.6
その他	2.7	2.7	2.7
特殊業者	0.4	0.4	0.4
保険・許認可	2.0	2.0	2.0
小計	53.6	68.4	95.5
コンティンジェンシー	13.4	17.1	23.9
合 計	67.0	85.5	119.4
(廃棄物管理費を除いた合計)	(53.3)	(71.2)	(104.8)

-事故シナリオ1:被覆管の10%が損傷、燃料の溶融なし

-事故シナリオ2:被覆管の50%が損傷、燃料の溶融5%

-事故シナリオ3:被覆管の100%が損傷、燃料の溶融50%

-事故シナリオ2の費用を積算し、その結果をもとに事故シナリオ1、3を推定。

-解体に係る作業は通常炉の解体と同じ工程とし、事故炉において作業者の被ばくが基準を超えないよう人工数を勘案。事故シナリオ1は解体人件費が事故シナリオ2の場合の半分、事故シナリオ3は事故シナリオ2の場合の2倍。

	事故シナリオ1	事故シナリオ2	事故シナリオ3
安全貯蔵準備			
人件費			
間接人件費	6.2	6.4	6.6
解体人件費	5.8	8.8	13.3
小計	12. 0	<i>15.2</i>	19.9
廃棄物管理	1.7	1.8	1.9
エネルギー	5.2	5.4	5.6
機器・道具類	0.5	0.5	0.5
その他	1.6	1.6	1.6
特殊業者	0.2	0.2	0.2
保険・許認可	1.2	1.2	1.2
小計	22.4	25.9	30.9
コンティンジェンシー(25%)	5.6	6.4	7.7
合 計	28.0	32.3	38.6
(廃棄物管理費を除いた合計)	(26.3)	(30.5)	(36.7)
維持管理費 (30年/100年)	3.0/10.0	3.0/10.0	3.0/10.0
解体費(30年/100年)	54.3/40.2	69.1/51.2	96.7/71.6
(廃棄物管理費を除いた費用)	43.2/32.0	57.8/42.8	84.9/62.9
合計(30年/100年)	85.3/78.2	104.4/93.5	138.1/120.0
(廃棄物管理費を除いた合計)	72.5/68.3	91.3/83.3	124. 4/109. 4

表 3.4-4 事故炉の解体費用の推定結果(2/2) [40 より抜粋] 2)安全貯蔵の場合 (単位:百万ドル(1981年))

事故シナリオ2を積算し、その結果をもとに事故シナリオ1、3を推定。 安全貯蔵準備に係る作業は通常炉の安全貯蔵準備と同じ工程とし、事故炉での作業者の 被ばくが基準を超えないよう人工数を勘案。事故シナリオ1は安全貯蔵準備人件費が事 故シナリオ2の場合の2/3、事故シナリオ3は事故シナリオ2の場合の1.5倍。 安全貯蔵期間中の維持管理費は通常炉と同様とし、0.1(百万ドル/年)

安全貯蔵後の解体費は、通常炉の場合に即時解体:30年安全貯蔵:100年安全貯蔵=100: 81:60であり、その比を用いて即時解体の積算結果より推定。

通常炉の解体費用は、即時解体 43.6(百万ドル)、30年安全貯蔵 35.5(百万ドル)、 100年安全貯蔵 26.3(百万ドル)。廃棄物処分費用を除くとそれぞれ、34.9、28.0、 23.9(百万ドル)(1978年)

(5) 工程遅延リスク

廃止措置はプロジェクトであり、プロジェクトは期間限定の取り組みであるため、プロ ジェクトの開始と終了の時期は予め設定されている。本検討で設定している廃棄物管理シ ナリオでは「エンドステート」と「廃炉終了までの期間」を主要なパラメータとしており、 期間は重要な検討項目である。また、放射性廃棄物は時間の経過とともに放射能レベルが 減衰するため、時間の経過に応じて除染・解体の作業は容易になる可能性があり、廃棄物 の発生量も低減する。

長期にわたる 1F 廃炉の取り組みでは、計画立案時にはなかった事象が発生することが あり、これにより工期を延長せざるを得ない事態が出現する可能性が考えられる。そこで、 廃棄物管理シナリオにエンドステートに至る期間を設定し、予め設定した廃棄物管理シナ リオの工程に対して、予定通りにエンドステートを達成できるか否か、工程遅延リスクを プロジェクト評価の主要な属性として考えることとした。ここでは工程遅延に係るリスク を洗い出したうえで、そのリスクの大小を半定量的に数値化することにより廃棄物管理シ ナリオが有する属性の値とした。 リスクは考えられる事象の生起確率とその事象が生起した場合の影響度の積として求めることができる。

 $Risk = \Sigma \quad Q_i \times C_i \qquad ( \vec{\mathfrak{X}} \ 3.4-5 )$ 

ここで、*Q*<sub>i</sub>は事象 *i* の生起確率、*C*<sub>i</sub>は事象が生起したときの影響度である。本検討では、 生起確率と影響度を定性的に 5 段階で設定することとした。すなわち、生起確率は、可能 性が大(5 点)、可能性が中(3 点)、可能性が小(1 点)とし、また、影響度は、影響が 大(3 年以上の遅延)、影響が中(1 年~3 年)、影響が小(1 年未満)とした。リスク項 目の抽出は以下に係る分野からとした。

- 規制条件
- 技術課題
- 社会情勢の変化
- 経済的な観点

主要なリスク項目を表 3.4-5 に示す。本表に示すリスク項目に対して生起確率と影響度 を設定して、全てのリスク項目に係る計算値を合計することにより、各シナリオ劣を比較 する。

	表 3.4-5 工程遅延に係るリスク項目(例)
+8412/	・処分容器の条件が決まらない
<b></b>	・保管容器の設計要件よりが厳しくなる
	<ul> <li>・保管容器に欠陥が見つかる</li> </ul>
+士 /北部田 日百	・施設に安全上の問題が発生する
7又110词无因	・燃料デブリ取り出しが予定通りできない
	・建屋に予期しない汚染が見つかる
计合性表礼	・ 処分施設の立地場所が見つからない
私云情勢	・処分施設の建設に周辺住民が反対する
42121	・処分施設の建設に係る予算が十分でないことが判明する
<del></del> 絟 俏 性	・廃棄物保管施設の維持・補修に新たな資金が必要になる

(6) 廃棄物量の評価

廃棄物管理において、廃棄物の放射能レベルとそれに対応した物量(重量、容積)の評価は重要な課題である。本検討においては1F3号機を例とし、コンクリート廃棄物の物量を評価対象とした。コンクリート構造物の汚染状況は領域によって異なることが予想される。すなわち、原子炉建屋の格納容器内は破損した燃料棒から漏洩した揮発性の放射性核種(<sup>137</sup>Csなど)によって高度に汚染していることが予想される。さらに、地上部は格納容器から漏洩した揮発性の放射性核種が気体状態で移行し壁面が汚染した可能性がある。また、地下部は汚染水への浸漬により汚染水に含まれる放射性核種が壁面に付着または浸透して汚染している可能性がある。このような観点から、領域を原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物建屋に区分し、さらに、原子炉建屋については格納容器、地上部、地下部を、タービン建屋については地上部と地下部を区分して、3.4.2 (3)の結果をもとに廃棄物管理シナリオごとの3号機の物量を評価した。

(7) 廃棄物管理シナリオの比較

廃棄物管理シナリオを構築するうえで構成要素、基本的な工法及び作業シナリオは 3.4.2 で設定した通りである。これらを組み合わせて設定した廃棄物管理シナリオの評価 及び最適化は、意思決定に関わる課題であり、様々な手法が考案されている。ここでは、 以下に示す単純加算法 (simple additive weighting method) を用いることとした。

3-70

 $(S_i) = \sum W_j * V_j(x_{i,j})$ (式 3. 4-6)  $i = 1, \cdots m$ 

ここで、 $V(S_i)$ は選択肢  $S_i$  (廃棄物管理シナリオ)の評価値、 $W_j$ はウェイト(属性に関する重み付け)、 $V_j(x_{ij})$ は属性  $X_j$ の評価値である。廃棄物管理シナリオの優先度に係る評価では、安全性、経済性、工程遅延の可能性などを属性として評価するが、これらを規格化したうえで重み付けをして、総合点を算出する。

3.4.4 令和4年度実施結果[シナリオの構築と評価]

3.4.2 における廃棄物管理シナリオの構成要素(最終状態、解体範囲、解体物の貯蔵・保 管方法等)の複数の選択肢を組み合わせ、解体工法・解体工程の調査結果に基づいて全体工 程及び時間軸を検討した。また、3.4.2 に示した評価手法を道いて、安全性、経済性、実行 可能性に係る評価、すなわち、SED 指標、コスト、工程遅延リスクを数値化し、それらの結 果を比較した。本検討で用いる単純加算法を含め、意思決定の手法は、どの評価項目を重視 するのか、重み付けの方法が結果に影響を与える。このため、この手法を意思決定に用いる 場合には、評価項目の重要度に関して、意思決定者間での合意形成が必要となり、一つの評 価結果だけを用いて設定した廃棄物管理シナリオの優位性を議論することは適当でない。本 検討では、評価結果を用いて、廃棄物管理シナリオの属性を分析して、その特徴を明らかに するとともに、各シナリオが有する属性を比較することで、1F 廃炉計画を策定するための意 思決定に役立てることを目的とする。

(1) 令和4年度実施結果 [廃棄物管理シナリオの設定]

通常炉の廃止措置の選択肢(シナリオ)は IAEA などにより「即時解体」と「遅延解体 (安全貯蔵)」に分類される[40]。本検討では、エンドステートとしてグリーンフィール ド及びブラウンフィールドを設定しており、組み合わせとして、「即時解体-グリーンフ ィールド(S-1)」、「遅延解体(安全貯蔵)-グリーンフィールド(S-2)」、「即時解体-ブ ラウンフィールド(S-3)」、「遅延解体(安全貯蔵)-ブラウンフィールド(S-4)」のシナ リオを想定した。図3.4-5にこれらのシナリオの時間経過を示す。1F 廃炉及び廃棄物管理 の全体工程はこれらを基本にして設定した。より具体的な作業工程は、施設特性を詳細に 分析した上、技術的観点、経済的観点、社会情勢など様々な要素を勘案して検討・決定さ れるものであるが、ここでは図3.4-5 中の〇で囲んだ数字で示すように、

- 格納容器内のコンクリート構造物の撤去が始まる時点(A)は事故発生から25年後
- 格納容器内のコンクリート構造物の撤去作業(A-B):5年
- 建屋地上部の除染(B-C):3 年
- 建屋地下部の除染(C-D):2年
- 建屋の解体(D-E):5年

と想定した。



図 3.4-5 廃棄物管理シナリオ検討のために想定した工程 図中〇内の数値は年数

① 即時解体-グリーンフィールド (S-1)

「燃料デブリの取出し」及び「炉心部機器や系統機器などの解体撤去」が終了した後、 建屋の表面除染を実施して建屋構造物を解体する。ただし、格納容器内の熱遮蔽、格納 容器外側の生体遮蔽に関しては構造物表面の除染は実施しない。シナリオ終了までの時 間を 30 年と仮定する。

② 安全貯蔵-解体撤去-グリーンフィールド(S-2)

「燃料デブリの取出し」が終了した後、施設を安全貯蔵の状態で管理する。安全貯蔵 期間は、30年と設定した。その後、「炉心部機器や系統機器などの解体撤去」を実施 する。これらの作業が終了した後に、建屋表面の除染を実施して建屋構造物を解体する。 ただし、格納容器内の熱遮蔽、格納容器外側の生体遮蔽に関しては構造物表面の除染は 実施しない。シナリオ終了までの時間を60年と仮定する。

## ③ 即時解体-ブラウンフィールド(地下部残存) (S-3)

「燃料デブリの取出し」及び「炉心部機器や系統機器などの解体撤去」が終了した後、 建屋地上部の表面除染を実施して地上部の建屋構造物を解体する。ただし、格納容器内 の熱遮蔽、格納容器外側の生体遮蔽に関しては構造物表面の除染は実施しない。地下部 の建屋構造物はそのまま残して管理を継続する。S-1に10年間の地下構造物管理期間を 加えてシナリオ終了までの期間を40年と仮定する。

## ④ 安全貯蔵-解体撤去-ブラウンフィールド(地下部残存) (S-4)

「燃料デブリの取出し」が終了した後、施設を安全貯蔵の状態で管理する。安全貯蔵 期間は、30年と設定した。その後、「炉心部機器や系統機器などの解体撤去」を実施 する。これらの作業が終了した後に、建屋地上部の表面の除染を実施して建屋構造物を 解体する。ただし、格納容器内の熱遮蔽、格納容器外側の生体遮蔽に関しては構造物表 面の除染は実施しない。地下部の建屋構造物はそのまま残して管理を継続する。S-2 に 地下構造物管理期間 10年を加えて、シナリオ終了まで 70年と仮定する。

(2) 廃棄物管理シナリオの評価

廃棄物管理シナリオの評価の基本的な考え方を図 3.4-6 に示す。廃棄物管理シナリオの 評価には、シナリオが持つ属性として、安全性(SED)、廃棄物量、廃棄物の管理コスト、 工程遅延の可能性(工程遅延リスク)を考慮した。

3-72



図 3.4-6 廃棄物管理シナリオ評価の基本的な考え方

物量の評価

廃棄物管理シナリオに応じて廃棄物発生量及び発生するタイミングが異なる。1F 廃 炉の作業工程は領域を基本に実施されると想定して、領域ごとの物量を工程(時間軸) に割り振り、廃棄物量を算出した。A-B は格納容器の解体撤去、B-C は地上部の除染、 C-D は地下部の除染、D-E は放射性廃棄物となる部分を取り除いた後の建屋構造物の解 体撤去である。S-2、S-4 では安全貯蔵後の除染、解体となるためB-C 及び C-D で発生す る放射性廃棄物が S-1、S-3 と比較して 1 割減少するものと仮定した。また、S-3、S-4 シナリオでは格納容器を解体撤去した後、地下部分は原位置で保管管理するものとした。

表 3.4-6 に、図 3.3-10 に示した<sup>137</sup>Cs 濃度に基づいて求めた L2/L3、L3/CL の境界位 置及び設定した除染深さを示す。除染深さは、地上部については溶脱がなく、また、コ ンクリート中の空隙が水分で飽和している状態ではないことから、溶脱なし、10 年後 の値を全てのシナリオに使用した。地下部については汚染水と接している部分から溶脱 が進行するが、滞留水と接していない構造物内部では溶脱していないコンクリートが存 在すると考えられることから、溶脱ありとなしの平均値を除染深さとした。図 3.3-10 の算出条件が保守的となっていることから、この結果の廃棄物量も保守的となっている と考えられる。表 3.4-7 は 4 つの廃棄物管理シナリオに対して領域を区分し、表 3.4-6 の仮定を用いて廃棄物発生量を整理した結果である。

表 3.4-6	除染深さ	(図 3.3-10	をもとに設	定)
· · · · · ·	1 1 1 2 1 S 1 S 1 S 1 S S			· -

( ~	m)	
(C	III)	

建屋外周壁	10 年後(S-1、S-3)		40 年後(S-2、S-4)	
	L2/L3 境界	L3/CL 境界	L2/L3 境界	L3/CL 境界
溶脱なし	3	9	6	15
溶脱あり	15	26	31	49
除染深さ(地上)	3	9	3	9
(地下)	9	18	19	32

建屋内部の壁	10 年後(S-1、S-3)		建屋内部の壁 10 年後(S−1、S−3) 40 年後(S−2		S-2, S-4)
	L2/L3 境界	L3/CL 境界	L2/L3 境界	L3/CL 境界	
溶脱なし	4	9	6	15	
溶脱あり	15	25	30	50	
除染深さ(地上)	3	9	3	9	
(地下)	10	17	18	33	

表 3.4-7 廃棄物管理シナリオごとの廃棄物発生量

			(t	、括弧内は L2/L3 の	)発生量)
રે	/ナリオ/領域			工程	
		А-В	В-С	C-D	D-E
					(非放射性)
S-1	格納容器	4,029	0	0	0
	原子炉建屋(生	0	27, 201	12, 537	52, 373
	体遮蔽を含む)		(6, 420/20, 781)	(3, 351/9, 186)	—
	タービン建屋	0	9,361	11,019	96,460
			(3, 120/6, 241)	(6,074/4,946)	—
	廃棄物処理建屋	0	6,114	0	8,376
			(2, 038/4, 076)	-	-
	計	4,029	42,676	23, 556	157, 209
			(11, 578/31, 098)	(9, 425/14, 131)	-
S-2	格納容器	4,029	0	0	0
	原子炉建屋(生	0	24, 481	13, 170	54,460
	体遮蔽を含む)		(5,778/18,703)	(4, 204/8, 966)	-
	タービン建屋	0	8,425	18, 571	89,844
			(2, 808/5, 617)	(10, 487/8, 084)	-
	廃棄物処理建屋	0	5, 503	0	8,987
			(1, 834/3, 669)	_	_
	計	4,029	38, 409	31, 741	153, 291
			(10, 420/27, 989)	(14, 691/17, 050)	-
S-3	格納容器	4,029	0	0	0
	原子炉建屋(生	0	27, 201	0	32, 485
	体遮蔽を含む)		(6, 420/20, 781)	-	—
	タービン建屋	0	9,361	0	74, 847
			(3, 120/6, 241)	-	—
	廃棄物処理建屋	0	6,114	0	8,376
			(2, 038/4, 076)	_	_
	計	4,029	42,676	0	115, 708
			(11, 578/31, 098)	-	-
S-4	格納容器	4,029	0	0	0
	原子炉建屋(生	0	24, 481	0	32,205
	体遮蔽を含む)		(5, 778/18, 703)	^	_
	タービン建屋	0	8,425	0	75, 783
			(2,808/5,617)	_	_
	廃棄物処理建屋	0	5,503	0	8,987
			(1, 834/3, 669)	_	_
	計	4,029	38, 409	0	119, 975
			(10, 420/27, 989)	-	-

四捨五入のため、合計が一致しない場合がある。

生体遮蔽は20%がL2、80%がL3と仮定。

人工岩は含んでいない。

安全貯蔵をするシナリオ(S-2、S-4)では減衰により放射性廃棄物となる物量が1割減少すると仮定。

### 2 安全性(SED 指標)の評価

SED 指標の算出では、1F 事故時に核燃料から放出された放射性核種の量(ソース)を 設定することが前提条件となる。本検討においては、西原ら[42]の推計と NUREG/CR-2601[40]に示されている放射性核種の核燃料からの放出割合を適用した。表 3.4-8 に 3 号機における主要核種の放出量の算定結果を示す。核燃料に含まれる全ての放射性核種 を対象としたが、半減期の短いものは時間経過とともに減衰すること、また、人体に及 ぼす影響度(式 3.4-2 の  $P_i$ 値)が低いものを除くと、主要な核種は <sup>137</sup>Cs と <sup>90</sup>Sr であっ た。

これらの核種は、核燃料から原子炉圧力容器、格納容器、原子炉建屋、タービン建屋、 廃棄物建屋、環境などに移行したことになる。本検討では、主要な核種である<sup>137</sup>Cs を 対象とし、格納容器、原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物建屋への移行率はそれぞれ 90%、7%、2%、1%と想定した(図3.4-7)。なお、<sup>137</sup>Csの環境への放出量は15PBq[43]と 見積もられており、3号炉のみからの放出量よりも1桁小さい。このため、本検討では、 環境中に放出された量については十分に小さいものとみなし、全体量から差し引くこと はしなかった。

上述した条件に基づいて算出した SED 指標の経時変化を廃棄物量の結果と合わせて図 3.4-8 に示す。即時解体(S-1)と安全貯蔵-解体撤去(S-2)の相違はコンクリート構 造物の解体及び廃棄物発生〜処理の時期である。S-2 の場合、30 年の安全貯蔵を経て <sup>137</sup>Cs の場合には約半分に放射能レベルは減少するが、SED 指標の減少は顕著ではない。 これは、SED 指標の算出の際に廃棄物処理、安定化による FD(放射性物質の閉じ込め性 能)の向上及び MD(放射性物質の不安定性)の減少を考慮しており、これに比べると 安全貯蔵期間での放射性核種の減衰の効果が顕著でないことによる。このため安全貯蔵 を選択するシナリオ(S-2、S-4)は、30年間は比較的高い SED 指標が維持されることに なる。

S-1 と S-3 を比較することによりエンドステートの相違を分析することができる。事 故からの経過年数 30 年以降における S-3 の SED 指標は、残存している地下構造物中の 放射性核種の減衰とコンクリート構造物の除染や解体で発生する放射性廃棄物の処理に よる減少を合わせたものとなっている。除染や解体で発生する放射性廃棄物は、どのシ ナリオでも発生後 10 年で処理することを想定しており、S-3 においては SED が 30 年か ら 40 年にかけて徐々に減少している。

S-1 から S-4 までの SED 指標を比較すると、除染、解体、廃棄物処理の工程を進める ことにより、どのシナリオにおいても最終的に到達する SED 指標の値には大きな差がな いことがわかる。このことから廃棄物管理を適切に実施することができれば、どのシナ リオを選択したとしても同程度の安全性を確保できることを示している。シナリオ間の 差異は、安全貯蔵を選択する場合に SED 指標の高い状態が安全貯蔵期間中、維持される ことに表れている。

図 3.4-8 には、SED 指標と合わせて、放射性廃棄物発生量の経時変化と放射性でない 解体廃棄物の発生総量を示してある。地下構造物を残存させるシナリオ(S-3、S-4)の 場合、放射性廃棄物、放射性でない解体廃棄物の発生量は両方とも、全量撤去するシナ リオ(S-1、S-2)の場合の約7割程度になることがわかる。

Radionuclide	Source Activity <sup>a)</sup> (Bq)	Cladding Failure Release Fraction <sup>b)</sup>	Fuel Melt Release Fraction <sup>b)</sup>	Activity Released (Bq)
Co-60	3.28×10 <sup>12</sup>		1.5×10 <sup>-2</sup>	4.92×10 <sup>10</sup>
Kr-85	2.95×10 <sup>16</sup>	3.0×10 <sup>-2</sup>	$4.4 \times 10^{-1}$	1.37×10 <sup>16</sup>
Sr-90	$1.81 \times 10^{17}$	1.0×10 <sup>-6</sup>	5.0×10 <sup>-2</sup>	9.05×10 <sup>15</sup>
Ru-106	$8.48 \times 10^{17}$		1.5×10 <sup>-2</sup>	$1.27 \times 10^{16}$
Cs-134	2.52×10 <sup>17</sup>	5.0×10 <sup>-2</sup>	3.8×10 <sup>-1</sup>	$1.08 \times 10^{17}$
Cs-137	$2.41 \times 10^{17}$	5.0×10 <sup>-2</sup>	3.8×10 <sup>-1</sup>	$1.04 \times 10^{17}$
Ce-144	2.27×10 <sup>18</sup>		1.5×10 <sup>-3</sup>	3.41×10 <sup>15</sup>
Pu-238	$5.53 \times 10^{15}$		1.5×10⁻³	8.3×10 <sup>12</sup>
Pu-239	$1.04 \times 10^{15}$		1.5×10⁻³	1.56×10 <sup>12</sup>
Pu-240	1.36×10 <sup>15</sup>		1.5×10⁻³	2.04×10 <sup>12</sup>
Pu-241	$3.15 \times 10^{17}$		1.5×10 <sup>-3</sup>	4.73×10 <sup>14</sup>
Am-241	$5.58 \times 10^{14}$		1.5×10 <sup>-3</sup>	$8.37 \times 10^{11}$
Cm-242	$1.04 \times 10^{17}$		1.5×10 <sup>-3</sup>	$1.56 \times 10^{14}$
Cm-244	2.71×10 <sup>15</sup>		1.5×10 <sup>-3</sup>	4.07×10 <sup>12</sup>

表 3.4-8 3 号機における主要な核種の放出量算定結果

[40、42]をもとに算定



図 3.4-7 仮定した核種の移行割合



③ コスト評価

1F 中長期ロードマップ[25]ではコストに関する検討はなされていないが、米国 NRC の 報告書[34]では、事故を深刻度の異なる3ケースとしたシナリオについて、通常炉の廃 止措置作業の積算に基づき、追加で必要となる作業や、通常炉と同様の作業が行われる 場合には作業者の被ばく線量等を考慮して、事故を経験した原子力発電所の廃止措置に おいて必要となるコストの検討がなされている。本検討では、この報告書で最も深刻な シナリオである事故シナリオ3(被覆管の100%が損傷し燃料の50%が溶融)を参考にし て、コストの検討を行った。廃棄物管理シナリオの属性として以下の項目のコストを分 析した。

- コンクリート構造物の解体
- 廃棄物管理
- 施設管理
- 建屋表面の除染
- 安全貯蔵の施設管理

上述したシナリオ(S-1、S-2、S-3、S-4)に要するコストを表 3.4-9に示す。このコ ストには、廃棄物の保管や処分のコストは含まれていない。これらは 1981 年価格であ るが、本検討では、4 つの廃棄物管理シナリオの相対的比較を目的としているため、 1981 年価値のまま適用した。解体及び安全貯蔵に係るコストは、S-2>S-4>S-1>S-3 となった。安全貯蔵をするシナリオは安全貯蔵準備、貯蔵中の維持管理費がかかるため、 即時解体の場合(S-1、S-3)の方がコストが低くなる。また、地下構造物を残存させる 場合にはその維持管理費分、コストがかかることとなる。

表 3.4-9 シナリオの比較(2)廃炉作業のコスト評価例

百万US ドル(1981)

領域区分	コスト項目	S-1	S-2	S-3	S-4
枚妯索聖	(機器・構造物の解体(全体))	(63.5)	(63.5)	(63.5)	(63.5)
俗种谷谷	コンクリート構造物の解体	6.4*	6.4*	6.4*	6.4*
<b>広</b> 記 今 休	安全貯蔵準備	-	30.7	_	30.7
他政主体	安全貯蔵	_	3.0	-	3.0
構造物地上部	建屋構造物の除染	38.0	34.2	38.0	34.2
構造物地下部	建屋構造物の除染	11.0	9.9	-	-
廃棄物管理施設	廃棄物管理	1.9	1.9	1.9	1.9
構造物地下部	施設管理	_	_	1.5	1.5
	合計	57.3	86.1	47.8	77.7

\*格納容器の機器解体・構造物全体の解体コストのうち 10%がコンクリート構造物の解体コストと仮定した。

一方、シナリオに対するコスト比較に十分な定量的情報が得られない状況においては、 シナリオの属性に関する定性的な情報を用いる方法もある。ここでは、階層分析法 (Analytic Hierarchy Process、以下、「AHP 法」と略す。)を用いることを検討した。 AHP 法は、判断の過程で客観性に欠ける点があるが、意思決定に係る評価手法として用 いられている。意思決定(シナリオの比較)に係る要素を、問題、評価項目、代替案に 分解し、それらを階層構造に表し、それぞれのレベルごとに評価項目の一対比較により 相対的な重要度(点数)を算出し、上位レベルから下位レベルまでの重要度(点数)を 統合することで、シナリオ選択(問題)の優先度(相対比)を算出する。即ち、階層レ ベルの一対比較から得られた重要度(点数)を用いて行列を作成し、最大固有値( $\lambda_{MAX}$ ) とそれに対する固有ベクトル(w)を求める方法である。n 個の要素  $I_{l}, \cdots, I_{n}$ における重 要度が  $W_{l}, \cdots, W_{n}$ の場合、要素  $I_{i} \ge I_{j}$ の重要度の一対比較値  $\alpha_{ij}$  ( $i, j = \{1, 2 \cdots n\}$ ) は式 3. 4-7 で表される。

$$\alpha_{ij} = \frac{W_i}{W_j} \tag{$\pi 3.4-7$}$$

また、全ての階層レベルにおける n 個の要素の一対比較を示した行列 A は式 3.4-8 で 表される。なお、同じ要素を比較する際には、対角要素が全て1の正方行列となる。

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{W_1}{W_2} & \cdots & \frac{W_1}{W_n} \\ \frac{W_2}{W_1} & 1 & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{W_n}{W_1} & \cdots & \cdots & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} W_1 \\ W_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ W_n \end{pmatrix} = n \begin{pmatrix} W_1 \\ W_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ W_n \end{pmatrix}$$

一対比較行列Aに重要度ベクトル(w)を乗じると、

$$A \cdot w = \lambda_{MAX} \cdot w$$

(式 3.4-9)

(式 3.4-8)

が成り立つことから、wはAに対する固有ベクトルであり、nは最大固有値(AMAX)となる。階層ごとに求めた評価項目の相対重要度に、評価項目ごとの代替案の優先度を乗じることで、問題に対する代替案の優先度を算出することができる。

ここでは、コスト評価に AHP 法を当てはめ(図 3.4-9)、評価項目(シナリオの属性) は「解体作業」、「廃棄物管理」、「施設管理」とし、シナリオの優劣を5段階で定性 的に比較した。比較の判断は、同等のコスト(1)、少し高コスト(3)、かなり高コスト (5)、非常に高コスト(7)、圧倒的に高コスト(9)とした。

点数設定の考え方は以下の通りとする。

・解体作業:早期かつ短期間の支出ほど点数は高くなる(コスト高)

・廃棄物管理:放射能レベルが高く、発生量が多いほど点数は高くなる(コスト高)

・施設管理:解体作業が終了するまでの期間が長いほど点数は高くなる(コスト高) AHPによるコスト評価例を表3.4-10に示す。この評価では、設定したシナリオに対し て S-3>S-4>S-2>S-1の順番で経済的に好ましくないことになり、表3.4-9の結果とは異 なる。これは主に全貯蔵及び解体作業に必要なコストの考え方(設定)が異なるためで あるが、過去の事例の分析などより定量的な情報を収集してコストの設定が必要になる。



図 3.4-9 AHP によるコスト評価の階層

**3-79** - 115 -

表 3.4-10 AHP によるコスト評価例

(1)属性の比較

	解体作業	廃棄物管理	施設管理
解体作業	1	3.00	5.00
廃棄物管理	0.33	1	3.00
施設管理	0.20	0.67	1

(2) 解体作業コストの点数

	S1	S2	S3	S4
S1	1	0.14	0.33	0.20
S2	7.00	1	0.33	3.00
S3	3.00	3.00	1	5.00
S4	5.00	0.33	0.20	1

(3) 廃棄物管理(処理・保管)の点数

	S1	S2	S3	S4
S1	1	0.33	0.20	0.14
S2	3.00	1	0.33	0.33
S3	5.00	3.00	1	0.33
S4	7.00	3.00	3.00	1

(4) 施設管理の点数

( )						
	S1	S2	S3	S4		
S1	1	0.20	0.33	0.33		
S2	5.00	1	0.33	0.20		
S3	3.00	3.00	1	0.33		
S4	3.00	5.00	3.00	1		

# (5) 総合評価

属性(重み)	解体作業	廃棄物管理	施設管理	縱入評価
シナリオ	0.62	0.25	0.13	心口口三里
S-1	0.04	0.01	0.01	0.06
S-2	0.19	0.04	0.02	0.25
S-3	0.35	0.07	0.07	0.49
S-4	0.09	0.13	0.07	0.29

④ 工程遅延リスクの評価

表 3.4-5 に示した工程遅延リスクのリスク項目に対して、廃棄物管理シナリオごとの 値を設定した。評価では、作業期間が長くなる場合に起きやすいリスク、特定作業にお いて発生するリスクを考慮した。工程の期間を考えた場合、S-1 は S-2 より早期に終了、 建屋地下部が残存する S-3 は S-2 よりも早期に廃棄物処理を終了、安全貯蔵と地下部残 存の特徴を有する S-4 は 4 つのシナリオの中で最も遅くにエンドステートが達成される。 このような条件を考慮したうえで、特定したリスク事象の生起確率は、定性的に 5 段階 (大、中、小、それらの中間)で設定した。また、廃棄物管理シナリオに示す事象が生 起した場合の影響度は工程が遅延する年数で表すこととした。工程遅延リスク事象に対 する生起確率と影響度の設定例を表 3.4-11 に示す。

	廃棄物管理シナリオ	S-			S-2			S-3		01	S-4	
	生起確率 Q/影響度 C/リスク R			-	Ċ	۵	0	c	Þ	0	ر	D
リスク項目		ק	II .	ø	S	N	ø	2	V	ø	S	IV
相制久产	・処分容器の条件が決まらない	3 3	6		33	3	3	ŝ	6		с С	3
风则米什	・保管容器の設計要件がより厳しくなる	3 1	လ	3	Г	S	1	П	П	S	П	3
	・保管容器に欠陥が見つかる	1 3	3	33	1	3	3	1	S	വ	1	2
十十 人名意田 目面	・施設に安全上の問題が発生する	1 5	ß	33	ß	15	ഹ	ß	25	ഹ	ß	25
仅彻硃飓	・燃料デブリ取り出しが予定通りできない	1 5	ß	1	ß	ß	1	ß	ß	П	ß	വ
	・建屋に予測しない汚染が見つかる	1	П	S	Г	S	co	1	က	ß	П	വ
社へ唐勳	・処分施設の立地場所が見つからない	5	25	3	2	15	വ	ß	25	П	2	2
化女情労	・処分施設の建設に周辺住民が反対する	5 5	25	3	5	15	1	5	5	1	5	5
<u>47</u> xz.ht-	・処分施設の建設にかかる予算が十分でないことが判明する	5 3	15	3	3	6	2	3	15	1	1	1
性伊耳	・廃棄物保管施設の維持・補修に新たな資金が必要になる	1 3	က	3	က	6	2	က	15	D	2	25

3.4-11 シナリオの比較(3)工程遅延リスクの評価例

表

**3-81** - 117 -

### ⑤ 廃棄物管理シナリオの比較

設定した4つの廃棄物管理シナリオの属性を総合的に比較することにより、それぞれ のシナリオの利点や課題を判断することができる。前述したように、シナリオ評価は、 安全性、経済性、実行可能性の3つの観点から行った。SED指標は、その経時変化にシ ナリオごとの特徴が表れており(図3.4-8)、安全性についてはSED指標を時間積分し た値を用いた。経済性については、廃炉作業(表 3.4-9)と廃棄物処分に必要なコスト について評価した。廃棄物処分については、処分概念などが確立されておらず、具体的 なコストとして評価することが難しいため廃棄物区分ごとの処分単価を用いるのではな く、それぞれのシナリオで発生する放射性廃棄物総量(表 3.4-7)の比を用いることと した。実行可能性については工程遅延リスクの値を用いた。それぞれの属性に対して最 大値を1.0になるようにして規格化(無次元化)したうえで、式 3.4-6により重みを均 等として廃棄物管理シナリオごとの総合点を算出した。

結果の例を表 3.4-12 に示す。この評価では、点数が低い程、優先度が高くなる。総 合点は S-3 が 0.66、S-2 が 0.90、S-3 が 0.65、S-4 が 0.84 となった。S-1 と S-3 の相違 は小さいが、廃棄物管理シナリオは S-3、S-1、S-4、S-2 の順に優先度が高い結果とな った。

安全性(SED 指標の時間積分)については、安全貯蔵を含まず短期で作業を終了する シナリオ(S-1、S-3)で高い評価となる。経済性(廃炉作業コストと廃棄物量)につい ては、即時解体をするシナリオ(S-1、S-3)が、安全貯蔵をするシナリオ(S-2、S-4) よりも評価が高くなっている。これは、安全貯蔵準備、安全貯蔵期間中の維持管理にコ ストがかかるのに対し、30年の安全貯蔵期間では半減期約30年の<sup>137</sup>Csが減衰すること による廃棄物量の減少があまり見込めないことによる。また、経済性については、同じ 時間軸のシナリオ(S-1とS-3、S-2とS-4)を比較すると、地下構造物を残すシナリオ (S-3、S-4)の方が若干、優位となっている。これは地下構造物を残すことで廃棄物処 分コストを低減する効果が大きいためである。作業の実行可能性(工程遅延リスク)に ついては、安全貯蔵期間をおくシナリオ(S-2、S-4)が優位性を示している。

それぞれのシナリオの特徴は、以下の通りである。

1) S-1

早期に作業を終了するため、危険性を考慮すべき期間が短いことから安全性におい て優位であり、経済性についても優位性が示されている。作業の実行可能性について は評価が低い。これは比較的短い期間で廃炉作業や廃棄物に係る技術条件を決める必 要があるので、条件に合わない要素が出現する可能性や処分施設の確保が困難である 可能性があるためである。

2) S-2

最も優位性が低いシナリオとして評価された。安全貯蔵準備や安全貯蔵期間中の維持管理のコストがかかること、安全貯蔵期間中の放射性核種の減衰による廃棄物量の 減少が見込めないこと、エンドステートに到達するまでの時間が長く SED 指標が高い 状態が継続することなどによる。

3) S-3

総合評価では最も優位性の高いシナリオと評価された。S-1 と同様に、早期に作業 を終了するため、危険性を考慮すべき期間が短いことから安全性において優位である。 経済性については、地下構造物を廃棄物としないため、廃炉作業、廃棄物処分の両方 の観点について S-1 よりも評価が高い。作業の実行可能性においては、S-1 と同様に 評価が低い。

4) S-4

S-2 と同様に、廃炉の期間が70年と長いため、長期にわたりSED指標が高い値を示 すため、安全性に関して低い評価となり、作業の実行可能性において高い評価となっ た。経済性については、安全貯蔵に関するコストのために評価が低くなっているが、 地下構造物の解体がないこと、放射性廃棄物量が少ないことにより、S-2 よりも評価 が高い。

以上は廃棄物管理シナリオを比較する一例であり、総合評価の結果はどの評価項目を 重視するかによって変わってくる。例えば、作業の実行可能性を重視し、これらの重み を大きくする場合には、S-2、S-4の評価が高くなる。また、安全性をより重視する場 合には、S-1とS-3の優位性が逆転してS-1の方が評価が高くなる可能性がある。より 詳細な検討には、IFの状況に即したコストの詳細な評価、放射能レベルを含めた詳細 な廃棄物量の考慮、今回含まれていない評価項目の追加など、さらなるデータの拡充が 必要になる。

燃料デブリ取り出しで発生する廃棄物も含めた廃棄物管理の方法、処分場所、処理処 分に係るコストなど、1F 廃炉で発生する廃棄物の取り扱いは、廃炉シナリオを策定す るうえで最も重要な課題である。本検討では、物量が非常に多いコンクリート廃棄物を 対象とし、3 号機をとりあげてレベル区分ごとの廃棄物量を試算したが、廃棄物管理の 計画策定においては、3 号機以外のプラントや施設内のその他の建屋の解体で発生する レベル区分別の廃棄物量、クリアランス物量、クリーンアップ作業で発生した瓦礫など の量や処分概念に基づく処理処分コスト、クリアランス検認に係るコストなどの総合的 な分析に基づいた廃棄物管理シナリオの検討、最適化が必要となる。本検討で構築した このような評価手法は、1F 廃炉の工程及び廃棄物管理シナリオの特徴や優位性などを 分析するうえで有用なツールとなり得る。

	安全性		経済性	実行可能性	(() <b>A</b> - <b>T</b>   <b>T</b>
	(SED指標)		(廃炉作業/ 廃棄物処分)	(工程遅延リスク)	総合評価
S-1	0.29	0.81	(0.67/0.95)	0.89	0.66
S-2	0.95	1.00	(1.00/1.00)	0.75	0.90
S-3	0.35	0.59	(0.55/0.63)	1.00	0.65
S-4	1.00	0.74	(0.90/0.57)	0.77	0.84

表 3.4-12 廃棄物管理シナリオの比較例

- 3.4.5 令和4年度成果のまとめ
  - (1) 廃棄物管理に係るデータ整備

令和4年度には、1F-3号機を廃棄物管理に係る評価の対象と設定し、原子炉建屋、タービン建屋等を領域に分割し、それぞれの領域の物量等を推定するとともに、解体工法、解体工程及び想定した時間軸を当てはめ、廃棄物管理のシナリオを設定した。

(2) 評価手法の検討

コンクリート廃棄物の発生から処理、処分までを俯瞰した4つのシナリオに基づいて、 RHP 値及び SED 指標の値を算出した。さらに、コスト、工程遅延リスク、物量について半 定量的に数値化するとともに、またそれらを総合的にシナリオ評価する手法を検討した。

(3) 廃棄物管理シナリオの構築と評価

シナリオの特性及び優先度を分析するために、安全性、経済性、実行可能性の観点から SED 指標、コスト、廃棄物量、工程遅延リスクの項目について、安全貯蔵の有無、地下構 造物の原位置管理を含むこれらのシナリオについて、意思決定における単純加算法を用い て半定量的に評価を実施した。総合評価は評価項目の重みづけに依存すること、評価に用 いたデータの拡充が必要であるため、本検討の評価は予備的であるが、時間軸が長くなる 場合(安全貯蔵を含むシナリオ)は実行可能性において有利となる一方、安全性及び経済 性において不利となることがわかった。廃棄物管理を含む 1F 廃炉を持続的に進めていく うえで、将来の状況を定量的に分析し、廃棄物管理を着実に進めるための条件を検討・抽 出することが重要と考えられる。

## 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。

P0 及び JP0 による中間フォロー会議を令和4年12月15日に実施した。NDF の第6回福島第 一廃炉国際フォーラム技術ポスターセッション(令和4年8月29日、2件)及び英知を結集し た原子力科学技術・人材育成推進事業成果報告会(令和5年3月17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4年10 月12日、同11月15日)。令和5年3月2日に、IMT AtlantiqueのProf. Bernd Grambowを 招聘し、研究代表者、分担者が進捗を報告するワークショップを開催し、意 見交換を行った。

「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 2022」に参加し、札幌市内の1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 2022 年秋の大会(2件)、日本原子力学会 2023 年春の 年会(5件)及び日本原子力学会北海道支部研究発表会(1件)、日本原子力学会バックエン ド部会第 38 回夏期セミナー(1件)にて発表した。

以上、3 カ年計画の最終年度である令和4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った。

溶脱 HCP 試料での<sup>137</sup>Cs について拡散の  $E_a$ 及び収着の  $\Delta H$ を決定した結果、それらの和が自由 水中の Cs<sup>+</sup>イオンの拡散の  $E_a$ と一致し、<sup>137</sup>Cs は主に溶脱試料の内部間隙中の自由水中を、収着に よる遅延を受けながら拡散している可能性が示唆された。また、<sup>125</sup>I(I<sup>-</sup>イオン)は、未溶脱試 料への収着が認められた一方で、溶脱試料への収着は認められなかった。<sup>125</sup>I は溶脱処理をして いない健全試料ではセメント試料の間隙内部の自由水中を収着による遅延を受けながら拡散して いるが、溶脱試料では健全試料とは異なるプロセスで拡散している可能性が示唆された。さらに、 健全 HCP 試料を用いた酢酸イオン形の<sup>14</sup>C の透過型拡散試験では、実効拡散の  $E_a$ が自由水中の拡 散の  $E_a$ の値より高くなったことから、酢酸<sup>14</sup>C は自由水中とは異なるプロセスで拡散しているこ とが示唆された。一方、溶脱試料では酢酸イオン形の<sup>14</sup>C は破過せず、溶脱が<sup>14</sup>C の移行挙動に影 響を及ぼすことが明らかになった。酸化鉄粉末試料(ヘマタイト、ゲーサイト、フェリハイドラ イト)- セメント系材料(健全 HCP、C-S-H)混合試料でのU収着実験より、平衡 pH が 8 と低く なったフェリハイドライト粒子には U の収着が認められたものの、全ての実験でほぼ全て(> 99.8%)のU が固相に収着した。

炭酸化したセメントペースト溶出試験を行い、非破壊 CT-XRD 連成法によって分析した結果、 変質した様子は認められなかった一方、炭酸化していない試料では溶出用の溶液と常時接してい た硬化体円縁において変化が認められた。試料の中心部近傍では水酸化カルシウムのピークが認 められた。改良した SiTraM2D を用いた模擬計算によって、100 か月後のコンクリートの変質を予 測した結果、水酸化カルシウムの溶脱から判定した変質深さは 5~8 mm 程度となり、母材と骨材 の界面である遷移帯が溶脱を促進することが示された。また、塩化物イオンの浸透においても遷 移帯は影響を与えるが、100 か月後のコンクリート内部は塩化物イオンによって飽和状態に達し ていた。また、コンクリート構造物から採取して粒度調整したコンクリート塊を普通粗骨材と混 合して作製したフライアッシュ再生骨材コンクリートの圧縮強度試験では、容積混合率が 50%に おいて約 1 割の強度低下を示したが、長期的に強度は増加していた。一方、凍結融解試験から求 めた耐久性指数は、300 サイクル終了後も 60%を上回っていたが、表面のスケーリングが比較的 多く生じていた。

<sup>29</sup>Si の存在比率を高めた試薬を用いて合成した C-A-S-H は典型的な XRD プロファイル、<sup>29</sup>Si 及 び <sup>27</sup>A1 NMR スペクトルを示したが、多重核磁気共鳴スペクトルを取得することはできなかった。 結晶性の高い kaolinite からは同じ分析方法で Si と A1 の共鳴が見られたことから、C-S-H の微 細構造はセメント化学で考えられているモデル以上に非晶質的で、Si と A1 の酸素原子を介した  $\sigma$  結合は必ずしも担保されていない可能性が示唆された。材齢 50 年以上のコンクリート試料及 び HCP 試料について、0.5 M、6 M の硝酸アンモニウム溶液への浸漬及び中性化処理により劣化さ せた後、<sup>29</sup>Si 及び <sup>27</sup>A1 を対象核とした NMR 測定により微細構造を評価したところ、0.5 M の硝酸 アンモニウムで浸漬し溶脱の程度が軽い場合には、材齢 50 年以上のコンクリート試料及び HCP 試 料に差異が出た。これは劣化処理前の試料の水和度や Ca/Si 比が異なるためと考えられた。

固体廃棄物貯蔵庫のコンテナ内部の放射能インベントリを算出するモデルを構築し、コンテナ 外部の線量率測定データからコンテナ内部のコンクリート瓦礫の放射能インベントリを推定した。 コンテナ内における不均一な線源分布に由来する誤差を、コンテナ側面での線量測定結果のばら つきに基づき評価することが可能となった。また、滞留水中のコンクリート構造物中の放射性核 種濃度分布については、構造物の厚さや形状、滞留水中の核種濃度を考慮して、場所に応じてコ ンクリートを分類し、対象となる汚染コンクリートの物量を整理した。溶脱を考慮したコンクリ ート構造物内の放射性核種濃度分布を推定した。 瓦礫試料の分析データを整理すると<sup>14</sup>C と<sup>3</sup>H の濃度との相関から被覆管に含まれる放射化生成物に由来する可能性が考えられる。<sup>14</sup>C は汚染水中にも検出されているが、データが断片的であり、これは濃度がごく低いため、その挙動を推定するのは困難である。事故が進展する中で、被覆管が損傷し<sup>14</sup>C が拡散する過程は、被覆管の損傷時とその後の損傷した燃料の冷却時を主要な段階として考え、被覆管の損傷時には、空気と飽和水蒸気の系における<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>の高温の水粒子へ溶解する反応、損傷した燃料の冷却時には、常温下での被覆管から水へ溶解する反応が重要であると考えられた。また、水へ移行する<sup>14</sup>C の化学種は無機物とともに有機物を考慮して検討すべきであることがわかった。炭素は多様な化学形態を取りうるために現時点で未だモデル化には至らないが、<sup>14</sup>C の挙動は重要であり、今後もモデル化に向けた努力を継続していく必要がある。

1F3 号機を廃棄物管理に係る評価の対象と設定し、原子炉建屋、タービン建屋等を領域に分割 し、それぞれの領域の物量等を推定するとともに、解体工法、解体工程及び想定した時間軸を当 てはめ、廃棄物管理のシナリオを設定した。コンクリート廃棄物の発生から処理、処分までを俯 瞰した4つのシナリオに基づいて、RHP 値及び SED 指標の値を算出した。さらに、コスト、工程 遅延リスク、物量について半定量的に数値化するとともに、またそれらを総合的にシナリオ評価 する手法を検討した。シナリオの特性及び優先度を分析するために、安全性、経済性、実行可能 性の観点から SED 指標、コスト、廃棄物量、工程遅延リスクの項目について、安全貯蔵の有無、 地下構造物の原位置管理を含むこれらのシナリオについて、意思決定における単純加算法を用い て半定量的に評価を実施した。総合評価は評価項目の重みづけに依存すること、評価に用いたデ ータの拡充が必要であるため、本検討の評価は予備的であるが、時間軸が長くなる場合(安全貯 蔵を含むシナリオ)は実行可能性において有利となる一方、安全性及び経済性において不利とな ることがわかった。廃棄物管理を含む 1F 廃炉を持続的に進めていくうえで、将来の状況を定量 的に分析し、廃棄物管理を着実に進めるための条件を検討・抽出することが重要と考えられた。

本年度の成果は以下のようにまとめられる。

- HCP 中の放射性核種の移行には、空隙中の自由水を収着の影響を受けながら拡散する場合 (溶脱 HCP 中の<sup>137</sup>Cs、健全 HCP 試料中の I<sup>-</sup>等)、自由水中の拡散とは異なるメカニズムで 移行する場合(溶脱 HCP 試料中の I<sup>-</sup>、健全 HCP 試料中の酢酸<sup>14</sup>C 等)、移行が認められない 場合(健全 HCP 中の炭酸<sup>14</sup>C、溶脱 HCP 中の酢酸<sup>14</sup>C 等)等があった。
- <sup>137</sup>Cs については C-S-H の変質や M-S-H の生成などとの関係が示唆される結果となったが、 他の核種については HCP の複雑さ等もあり微細構造との明確な関係性は示唆されず、さら なる検討が必要である。
- 鉄とセメント系材料が混在する系では、高 pH 条件下では U はそのほとんどがセメント系材料に収着する。
- 溶脱試料の微細構造は、溶脱の度合いや溶脱溶液の種類(海水/純粋)に加えて、溶脱する前の HCP の水和度や Ca/Si 比、炭酸化等の影響を受ける。
- C-S-H の微細構造はセメント化学で考えられているモデル以上に非晶質的で、Si と A1 の酸 素原子を介した σ 結合は必ずしも担保されていない可能性がある。
- 溶脱の進行には骨材とセメントの境界に形成される遷移帯が影響を与えることがシミュレ
   ーションにより明らかになった。
- 1F-3 号機(原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物処理建屋)を対象とした場合、人工岩を除く227 千tのコンクリートのうち約70 千tが放射性廃棄物、約157 千tが非放射性廃棄物となると推計された。放射性廃棄物は地上部が約43 千t、地下部が約24 千tとなり、地下部については約4割程度がL2、約6割程度がL3と推計された。
- 地下構造物を原位置で継続管理する場合には、放射性廃棄物量を 1/3 程度、非放射性廃棄 物を 1/4 程度、減量することができる。
- コンクリート構造物の解体物の約7割が非放射性廃棄物であると推計され、クリアランス など非放射性廃棄物を合理的に処理・処分する方法を整備することも重要であることがわ かった。本研究では、コンクリート構造物から採取して粒度調整したコンクリート塊を普

通粗骨材と混合して作製したフライアッシュ再生骨材コンクリートの圧縮強度試験や耐久 性指数の確認も行った。

即時解体と安全貯蔵の予備的なシナリオ評価からは、安全性、経済性については即時解体が、実行可能性については安全貯蔵が優位となった。また、構造物全てを解体する場合と地下構造物を原位置で継続管理する場合の評価結果は差が小さく、安全性、経済性、実行可能性のどの項目に重みをおいて評価するかに左右される。

本事業の成果は以下のようにまとめられる。

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

HCP 中の核種の移行は溶脱変質により変化するが、変化の仕方は核種(<sup>137</sup>Cs、I、<sup>14</sup>C など)や 化学形態により異なることがわかった。事故による汚染の主要な核種である<sup>137</sup>Cs については、 溶脱変質した C-S-H や海水溶脱の際に生成される M-S-H への収着の影響が大きく、溶脱による細 孔構造の変化や空隙率の増大にも関わらず、見かけの拡散係数は減少する結果となった。また、 Uについては、鉄とセメント系材料が混在する系では、セメント系材料が存在する高 pH 条件下で は U のほとんど (>99.8%)が溶脱の有無に関わらず、セメント系材料に収着した。

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

溶脱により、HCP・コンクリートではポルトランダイトの溶脱や C-S-H のシリカゲル様の構造 への変質などが起こるが、その変化は変質前の HCP・コンクリートの状態(炭酸化など)に依存 することが明らかになった。また、溶脱の進行には HCP と骨材の界面に形成される遷移帯でのイ オンの輸送が関与している可能性が示唆された。さらにコンクリート構造物から採取して粒度調 整したコンクリート塊を利用して再生骨材コンクリートを調製し、強度などの特性を評価して再 資源化の実現性を確認した。

 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 固体廃棄物貯蔵庫のコンテナに保管されているガレキ類について、コンテナ外部の線量率測定 データからコンテナ内部のコンクリート瓦礫の放射能インベントリを推定するモデルを構築した。 また、構造物の厚さや形状、滞留水中の核種濃度を考慮してコンクリートを分類し、溶脱を考慮 したコンクリート構造物内の放射性核種(<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr、<sup>129</sup>I)の濃度分布を推定し、廃棄物管理シ ナリオの基礎とした。また、重要核種である Pu 及び<sup>129</sup>I、<sup>14</sup>C についてそれらの起源及び放射性 核種がコンクリートに到達するまでの過程を対象として移行挙動のモデルを検討した。
 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

1Fの原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物処理建屋のコンクリートは、人工岩を除くと約3割が 放射性廃棄物、約7割が非放射性廃棄物と推計され、放射性コンクリート廃棄物の減量化・減容 化に加えて、非放射性コンクリート廃棄物の再資源化等による減量化・減容化が重要であること が明らかになった。また、複数の解体・廃棄物管理シナリオを安全性、経済性、実行可能性につ いて比較・評価する手法を構築した。予備的な評価の結果、即時解体と安全貯蔵を比較すると、 安全性、経済性については即時解体が、実行可能性については安全貯蔵が優位となった。構造物 全てを解体する場合と地下構造物を原位置で継続管理する場合は評価結果の差が僅かであり、安 全性、経済性、実行可能性のどの項目を重視するかに左右されることが示された。

今後の課題として、経年変化、溶脱変質や遷移帯の影響など 1F の HCP やコンクリートの特性 を考慮したうえで、

- 放射性コンクリート廃棄物の減量化・減容化のため、また、最も量の多い非放射性コンクリート廃棄物の再資源化のため、骨材分離などのコンクリート処理技術の1F コンクリートへの 適用の可能性、効果の検討
- コンクリート処理の際に発生する二次廃棄物及び廃棄体の製作手法の検討、廃棄体の特性把握
- クリアランス制度の 1F における運用や放射性コンクリートから製作する廃棄体に関する要件の抽出

などが挙げられる。

参考文献

- [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., D0I:10.11484/jaea-review-2021-070
- [2] 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、JAEA-Review 2022-038、2023、102p.、 https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-038
- 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] Phung, Q.T., Maes, N., Jacques, D., De Schutter, G., Ye, G., Investigation of the changes in microstructure and transport properties of leached cement pastes accounting for mix composition, Cem. Concr. Res., Vol. 79, 2016, pp. 217-234, https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2015.09.017
- [4] Parsons, R., Handbook of Electrochemical Constants, Butterworths Scientific Publications, London, 1959, p. 79.
- [5] Morishita, Y., Takiya, H., Tanaka, S., Watanabe, N., Kozaki, T., Shitara, D., Diffusion of Cs+ ions in hardened cement paste samples simulating altered concreate at Fukushima Daiichi NPP, 26th International Conferences on Nuclear Engineering, ICONE26-82570, London, 2018.
- [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, p.617.
- [8] Crank, J., The Mathematics of Diffusion (2nd Ed.), Oxford University Press, 1975. pp. 44-68.
- [9] Wieland, E., Jakob, A., Tits, J., Lothenbach, B., Kunz, D., Sorption and diffusion studies with low molecular weight organic compounds in cementitious systems. Appl. Geochem., Vol. 67, 2016, pp. 101-117,

https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2016.01.009

- [10] Gu C., Wang Z., Kubicki J. D., Wang X., Zhu M., X-ray absorption spectroscopic quantification and speciation modeling of sulfate adsorption on ferrihydrite surfaces, Environ. Sci. Technol., 50, pp. 8067-8076, 2016.
- [11] Bruno J., De Pablo. J., Duro L., Figuerola E., Experimental study and modeling of the U(VI)-Fe(OH)<sub>3</sub> surface precipitation/coprecipitation equilibria, 59, pp. 4113-4123, 1995.
- [12] Hobbs D. T., Precipitation of uranium and plutonium from alkaline salt solutions, Nucl. Technol., 128, pp. 103-112, 1999.
- [13] Hossain M. M. M. and Ohde S., Uranium in pore water from coastal sediments determined by chemical activation analysis, J. Radioanal. Nucl. Chem., 251, pp. 333-336, 2002.

- [14] Noubactep, C., Schöner, A., Dienemann, H., Sauter M., Release of coprecipitated uranium from iron oxides, J. Radioanal. Nucl. Chem., 267, pp. 21-27, 2005.
- 3.2 汚染水との接触により変質したコンクリートの特性評価
- [15] Buil, M., Revertegat, E. and Oliver, J., A Model of the attack of pure water or undersaturated lime solutions on cement, ASTM special technical publication 1123, Vol. 2, pp. 227-241, 1992.
- [16] 日本産業規格, JIS A 1148, コンクリートの凍結融解試験方法・同解説.
- [17] 湊 大輔, 渡邊 禎之, 原澤 修一, 山田 一夫, C-A-S-H への Cs の収着挙動の評価, Cement Science and Concrete Technology, vol.69, 2015, pp.53-60.
- [18] He, H., Zhu, j.X., Guo, J., Hu, C., <sup>29</sup>Si and <sup>27</sup>Al MAS NMR study of the thermal transformations of kaolinite from North China, Clay Minerals, vol. 38, no. 4, pp. 551-559, 2003, https://doi.org/10.1180/0009855033840114
- [19] Andersen, M. D. et al., Characterization of white Portland cement hydration and the C-S-H structure in the presence of sodium aluminate by <sup>27</sup>Al and <sup>29</sup>Si MAS NMR spectroscopy, Cem. Con. Res., vol. 34, no. 5, 2004, pp. 857-868.
- [20] Matsushita, Fumiaki et al., Calcium silicate structure and carbonation shrinkage of a tobermorite-based material, Cem. Con. Res., vol. 34, no. 7, 2004, pp. 1251-1257.
- [21] Walkley, B., Provis, J.L., Solid-state nuclear magnetic resonance spectroscopy of cements, Mater. Today Adv., 1, 2019, 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、放射性廃棄物物量の推計
- [22] 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. 55(5-6), pp. 684-690, 2018.
- [23] 東京電力ホールディングス,構内にある滞留水の水位・移送、処理の状況, https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/tairyusui/index-j.html (accessed 2023/1/25).
- [24] 東京電力ホールディングス,福島第一原子力発電所の汚染水処理対策の課題と対応,2021 年6月25日, https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/osensuitaisaku/committee/osensuisyori /2021/pdf/23\_14.pdf(accessed 2023/1/25).
- [25] 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.
- [26] 東京電力ホールディングス,建屋内の空間線量率について,2017年11月30日.
- [27] 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/(accessed 2023/1/25).
- [28] Takahatake, Y., Koma, Y., Correlation With Cobalt-60 for Radioactive Nuclides in Solid Waste Generated at Fukushima Daiichi NPS FDR2022 International Topical

Workshop on Fukushima Decommissioning Research, Oct 14–16, 2022, Fukushima, Japan, FDR2022-1063,2022.

- [29] 永瀬 文久 ほか、ジルコニウム合金の水素脆化に関する研究の現状と課題、JAERI-Review 95-012, 1995, 122p. https://doi.org/10.11484/jaeri-review-95-012
- [30] Yamaguchi, T., Tanuma, S., H. Tanabe, et al., A Study on Chemical Forms and Migration Behavior of Radio Nuclides in Hull Wastes, Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ICEM 1999), Nagoya, Japan, 1999.
- 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
- [31] IAEA, Decommissioning of Facilities using Radioactive Materials, Safety Requirements, No. WS-R-5, 2006.
- [32] 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, NUREG/CR-0672, TI85015935, 1980.
- [33] 廃炉・汚染水対策関係閣僚等会議, "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," 2019 年 12 月 27 日.
- [34] NDA, NDA Prioritization Calculation of Safety and Environmental Detriment Scores, EGPR02, Revision 6, 2011.
- [35] NDA Prioritization Working Group, The Development of a Work Programme Prioritization Process for the NDA, Report of the Prioritization Working Group, 2005.
- [36] NDA, Instruction for the calculation of the Radiological Hazard Potential, EGPR02-WI01, Revision 3, 2010.
- [37] NDA, The NDA Prioritization Process Development Process Route Map Report, EGR014, Revision 0, 2006.
- [38] OECD/NEA, Costs of Decommissioning Nuclear Power Plants, NEA No. 7201, 2016.
- [39] OECD/NEA, Addressing Uncertainties in Cost Estimates for Decommissioning Nuclear Facilities, NEA No. 7344, 2017.
- [40] 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.
- [41] IAEA, Decommissioning of Nuclear Power Plants and research Reactors, Safety Guide, No. WS-G-2.1, 1999.
- [42] 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.
- [43] 環境省,放射線による健康影響等に関する統一的な基礎資料(平成29年度版、HTML形式), https://www.env.go.jp/chemi/rhm/h29kisoshiryo/h29kiso-02-02-05.html (accessed 2023/1/25).