

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
(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－

Quantitative Evaluation of Long-term State Changes of Contaminated Reinforced
Concrete Considering the Actual Environments for Rational Disposal
(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
東京大学

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

September 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

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

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 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 Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

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
(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

東京大学

(2024年3月14日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA) 廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)では、令和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、「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」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。

福島第一原子力発電所のコンクリート構造物の廃止措置では、廃棄物量や濃度を推計することが重要となる。本研究は、コンクリート部材における汚染濃度分布の定量予測を目的としている。コンクリート中の放射性核種の移動には、使用材料(セメント種類、骨材)、状態変化(ひび割れ、乾燥・炭酸化)、放射性核種との接触状態(冷却水と海水の混合、汚染水の濃度変化)等が影響を及ぼす。本研究では、実環境を考慮した放射性核種の浸透状況の推定に向けて、以下を実施した。

経年変化したコンクリートの状態を数値解析上で再現するため、乾燥、再吸水によって生じる変形および水分移動に関するデータを取得した。並行して、剛体バネモデルを用いて、コンクリートの材齢変化および温度・水・応力条件を考慮できる、ひび割れの分布を計算する数値解析手法を開発した。コンクリートマトリクスへの長期的な核種の浸透挙動を評価するため、C-A-S-H系におけるCsやSrの収着に関するデータを取得し、熱力学的相平衡を考慮する多元素移動モデルに基づく、イオン浸透予測手法を構築した。構造的および化学的に変化したコンクリートへの放射性核種の浸透挙動を評価するために、ひび割れを有するコンクリートを事故後の汚染水組成相当の溶液に浸漬し、Cs、Srの浸透状況をオートラジオグラフィにより評価した。 α 核種については、ひび割れを模擬した試験片を作製し、 α 核種を含む模擬汚染水への浸漬試験により浸透深さを評価した。最後に、得られた知見を元にして、汚染コンクリートの量を推算した。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、東京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

Quantitative Evaluation of Long-term State Changes of Contaminated Reinforced Concrete
Considering the Actual Environments for Rational Disposal
(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

The University of Tokyo

(Received March 14, 2024)

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 “Quantitative evaluation of long-term state changes of contaminated reinforced concrete considering the actual environments for rational disposal” conducted from FY2020 to FY2022.

Estimating waste volume and concentration is essential for decommissioning concrete structures at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. This study aims to quantitatively predict the distribution of contaminants in concrete components considering the actual contamination affected by the materials used (cement type, aggregate); conditions (cracking, drying/carbonation); and contact procedure with radionuclides (mixing of cooling water and seawater, changes in its concentration).

Data on deformation and water movement caused by drying and reabsorption were obtained to reproduce aged concrete conditions in numerical analysis. In parallel, a numerical code was developed to calculate the distribution of cracks using a rigid-body spring model considering the history of temperature, water, and stress conditions. To evaluate the long-term penetration of radionuclides, the sorption of Cs and Sr in C-A-S-H was measured, and a multi-element transfer model considering thermodynamic phase equilibrium was developed for radionuclide penetration. Simultaneously, the penetration behaviors of Cs and Sr under the assumed conditions mentioned above were measured by autoradiography. The depth of α -nuclides penetration was evaluated by immersing specimens simulating cracks in the solution containing α -nuclides. Finally, the amount of contaminated cracked dried concrete by Cs and Sr was estimated based on the findings.

Keywords: Concrete, Radionuclide, Carbonation, Drying, Crack, Penetration, Sorption, Simulation

This work was performed by The University of Tokyo under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2. 平成 30 年度 採択課題	2
3. 令和元年度 採択課題	5
4. 令和 2 年度 採択課題	8
5. 令和 3 年度 採択課題	10
6. 令和 4 年度 採択課題	12
付録 成果報告書	15

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
5. Accepted Proposal in FY2021.....	10
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result Report	15

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

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

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

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

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

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

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

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

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

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

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

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

課題解決型廃炉研究プログラム

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

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

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

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

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

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

課題解決型廃炉研究プログラム

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

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

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とティアップ型人材育成	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	渡邊 豊	東北大学
β 、 γ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

5. 令和3年度 採択課題

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

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

課題数：12 課題

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

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

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

令和3年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

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

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

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

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
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

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

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

(契約番号 R04I021-1)

成果報告書

令和 5 年 3 月

国立大学法人東京大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人東京大学が実施した「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」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す。

目次

概略	viii
1. はじめに	1
2. 業務計画	2
2.1 全体計画	2
2.2 実施体制	4
2.3 令和4年度の成果の目標および業務の実施方法	5
3. 実施内容および成果	7
3.1 核種の長期挙動シミュレーションに向けた部材のひび割れ幅・深さと密度を含む状態設定の検討	7
3.1.1 メソスケールひび割れ解析に必要な各種物性値の取得（令和2年度～令和4年度）	7
3.1.2 メソスケールひび割れ解析の実施とひび割れ量の評価（令和2年度～令和4年度） （再委託先：名古屋大学）	17
3.2 コンクリート部材の状態を考慮した浸透挙動解析の手法検討 （再委託先：太平洋コンサルタント、太平洋セメント）	29
3.2.1 モデルによる核種浸透シミュレーション（令和2年度～令和4年度）	29
3.2.2 ダメージを受けたコンクリートの核種移行評価（令和2年度～令和4年度）	52
3.3 実際の核種の種類・濃度を考慮した収着/浸透挙動評価	56
3.3.1 低濃度領域での ¹³⁷ Csと ⁹⁰ Srの競合浸透の評価（令和2年度～令和4年度） （再委託先：国立環境研究所、北海道大学）	56
3.3.2 α核種のコンクリート部材への収着挙動評価（令和2年度～令和4年度） （連携先：JAEA）	69
3.4 処理・処分を見据えたコンクリート廃棄物の状態検討（令和4年度）	78
3.5 研究推進	84
4. 結言	86
参考文献	89

執筆者リスト

事業代表者	国立大学法人東京大学	教授	丸山 一平
再委託先	国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学	准教授	日比野 陽
		准教授	五十嵐 豪
	国立大学法人北海道大学	准教授	東條 安匡
	国立研究開発法人国立環境研究所	フェロー	山田 一夫
	太平洋セメント株式会社	チームリーダー	細川 佳史
	株式会社太平洋コンサルタント	部長	芳賀 和子
		グループリーダー	渋谷 和俊 洞 秀幸 富田 さゆり
連携先	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	ディビジョン長 技術副主幹	駒 義和 比内 浩 粟飯原 はるか

表一覧

表 3-1	使用材料	8
表 3-2	セメントペーストおよびモルタルの調合	8
表 3-3	使用材料	11
表 3-4	調合およびフレッシュ性状	11
表 3-5	コンクリート調合およびフレッシュ性状	12
表 3-6	水吸着シミュレーションで使用した入力パラメータ	26
表 3-7	収着試験水準表	30
表 3-8	OPC コンクリートの Cs、Sr 浸透試験の試験体の調合	36
表 3-9	FAC コンクリートの Cs、Sr 浸透試験の試験体の計画調合	36
表 3-10	浸透試験の条件	36
表 3-11	各水和物の反応式とその熱力学的平衡定数	37
表 3-12	作成した炭酸化部の Cs、Sr 収着相および平衡定数フィッティング結果	42
表 3-13	IF コンクリートの Cs、Sr 浸透予測条件	44
表 3-14	コンクリートの計画調合	53
表 3-15	ひび無し部とひび割れ部周辺の拡散係数	55
表 3-16	浸漬溶液の組成	58
表 3-17	モルタルの浸漬試験の水準と測定結果から求めた見かけの拡散係数	58
表 3-18	ひび割れコンクリート（促進炭酸化）の浸漬実験水準	59
表 3-19	汚染水中の核種割合	61
表 3-20	ひび割れた乾燥炭酸化コンクリートへの Cs と Sr の浸透プロファイルから フィッティングにより求めた見かけの拡散係数	66
表 3-21	セメントペーストの長期浸漬試験の条件	70
表 3-22	ひび割れ試験片の浸漬条件	75
表 3-23	評価に用いた拡散係数	80
表 3-24	令和 4 年度の全体会合の開催実績	85

図一覧

図 2-1	全体計画図	2
図 2-2	研究の全体像	3
図 2-3	本研究の実施体制図	4
図 3-1	モルタルの膨潤試験結果	9
図 3-2	セメントペーストの膨潤試験結果	9
図 3-3	モルタルの再吸水挙動	9
図 3-4	セメントペーストの再吸水挙動	10
図 3-5	動弾性係数および動ポアソン比の変化	10
図 3-6	画像相関法を用いた再吸水過程のひずみ変化	12
図 3-7	吸水時のグレースケールの変化	13
図 3-8	実際の質量変化量とグレースケールによる質量変化量の関係	13
図 3-9	吸水高さの経時変化	14
図 3-10	乾燥・吸水に伴う主ひずみ分布	15
図 3-11	吸水中のひずみと水分のフロントの比較	16
図 3-12	基準供試体の形状および鉄筋の配置	18
図 3-13	物質移動と構造解析のための境界条件	20
図 3-14	早期から長期運用に向けた劣化の状況	21
図 3-15	地震荷重下における構造物のひび割れからの劣化	22
図 3-16	トラスネットワークモデルの概要図	23
図 3-17	毛管上昇高さの発現に関する境界条件を変更した場合の模式図	24
図 3-18	参考実験の概要	25
図 3-19	コンクリート供試体の3相モデル	25
図 3-20	再湿潤過程における吸水特性と構造応答性	27
図 3-21	各 C/(A+S) 比の C-A-S-H の Cs、Sr 単独相の収着試験結果に対し フィッティングした結果	31
図 3-22	健全、炭酸化コンクリート試料の Cs、Sr 浸透プロファイルの実験結果と 計算結果の比較 (左: Cs、右: Sr)	32
図 3-23	熱力学的相平衡多元素移動モデルにおいて考慮すべき要因一覧	35
図 3-24	健全飽水-FAC コンクリート-高濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル__実験結果と 計算結果の比較 (左: Cs、右: Sr)	38
図 3-25	健全飽水-FAC コンクリート-低濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル__実験結果と 計算結果の比較__粗骨材の収着影響反映後 (左: Cs、右: Sr)	39
図 3-26	健全飽水-FAC コンクリート-高濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル__実験結果と 計算結果の比較__ひび割れ部の浸透 (左: Cs、右: Sr)	40
図 3-27	健全飽水-FAC コンクリート-低濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル__実験結果と 計算結果の比較__ひび割れ部の浸透 (左: ひび割れ幅 0.08 mm、右: ひび割れ 幅 0.25 mm)	40
図 3-28	健全乾燥-FAC コンクリート-低濃度 Cs 浸透プロファイル__実験結果と計算 結果の比較__健全部 (左: ひび割れ幅 0.03 mm、右: ひび割れ幅 0.15 mm)	41
図 3-29	炭酸化した C-A-S-H の Cs、Sr 収着試験__実験結果と計算結果	42

図 3-30	炭酸化飽水-OPC コンクリート-高濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル__実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)	43
図 3-31	健全飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透プロファイル__実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)	45
図 3-32	健全飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透__pH と鈹物量計算結果 (左 : 初日、右 : 滞留水除去時)	45
図 3-33	健全飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透__C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果.....	46
図 3-34	炭酸化飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透プロファイル__実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)	47
図 3-35	炭酸化飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透__pH と鈹物量計算結果 (左 : 初日、右 : 滞留水除去時)	47
図 3-36	健全飽水および炭酸化飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透__C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果.....	48
図 3-37	健全飽水-FAC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透プロファイル (左 : Cs、右 : Sr)	49
図 3-38	健全飽水-FAC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透__pH と鈹物量計算結果 (左 : 初日、右 : 滞留水除去時)	49
図 3-39	健全飽水-FAC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透__C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果.....	50
図 3-40	モデルによる核種浸透シミュレーションにおける令和 4 年度までの主な成果と課題	51
図 3-41	浸漬試料の EPMA 面分析結果	54
図 3-42	ひび割れ部における濃度プロファイルの作成方法	55
図 3-43	OPC モルタル試料の濃度プロファイルへのフィックの法則によるフィッティング (Cs)	60
図 3-44	OPC モルタル試料の濃度プロファイルへのフィックの法則によるフィッティング (Sr)	60
図 3-45	1 年浸漬のフィックの拡散則による計算浸透プロファイル.....	62
図 3-46	ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Cs 浸透	62
図 3-47	浸透プロファイル取得のためのメッシュの設定方法の例	63
図 3-48	ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Cs 浸透プロファイル	63
図 3-49	ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Sr 浸透	64
図 3-50	ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Sr 浸透プロファイル	64
図 3-51	ひび割れ幅と浸透プロファイル (材齢 60 日)	65
図 3-52	乾燥炭酸化 FAC コンクリートの見かけの拡散係数を用いたひびなし部とひび割れ部の Cs と Sr の材齢 60 日の浸透プロファイルの再現	67
図 3-53	セメントペースト試験片の長期浸漬の様子	71
図 3-54	12 ヶ月浸漬したセメントペーストへの ²³⁹ Pu および ²⁴¹ Am の浸透深さ依存性	72
図 3-55	変質状態および予備浸漬条件の異なるセメントペーストの浸漬期間ごとの ²³⁹ Pu および ²⁴¹ Am 濃度の深さ依存性.....	73
図 3-56	ひび割れ模擬試験片の構造	74

図 3-57	ひび割れ模擬試験片の浸漬の様子	75
図 3-58	ひび割れ模擬試験片を分析するための切断箇所	75
図 3-59	ひび幅の異なる試験片の ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性	76
図 3-60	変質状態や予備浸漬条件の異なる試験片の ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性	77
図 3-61	地震前のひび割れ状況	79
図 3-62	地震荷重後のひび割れ状況（横変位の 1/800）	80
図 3-63	Cs と Sr の材齢 7 年の濃度プロファイル予測計算結果	81
図 3-64	ひび割れ解析で得られたひび割れ分布	82
図 3-65	単位面積あたりの汚染物量とひび割れ総延長（ひび割れ密度）との関係	83

略語一覧

東京大学	: 国立大学法人東京大学
名古屋大学	: 国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学
北海道大学	: 国立大学法人北海道大学
東北大学	: 国立大学法人東北大学
国立環境研究所	: 国立研究開発法人国立環境研究所
太平洋セメント	: 太平洋セメント株式会社
太平洋コンサルタント	: 株式会社太平洋コンサルタント
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (廃炉環境国際共同研究センター)
IRID	: International Research Institute for Nuclear Decommissioning (技術研究組合国際廃炉研究開発機構)
東京電力	: 東京電力ホールディングス株式会社
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
OPC	: Ordinary Portland Cement (普通ポルトランドセメント)
FA	: Fly Ash (フライアッシュ)
FAC	: Fly Ash Cement (フライアッシュセメント)
C-A-S-H	: $w\text{CaO}-x\text{Al}_2\text{O}_3-y\text{SiO}_2-z\text{H}_2\text{O}$ (アルミノケイ酸カルシウム水和物)
C-S-H	: $x\text{CaO}-y\text{SiO}_2-z\text{H}_2\text{O}$ (ケイ酸カルシウム水和物)
RBSM	: Rigid-Body Spring Network Model (剛体バネモデル)
TNM	: Truss-Network Model (トラスネットワークモデル)
CEC	: Cation Exchange Capacity (陽イオン交換容量)
RI	: Radioactive Isotope (放射性同位元素)
IP	: Imaging Plate (イメージングプレート)
M	: mol/L
Ig. loss	: Ignition loss (強熱減量)
EPMA	: Electron Probe Micro Analyzer (電子線マイクロアナライザー)

概略

福島第一原子力発電所（1F）の事故に伴い汚染した建屋コンクリートは、将来的に解体され、放射性廃棄物となる。事故の影響を受けた1～4号機のコンクリート廃棄物量は、原子炉建屋、タービン建屋を合わせて約80万tonとも推計され、大量の発生が見込まれるコンクリート廃棄物の処理・処分方法を検討する上で、建屋内の汚染状況の推定は極めて重要である。

事故後の建屋内には複数の放射性核種（Cs、Sr、 α 核種等）が存在し、またコンクリートの部材によって放射性核種との接触状態が異なるため、放射性核種の分布や浸透状況も異なると想定される。例えば、地震によって構造的な影響を受けたコンクリート部材では、表層からの浸透の他、ひび割れに沿った侵入による部材内部の汚染や鉄筋の変質が懸念される。一方で、建屋内部では放射性核種や水分の浸透を抑制するための被覆材が施されていない部材でも、コンクリート表面の中性化（大気中のCO₂による炭酸化）の影響で、外部からもたらされたCs/Srは表層に濃集する。すなわち、高濃度の汚染箇所は部材全体のごく表層のみで、部材によっては内部まで放射性核種が浸透していない可能性もある。建屋内除染、建屋の解体作業および廃棄物処理処分の計画を策定する際、実際の部材の状態から汚染状況を推定し、部材別・汚染濃度別に分類し物量を定量的に予測できれば、合理的に除染・処理・処分を進めることができ、最終的な廃棄物発生量を抑制できる。

本研究では、廃炉作業の設計、すなわち建屋内除染、建屋の解体作業および廃棄物処理処分の計画を策定する際に必要となる、汚染状況の推定情報に基づいた原子炉建屋内の各鉄筋コンクリート部材における汚染濃度分布定量予測データベース構築を目的として実施している。検討対象は、長期間汚染水と接触し、放射性核種の浸透が著しい可能性があるタービンピット地下のコンクリートを検討対象とした。放射性核種を含むイオンのコンクリートへの浸透は、コンクリートを構成する各種の固相とイオンとの相互作用を伴う、複雑なコンクリートの空隙中の拡散と見做すことができる。現実のコンクリートは、乾燥に伴うひび割れを有し、表層が乾燥しており、これらがイオン浸透に影響する。固相とイオンの相互作用は、汚染水との接触によるCa溶脱、炭酸化、骨材、乾燥状態からの水の移流と固相との相互作用の速度差、などの影響を受け、さらに、津波により1日海水に接した後に、海水と混合した炉心からの汚染水に曝され、固相との相互作用に競合する各種のイオンも影響する。このように、現実のコンクリートの汚染を予想するには、現実のコンクリートの状況と実際の汚染履歴を考慮する必要がある。

以下に、3ヶ年計画の3年目である本年度の業務実績を述べるとともに、本研究の全体の成果をまとめる。

(1) 核種の長期挙動シミュレーションに向けた部材のひび割れ幅・深さと密度を含む状態設定の検討

① メソスケールひび割れ解析に必要な各種物性値の取得【R2-R4】

令和2年度には、メソスケールのひび割れ挙動を評価するための構成則に資するデータと検証用となるデータの取得を目的に、乾燥、再吸水によって生じる力学特性（強度、ヤング率）の変化ならびに体積変化を取得可能な試験体の作製、乾燥、再吸収、外部拘束等を模擬するための治具の作製、試験体の弾性係数の変化を測定可能な治具の作製を行い、実験手法の確立に向け予備試験を実施した。また、次年度に向けた試験体の作製を行った。令和3年度には、乾燥、再吸水を模擬する実験を行うため、試験体を作製し、試験体の乾燥、再吸水によって生じるマクロメソスケールの変形および水分移動に関するデータを取得した。巨視的な体積変化挙動（レーザー

変位計)、ひび割れの開閉(画像相関法による画像分析)に関する実験的評価を行った。また、数値解析の構成則構築に必要となる異なる含水状態、温度状態の試験体の物性値を取得した。以上を踏まえ、令和4年度は、検証用のひび割れ評価実験データの整備として、乾燥、再吸水を模擬するための外部拘束を模擬した試験体に対して、乾燥、再吸水によって生じる挙動について、物性変化および挙動評価の測定を画像相関法等の手法を用いて取得した。

接触型変位計による巨視的な体積変化挙動を測定した結果、吸水中の経時変化において、約3分経過後に一度膨潤が停滞した後に、約3時間経過後に再び膨潤が進展する傾向が確認された。また、画像相関法によるひび割れの開閉を観察した結果、拘束条件下で乾燥を受けたモルタル試験体に貫通ひび割れが発生すること、その後、吸水によってモルタルが膨潤し、貫通ひび割れが閉塞する挙動が確認された。さらに、乾燥に伴う乾燥収縮、質量減少、剛性低下が、再吸水に伴い回復する傾向を確認した。再吸水過程において、画像相関法を用いてひずみの分布が変化すること、X線ラジオグラフィにより水分の分布が変化すること、ひずみ分布と水分分布の比較により、再吸水のフロントが対応する傾向を確認した。

② メソスケールひび割れ解析の実施とひび割れ量の評価【R2-R4】(再委託先：国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学(以下、「名古屋大学」という。))

令和2年度には、剛体バネモデル(以下、「RBSM」という。)を用い、建設時の温度応力と供用時の乾燥を考慮したひび割れ評価手法について、温度・水・応力および材齢変化を考慮できるプログラムの開発方針を立案し、開発を進めた。令和3年度には、前年度までのマスコンクリートに生ずる初期ひび割れの影響の高精度化に加え、長期の乾燥によるひび割れに関する数値解析と水分移動について検討した。また、次年度に実施する地震におけるひび割れの検討、事故時における代表的な部材についての解析に資する予備的検討を行った。以上を踏まえ、令和4年度は、若材齢からの乾燥に伴う挙動をRBSMにより評価した。また、接水後の挙動について、ひび割れの動的挙動(ひび割れの開閉を含む)を考慮した解析プログラムを開発し、水分浸透解析について代表的な部位について解析を実施した。

その結果、解析において乾燥過程で、モルタルと骨材の体積変化の違いにより微細ひび割れが発生する様子、再吸水過程において、液状水の浸透、マトリクスへの吸水膨潤、膨潤に伴いひび割れが閉塞する様子を表現できる数値解析結果を得た。また、原子炉建屋の中にある大断面部材コンクリートの水和発熱による初期応力、乾燥収縮および地震時の面内水平加力による荷重変形関係およびひび割れ進展挙動について解析した。

(2) コンクリート部材の状態を考慮した浸透挙動解析の手法検討(再委託先：株式会社太平洋コンサルタント(以下、「太平洋コンサルタント」という。)、太平洋セメント株式会社(以下、「太平洋セメント」という。))

① モデルによる核種浸透シミュレーション【R2-R4】

令和2年度は、実際の1F建屋コンクリート部材の状態を考慮した浸透挙動を解析するため、平成29年度～令和元年度に実施された英知事業「放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究」^[2](以下、「前研究」という。)で作成したC-S-HによるCs、Sr吸着モデルを基に、さらにC-S-HへのAlの固溶を考慮したC-A-S-HによるCs、Sr吸着モデル作成に必要な試験方法を検討および実施した。令和3年度には、令和2年度の成果を用いてC-A-S-HのCs、Sr吸着モデルを作成するとともに、作成したモデルを用いて健全および炭酸化状態のOPCコンクリートへの浸漬試験を再現できるか検証した。以上を踏まえ、令和4年度は、1F建屋コンクリートの汚染状態検討に反映するための、実機環境を考慮した汚染状態の定量評価を目的に、異

なる条件設定（材料、炭酸化の状態等）における Cs、Sr の浸透深さ計算を実施した。また、令和 2 年度より開始した核種浸透シミュレーションに関する取りまとめとして、前年度までの検討内容を整理し、実際のコンクリート部材における長期的な核種の浸透挙動評価に必要となる知見を、今後の課題も含め提示した。

その結果、C-A-S-H による Cs、Sr 吸着試験の結果より、C-A-S-H 中の Al および環境中の高濃度のアルカリ金属元素（Na、K）が Cs、Sr の吸着反応に影響を及ぼす可能性が再確認された。前年度までの課題であったセメントペーストの炭酸化によって生成した物質による Cs、Sr 吸着量の増加をモデル化し様々な条件（OPC/FAC、健全/炭酸化、飽水/乾燥、ひび割れの有/無、液相濃度の高/低）の浸透試験について計算を行い、特に Cs の浸透について計算によって実験結果が再現できることが確認された。また、改良したプログラムによって 1F のコンクリートの Cs、Sr 浸透を計算し、骨材量や炭酸化程度、ひび割れの有無が浸透に大きく影響することがわかった。

② ダメージを受けたコンクリートの核種移行評価【R2-R4】

令和 2 年度には、ひび割れ部を考慮した物質移行の評価に資するデータ取得と、0.2 mm 程度のひび割れを含むコンクリートの物質移行のモデル化を目的とし、ひび割れ部のモデル化に向けた課題を整理するとともに、既往研究の事例を参考にひび割れ導入の予察試験を実施し、概ね目標とする幅でひび割れを導入できる見通しを得た。また、令和 3 年度以降の試験に供する試験体を作製した。令和 3 年度には、前年度の調査結果を踏まえ、実構造物におけるひび割れ部を模擬した試験体の作製方法を試行し、実構造物におけるひび割れ部を模擬した試験体の作製条件を決定した。また、令和 2 年度に成形したコンクリート試験体について、浸透試験開始前の分析を行った。さらに、コンクリートのひび割れ試料を作製し、安定核種を用いた溶液（0.1 M の CsCl と SrCl₂ の混合溶液）への浸漬試験を行った。以上を踏まえ、令和 4 年度は、前年度に浸漬したひび割れ試料について EPMA 面分析を行い、面分析の結果に基づき、ひび割れ部における浸透挙動の評価手法を検討し、検討した手法により、浸透挙動を計算した。

その結果、ひび割れ部への浸透挙動は元素によって異なり、Cs は暴露面およびひび割れ周辺の骨材を中心に多く分布していたのに対し、Sr はひび割れ内部での濃度分布に大きな変化は認められなかった。ひび割れ部の拡散係数は、Cl はひび無し部より約 2 桁、Cs は約 3 桁、Sr は約 4 桁大きく、自己拡散係数と同等になった。

(3) 実際の核種の種類・濃度を考慮した吸着/浸透挙動評価

① 低濃度領域での ¹³⁷Cs と ⁹⁰Sr の競合浸透の評価【R2-R4】（再委託先：国立研究開発法人国立環境研究所（以下、「国立環境研究所」という。）、国立大学法人北海道大学（以下、「北海道大学」という。））

令和 2 年度は、ラジオアイソトープ（Radioactive Isotope（放射性同位元素）：以下、「RI」という。）を用いた汚染水濃度レベルでの浸透実験とイメージングプレート（Imaging Plate：以下、「IP」という。）によるオートラジオグラフィを用いた浸透解析を実施するための実験環境を整備し、前研究で浸漬した試料の長期材齢のデータを得た。また、令和 3 年度以降に予定されるひび割れたコンクリート試験体への Cs と Sr の浸透を解析する準備として、より大きな試験体の加工手順を設定し、浸漬試験を実施した。令和 3 年度は、ひび割れ部への浸透挙動評価の基礎検討として、ひび割れを導入したモルタルへの ¹³⁷Cs と ⁹⁰Sr の浸透を、IP で計測する技術開発を行った。RI 試験では使用できる試料寸法に制約があることから、ひび割れを有する試料準備とその後の浸漬試験、さらに元素移動が測定できる断面の取得方法など測定に必要な技術開発を行った。以上を踏まえ、令和 4 年度は、ひび割れを導入した乾燥炭酸化 FAC コンクリートを実汚染履歴条件で

浸透を行い、材齢 7 日と材齢 60 日で浸透プロファイルを測定し、ひび割れが浸透に及ぼす影響を検討した。

ひび割れない試料で、材齢約 1 年の浸透状況を調べた結果、競合イオンの存在で、Cs、Sr ともに浸透深さが増加することが確認された。また、汚染履歴の再現（1 日海水へ浸漬後に海水と混合した汚染水へ浸漬）では、Sr は浸透が増加し、Cs の浸透は骨材への吸着によって抑制されること、濃度依存性（低濃度で浸透抑制大）があることがわかった。ひび割れを導入した試料では、ひび割れを導入したコンクリートの実汚染履歴を再現した溶液への浸漬実験では、Cs は 0.05 mm のような小さいひび割れは浸透しにくい、Sr は Cs よりもひび割れを浸透しやすく、ひび割れ幅が 0.04 mm であっても Sr は浸透することがわかった。

② α 核種のコンクリート部材への収着挙動評価【R2-R4】（再委託先：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」という。））

α 核種が汚染水と接触したコンクリート部材（床・壁面）に浸透する挙動を、実験的に調べるための長期浸漬試験を開始した。浸漬条件を検討するため、あらかじめコンクリートと汚染水の接触条件に関する情報を整理した。また、浸漬試験に用いる Pu および Am を含む浸漬液を調製するとともに、予察試験として、セメントペーストおよびエポキシ樹脂の浸漬を開始した。令和 3 年度は、前年度から開始した、セメント試料を用いた長期間の α 核種浸漬試験を継続し、表層における堆積や内部への浸透の様子を明らかにした。また、コンクリートの部材として、セメントの他に、骨材、塗装、鉄筋等を対象に挙げ、それぞれ Pu 等の α 核種を含む溶液に浸漬した。 α 核種の収着量を求め、各部材を比較し、実際の現場コンクリートを想定した際に α 核種が濃縮しやすい場所を評価した。以上を踏まえ、令和 4 年度は、ひび割れを含む FAC セメントペーストの α 核種浸漬試験として、現場の建屋を想定したひび割れを含むセメントペーストに対し、Pu 等の α 核種を含む溶液に浸漬した。また、 α 核種の浸透深さを求め、ひび割れ内への浸入と浸透の挙動を評価した。

検討の結果、浸漬液の条件については、模擬浸漬液を調製する際に pH を低下させないため、混合酸化物（MOX）を溶解して高濃度の Pu 溶解液を得て、これを希釈することにより模擬浸漬液とした。浸漬試験の結果、 α 核種である Pu や Am の浸透はセメントペースト表層から 2 mm 程度に留まり、浸漬時間を延ばしても浸透深さは変わらなかった。また、ひび割れへの液の浸入を想定した場合であっても、 α 核種の浸透深さには顕著な影響は認められなかった。

(4) 処理・処分を見据えたコンクリート廃棄物の状態検討【R4】

廃棄物処理処分において想定されるコンクリートの状態を具体的に提示することを目的に、(1)～(3)項までのシミュレーションによるひび割れの状態設定、浸透挙動解析および浸透試験の結果と、1F 建屋コンクリートの汚染状況に関する既往の報告内容を踏まえ、汚染コンクリートの試算方法について検討し、1F 建屋の地下構造物（タービンピット）で想定される廃棄物の状態について取りまとめた。

開発した RBSM 数値モデルに基づき、地震荷重後に発生するひび割れ状況を試算した結果、1 m² 角の範囲におけるひび割れ総延長は 10.03 m となった。また、試算されたひび割れ発生量と浸透予測の計算より、原子炉等規制法に基づくクリアランス基準（Cs は 100 Bq/kg、Sr は 1000 Bq/kg）を超える放射性核種濃度になる領域の物量（汚染物量）を試算した結果、コンクリート壁面 1 m² あたりの汚染物の総量は 0.082 m³（コンクリートの単位容積質量を 2,300 kg/m³ とした場合 190 kg）程度となった。

(5) 研究推進【R2-R4】

本研究を推進するにあたり、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして、研究を進めた。また、令和2年度は3回、令和3年度は4回、令和4年度は3回の全体会合を開催し、研究実施計画、研究の進捗状況、全体の結果の取りまとめ等を確認・協議し、研究成果を取りまとめた。研究は、概ね全体計画通りに進んだ。

本研究で得られた成果については、令和3年度には計5件、令和4年度には計6件の対外発表を行うとともに、論文7報を投稿した。

さらに、1F 廃炉国際フォーラムやNDF主催の技術戦略WS等、英知事業の廃棄物関連課題に係る情報交換の機会に参加するとともに、英知事業の廃棄物関連課題に係る研究課題間の情報交換として、北海道大学小崎完教授の研究チームとの会合も開催した。人材育成面では、本研究における実験への従事や研究成果の対外発表、情報交換会等の経験を通じ、研究員の技能を向上させた。

以上、3ヶ年計画の3年目である令和4年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

前年度までの成果報告書：

- ・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（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 2021-047
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-047>
- ・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（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 2022-057
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-057>

1. はじめに

1Fの事故に伴い汚染した建屋コンクリートは、将来的に解体され、放射性廃棄物となる。事故の影響を受けた1～4号機のコンクリート廃棄物量は、原子炉建屋、タービン建屋を合わせて約80万tonとも推計され^[1]、大量の発生が見込まれるコンクリート廃棄物の処理・処分方法を検討する上で、建屋内の汚染状況の推定は極めて重要である。

事故後の建屋内には複数の放射性核種（Cs、Sr、 α 核種等）が存在し、またコンクリートの部材によって放射性核種との接触状態が異なるため、放射性核種の分布や浸透状況も異なると想定される。例えば、地震によって構造的な影響を受けたコンクリート部材では、表層からの浸透の他、ひび割れに沿った侵入による部材内部の汚染や鉄筋の変質が懸念される。一方で、建屋内部の放射性核種や水分の浸透を抑制するための被覆材が施されていない部材では、コンクリート表面の中性化（大気中のCO₂による炭酸化）の影響で、汚染水と接すると汚染水からCs/Srは表層の炭酸化部位に吸着され、濃集する。すなわち、高濃度の汚染箇所は部材全体のごく表層のみで、部材によっては内部まで放射性核種が浸透していない可能性もある。建屋内除染、建屋の解体作業および廃棄物処理処分の計画を策定する際、実際の部材状態を考慮した放射性核種の浸透挙動シミュレーションによる汚染状況の推定結果より、部材別・汚染濃度別（例えば、表層1cmが高濃度汚染領域、鉄筋までのかぶりコンクリートがひび割れ影響を受けた中程度汚染領域、それ以深の大多数の限定汚染コンクリートなど）に分類し、それらの物量を定量的に予測できれば、合理的に除染・処理・処分を進めることができ、最終的な廃棄物発生量を抑制できる可能性がある。

「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の長期状態変化の定量評価」（以下、「本研究」と略す。）では、廃炉作業の設計、すなわち建屋内除染、建屋の解体作業および廃棄物処理処分の計画を策定する際に必要となる、汚染状況の推定情報に基づいた原子炉建屋内の各鉄筋コンクリート部材における汚染濃度分布定量予測データベース構築を目的とする。

なお、本研究では核燃料デブリなどにより通常運転条件を超えた温度の影響を受けた部位は対象としない。これは、通常条件にあるコンクリートでの検討をまず確実にを行い、さらに複雑な解析を要すると想定される部位は通常部位の解析結果を基にさらに検討することが妥当であると考えられるからである。また、乾燥状態にある上部工での放射性核種の移動は限定的と考えられるので、より深部への浸透が予想される、汚染水に長時間接していたタービンピット地下構造物を検討対象とした。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究の全体計画図を図 2-1 に示す。



図 2-1 全体計画図

本研究の全体像を図 2-2 に示す。平成 29 年度～令和元年度に実施された前研究^[2]では、セメント系材料における核種の浸透・収着挙動に関する基礎的な知見とデータを集積した。本研究は、前研究で得た知見に加え、実際のコンクリート部材の状態を考慮した放射性核種の長期的な浸透挙動を解明することにより、実環境と変質履歴を考慮した汚染状況を推定し、最終的には汚染鉄筋コンクリートの物量を汚染濃度別に定量的に予測することを目指す。本研究は、令和 2 年度より開始し、令和 4 年度までに核種浸透挙動の評価方法および予測手法の構築を目指す。

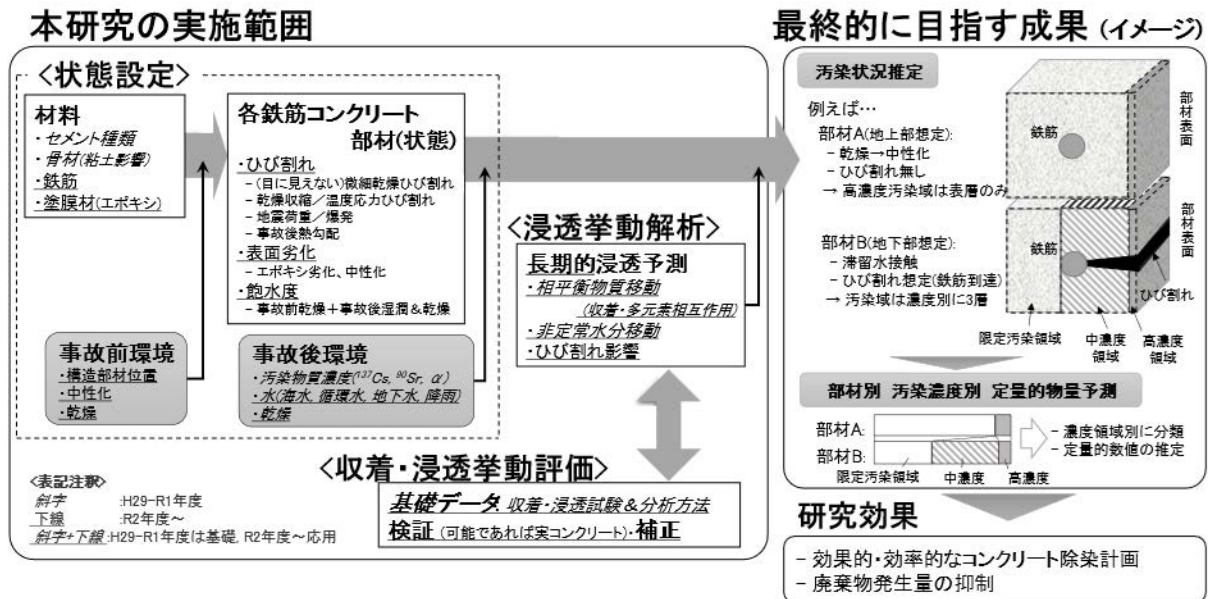


図 2-2 研究の全体像

2.2 実施体制

本研究の実施体制図を図 2-3 に示す。

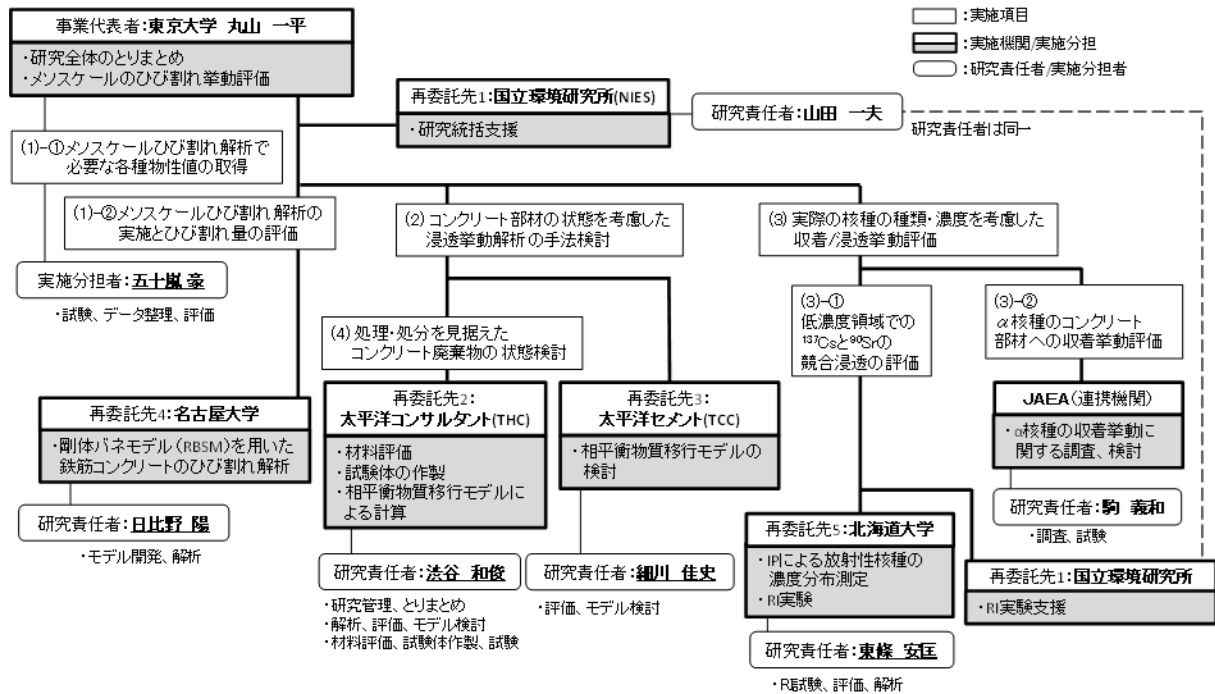


図 2-3 本研究の実施体制図

2.3 令和4年度の成果の目標および業務の実施方法

(1) 核種の長期挙動シミュレーションに向けた部材のひび割れ幅・深さと密度を含む状態設定の検討

① メソスケールひび割れ解析に必要な各種物性値の取得

東京大学と名古屋大学は、検証用のひび割れ評価実験データの整備として、乾燥、再吸水を模擬するための外部拘束を模擬した試験体に対して、東京大学は再吸水による挙動のデータを、名古屋大学は乾燥による挙動のデータを取得する。また、東京大学では、乾燥、再吸水によって生じる物性変化および挙動評価の測定を画像相関法等の手法を用いて取得する。

② メソスケールひび割れ解析の実施とひび割れ量の評価

名古屋大学は、若材齢からの乾燥に伴う挙動をRBSMにより評価する。また、接水後の挙動について、ひび割れの動的挙動（ひび割れの開閉を含む）を考慮した解析プログラムを開発し、水分浸透解析について代表的な部位について解析を実施する。

(2) コンクリート部材の状態を考慮した浸透挙動解析の手法検討

① モデルによる核種浸透シミュレーション

太平洋セメントおよび太平洋コンサルタントは、廃棄物の状態検討に反映するための、実機環境を考慮した汚染状態の定量評価を目的に、異なる条件設定（化学組成、炭酸化の状態等）におけるCs、Srの浸透深さ計算を実施する。また、令和2年度より開始した核種浸透シミュレーションに関する取りまとめとして、前年度までの検討内容を整理し、実際のコンクリート部材における長期的な核種の浸透挙動評価に必要な知見を、今後の課題も含め提示する。

② ダメージを受けたコンクリートの核種移行評価

太平洋コンサルタントは、ひび割れ部を考慮した物質移行の評価に資するデータ取得と、ひび割れを含むコンクリートの物質移行のモデル化を目的に、以下の内容を実施する。

a. 安定核種を使用した浸透試験

太平洋コンサルタントは、令和3年度までに成形し、浸漬試験に供した試験体について、EPMAによりCs、Srの浸透深さを測定し、ひび割れの状態ごとの浸透挙動を評価する。

b. 安定核種を使用した試験に基づく核種の移行評価

令和2年度の文献調査および浸漬試験の結果を踏まえ、ひび割れ部における浸透挙動のモデル化手法を検討する。また、長期の浸透挙動を計算する。

太平洋セメントは、令和3年度に引き続き、ひび割れを有するコンクリート部材の核種移行評価の手法検討において、太平洋コンサルタントによる調査および検討結果に基づく実施計画の策定に参画し、状態設定の妥当性と方向性について検討する。

(3) 実際の核種の種類・濃度を考慮した収着/浸透挙動評価

① 低濃度領域での¹³⁷Csと⁹⁰Srの競合浸透の評価

北海道大学は、ひび割れを有するコンクリートへの低濃度領域でのCsとSrの浸透評価のため、RIである¹³⁷Csと⁹⁰Srを用いた浸透実験を行い、IPを用い、定量マッピングする。

国立環境研究所は、ひび割れたコンクリートへのRI浸透実験とIPによる評価に関し北海道大学での検討の一部実験を分担するとともに支援する。

② α 核種のコンクリート部材への収着挙動評価

JAEAは、ひび割れを含むセメントの α 核種浸漬試験として、現場の建屋を想定したひび割れを含むセメントに対し、Pu等の α 核種を含む溶液に浸漬する。また、 α 核種の浸透深さを求め、ひび割れ内への浸入と浸透の挙動を評価する。

(4) 処理・処分を見据えたコンクリート廃棄物の状態検討

太平洋コンサルタントは、廃棄物処理処分において想定されるコンクリートの状態を具体的に提示することを目的に、シミュレーションによる状態設定、浸透挙動解析および浸透試験の結果と、1F建屋コンクリートの汚染状況に関する既往報告を収集/整理し、想定される廃棄物の状態について検討する。

国立環境研究所は、廃棄物の想定される状況について提案し、必要な情報を設定する支援を行う。ひび割れシミュレーション、浸透挙動解析、浸透実験の結果を総合し、コンクリート廃棄物の長期的挙動に関する検討の方向性設定、実際の汚染コンクリートの除染・廃棄に関する提言をまとめる支援を行う。

(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（CLADS）等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

3. 実施内容および成果

3.1 核種の長期挙動シミュレーションに向けた部材のひび割れ幅・深さと密度を含む状態設定の検討

3.1.1 メソスケールひび割れ解析に必要な各種物性値の取得（令和2年度～令和4年度）

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

令和2年度は、メソスケールひび割れ解析で必要となる各種物性値を取得するための試験体の作製および測定に必要となる治具類を準備するとともに、力学特性の物性評価手法に関する予備実験を実施した。

令和3年度は、試験体の乾燥、再吸水によって生じる変形やひび割れ挙動の取得を目的として、巨視的な体積変化挙動、微視的なひび割れの開閉挙動の観察に関する実験の評価を行った。また、数値解析の構成則の高度化に活用しうる異なる含水状態、温度状態の試験体の各種物性値を取得した。

(2) 令和4年度実施内容および成果

東京大学と名古屋大学は、検証用のひび割れ評価実験の整備として、乾燥、再吸水を模擬するための外部拘束を模擬した試験体に対して、東京大学は再吸水による挙動のデータを、名古屋大学は乾燥による挙動のデータを取得した。また、東京大学では、乾燥、再吸水によって生じる物性変化および挙動評価の測定を画像相関法等の手法を用いて取得した。

コンクリート試験体について、乾燥後、また、再吸水後の物性値を取得するとともに、画像相関法を用いて吸水課程中のひずみの変化を取得した。さらに、X線ラジオグラフィにより水分の移動状態についても測定した。

① 乾燥・再吸水後の物性に関する検討

1) 実験概要

a) 使用材料、調合および供試体の作製

使用材料（表 3-1）、供試体に用いたセメントペーストおよびモルタルの調合（表 3-2）を示す。練り混ぜは、自転公転ミキサー（THINKY 社あわとり練太郎）を用いた。まず粉体と水を $W/C=0.4$ になるよう調合し、攪拌モードで 800 rpm で 90 秒間の攪拌を行った。後に残りの水を入れ、90 秒の攪拌を行った。底に溜まるセメント粉末をスプーンでこそぎ取ったのち、砂を入れ 3 分間の攪拌を行った。練り混ぜ後はブリーディングを軽減するため、表面に水が生じなくなるまで 5～6 時間練り置きし、練り置き中、30 分おきに練り返しを行った後に型枠に打ち込み、封緘を施した。打ち込みから 3 日後に脱型した。長さ変化取得用の供試体は、長さ 100 mm、幅 13 mm、厚さ 3 mm に成形、質量変化または超音波取得用の供試体は、13 mm 四方、厚さ 3 mm に成形し、20 °C の恒温室で 28 日間の水養生とした。供試体の表記は、「OPC—骨材（石灰石砕砂：LS、川砂：SS、細骨材なし（セメントペースト）（：Pa）」とした。

表 3-1 使用材料

材料	表記	備考
セメント	OPC	普通ポルトランドセメント
細骨材	LS	石灰石砕砂
	SS	川砂 (阿武隈川)
混和材	AE	山宗化学社製のヴィンソルを 100 倍希釈した希釈液

表 3-2 セメントペーストおよびモルタルの調合

調合名	W/P (%)	S/P (%)	4L の計量値 (g)					
			W	P [*]		LS	SS	AE
				OPC	FA			
OPC-LS	0.55	2.39	1136	2064	-	4936	-	53.3
OPC-SS						-	4936	16.0
OPC-Pa	0.55	2.39	1136	2064	-	-	-	53.3

※：P (粉体)。二水石膏を添加し、トータル SO₃ 量を 2.5% に調整したもの

b) 供試体の乾燥および再吸水

乾燥過程は、40 °C の恒温インキュベータを用い、経時的に長さ変化が 10⁻⁵/日、質量変化が 10⁻⁴/日を恒量と判定して、その時点から 40 °C 環境の乾燥収縮量および質量含水率とした。また、恒量時点において超音波試験を実施し、動ポアソン比、動弾性係数を取得した。

再吸水過程は、20 °C の恒温室において、真水 (工業用精製水) または、海水 (人工海水塩による模擬濃度溶液) を用い、長さ変化は、3 時間まで高精度接触式デジタルセンサ (KEYENCE 社 GT2-70) の連続測定、質量変化は、1 分間減圧吸水を行い、その後は大気圧で浸漬中に、定期的に取り出し測定した。加えて、一昼夜減圧吸水を行い、再吸水による恒量値の参考とした。超音波試験は、再吸水から 5 分と 28 日、減圧吸水 1 日の時点で実施した。

c) 超音波試験による弾性係数の取得

超音波試験は、超音波厚さ計 (OLYMPUS 社 38DL PLUS)、探傷端子 (縦波 M110-RM、横波 V156-RM)、接触媒質 (ソニコート SH-W25) を用い、縦波および横波の伝播速度を測定した。測定は、28 日間の水中養生後の飽水状態、恒量と判定した 40 °C 乾燥状態、再吸水から浸漬 5 分後、浸漬 28 日後、1 日間の減圧吸水後にて実施した。

見かけの密度は、飽水状態の密度および質量変化から各乾燥状態の値を算出した。

2) 実験結果

a) 長さ変化および質量変化

40 °C 乾燥で恒量状態で平衡となった供試体に海水または真水を浸漬させ、膨潤試験を行った結果を図 3-1 および図 3-2 に示す。ひずみは、水中養生から乾燥を開始する時点での長さを基準長として整理した。再吸水の恒量値の参考にするために 1 日間の減圧下で一昼夜浸漬させた後の値を 10⁷ 秒後 (約 4 ヶ月後) にプロットしている。調合によらず、海水を再吸水した場合は、真水に比べて膨潤量が大きくなる傾向が確認された。

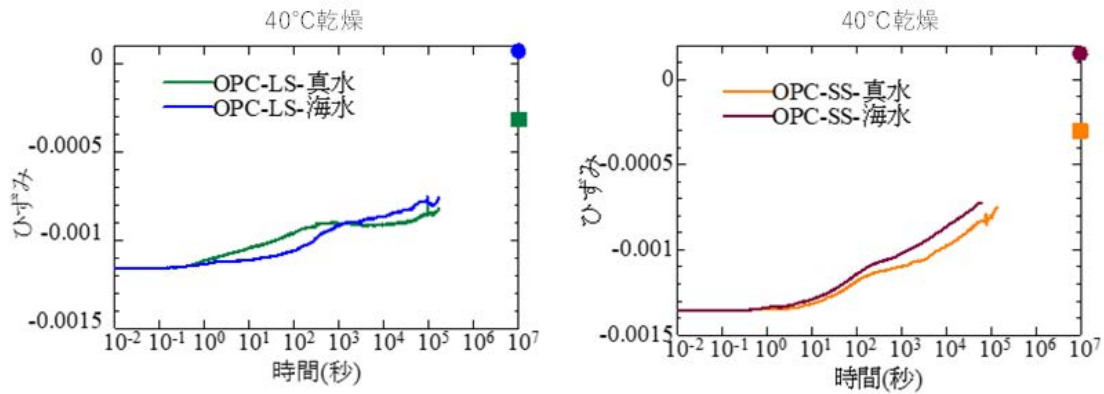


図 3-1 モルタルの膨潤試験結果

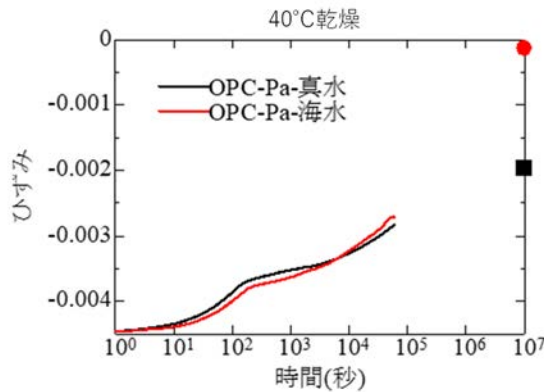


図 3-2 セメントペーストの膨潤試験結果

40 °C 乾燥で恒量となった供試体に海水または真水を浸漬させ、質量変化の経時変化を取得した結果を図 3-3 および図 3-4 に示す。再吸水の恒量値の参考にするために 1 日間の減圧下で一昼夜浸漬させた後の値を 10⁴ 秒後（約 3 時間後）にプロットしている。調査によらず、海水を再吸水した場合は、真水に比べて質量が大きくなる傾向が確認された。

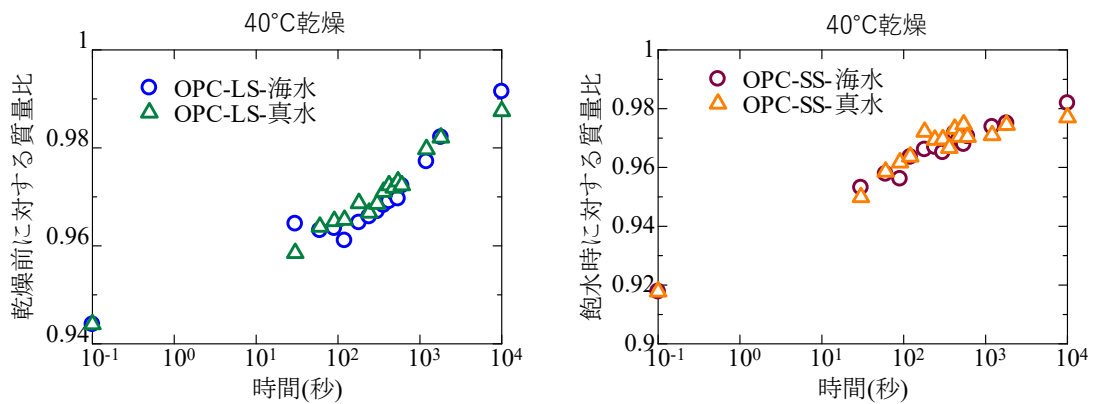


図 3-3 モルタルの再吸水挙動

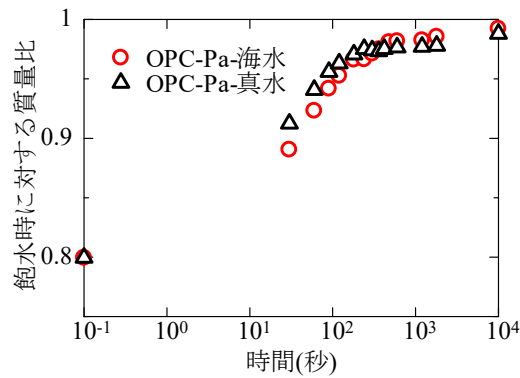


図 3-4 セメントペーストの再吸水挙動

b) 動弾性係数および動ポアソン比の変化

動弾性係数および動ポアソン比の変化を図 3-5 に示す。40 °C 乾燥によって低下した動弾性係数および動ポアソン比は、再吸水に伴って、経時的に回復する傾向が確認された。また、開始 5 分においては真水の動弾性係数が海水を上回っており、長期間の浸漬後、最終的には海水が上回ることが確認され、質量変化試験および膨潤試験と同様の傾向が確認された。モルタルの動弾性係数は、本検討の範囲内では、乾燥前の値まで回復しなかったが、モルタルの動ポアソン比やセメントペーストの動弾性係数および動ポアソン比は、乾燥前の値まで回復することが確認された。

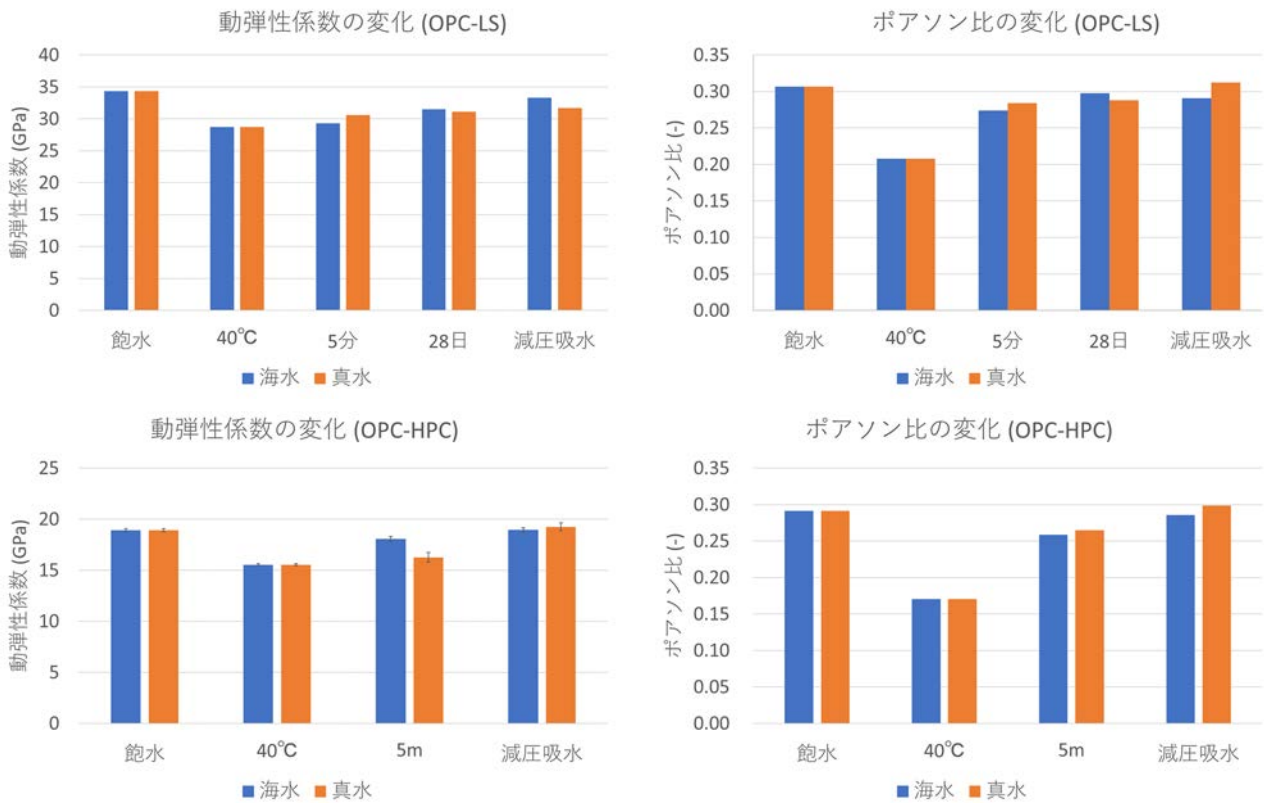


図 3-5 動弾性係数および動ポアソン比の変化

② 画像相関法を用いた吸水過程のひずみ変化に関する検討

1) 実験概要

a) 使用材料、調合および供試体の作製

表 3-3 に実験に使用したコンクリートの使用材料を、表 3-4 に調合およびフレッシュ性状を示している。粗骨材は表乾で、細骨材は表面水を持たせて表面水率補正した。練り混ぜは容量 100 リットルのインバーター二軸強制攪拌型コンクリートミキサーを用いて 60 リットルを練った。その後、粗骨材とセメントを全量、細骨材を半量、セメント全量を投入して 15 秒攪拌し、かき落として 90 秒攪拌して排出した後、フレッシュ試験を実施した。その後、供試体を作製し、余盛りを行い、やや水がある状態で木ゴテをかけ、始発前に金鋺仕上げを実施した。ビニール製ラップをかけてその上から濡れウェスを施し、供試体を集めて上部にブルーシートをかけて注水 24 時間後に脱形し、28 日間標準水中養生した。供試体は、100×190×10 mm に切り出した。100×190 mm の両面を、400 メッシュの研磨粉を用いて湿式研磨した後、白色の不透水性の二液反応硬化型エポキシ樹脂系下塗材（主材：キクスイプライマー-EPW、硬化剤：キクスイプライマー-EPW 硬化剤、菊水化学工業株式会社）を塗布した後、画像相関法を適用する画像撮影面に対して、黒色の超微粒子グラファイト配合黒染めスプレーにより白黒のスペックルパターンを作製した。

表 3-3 使用材料

分類	記号	概要、主成分、物性値
水	W	上水道（茨城県つくば市）
セメント	C	普通ポルトランドセメント（宇部三菱セメント社製）， 密度 3.16g/cm ³
細骨材	S	山砂（静岡県掛川市），表乾密度：2.58g/cm ³ ， 吸水率：1.80%，F.M.：2.72
粗骨材	G	硬質砂岩碎石（東京都青梅市），表乾密度：2.64g/cm ³ ， 吸水率：0.69%，実積率：59.1%
化学混和剤	Ad	AE 減水剤 標準形 I 種 フローリック SV10 （リグニンスルホン酸およびオキシカルボン酸系）
	AE	フローリック AE-4（樹脂酸系界面活性剤）

表 3-4 調合およびフレッシュ性状

かさ容積 (m ³ /m ³)	C.T. (°C)	Slump (cm)	Slump Flow (mm)	Air (%)	設計空気量 (%)	W/C (%)	s/a (%)	(kg/m ³)					
								W	C	S	G	Ad	AE agent
0.618	20	13.5	257×245	5.0	4.5	55.0	47.5	165	300	851	964	2.25	0.0045

b) 吸水過程の画像相関法撮影

吸水によるひずみ変化を画像相関法で定量するため、スペックルパターンを施した供試体を金属棒に接着させて拘束させた状態で、24 時間以上膨潤させた上で 48 時間の 105 °C での乾燥を行い、その後に水面に供試体側面（紙面下部）を浸して 24 時間の吸水実験を行った。

2) 実験結果

画像相関を用いて再吸水過程のひずみ変化を図 3-6 に示す。図に示されるように、乾燥後（浸漬開始前）を基準とした主ひずみ分布を見ると、吸水に伴って、粗骨材を迂回するようにモルタル部が膨潤している傾向が確認された。

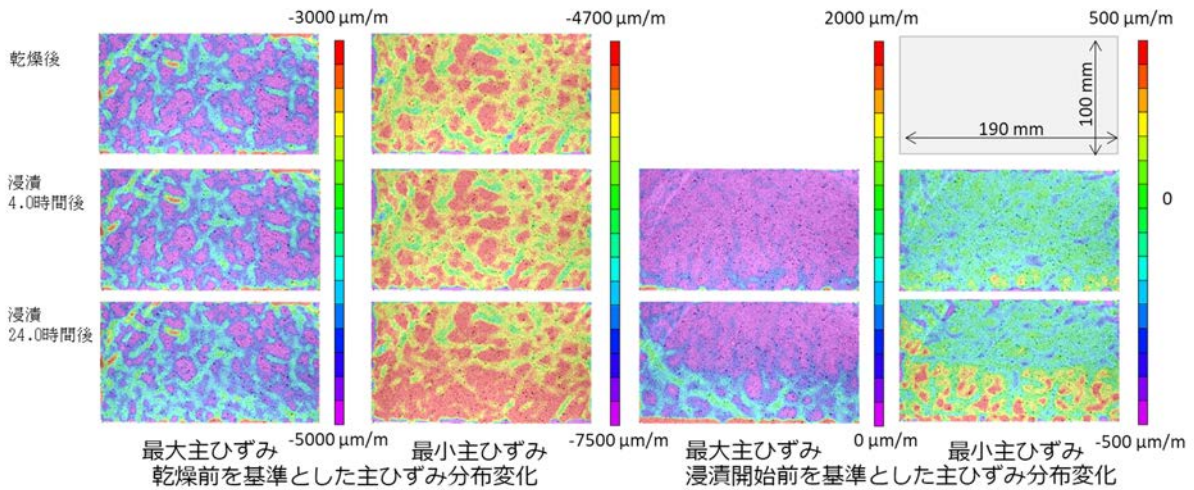


図 3-6 画像相関法を用いた再吸水過程のひずみ変化

③ X線ラジオグラフィによる水分の移動状態に関する検討

1) 実験概要

a) 使用材料、調合および乾燥・吸水方法

表 3-5 にコンクリート調合およびフレッシュ性状を示す。本検討では水セメント比 0.50 のコンクリートを用いた。粗骨材は青梅産硬質砂岩を、細骨材は掛川産陸砂を使用した。試験体の寸法は約 30(W)×25(D)×60(H) mm である。試験体の乾燥過程および吸水過程の質量測定、X線 CR 撮影、光学カメラ撮影を行った。乾燥過程は、D-dry 法を用い、1.5、12、24、48、72、120 時間で試験体を取り出し計測を行った。吸水過程は、乾燥過程の計測直後から底面からの 1 面自然吸水を行い、0.5、1.5、3、6、9、12、18、24、48、72、120、168 時間で計測を行った。

表 3-5 コンクリート調合およびフレッシュ性状

W/C	s/a (%)	単位量 (kg/m ³)				Ad (%cem)	AE (%cem)	目標空気量 (%)	目標スランプ (cm)	空気量 (%)	スランプ (cm)
		W	C	S	G						
0.50	46.8	183	366	786	925	0.75	0.01	6.7	18.0	4.9	20.5

b) X線 CR 撮影と水分移動の可視化と含水率の評価

X線 CR の撮影には、マイクロフォーカス X線 CT スキャナを用いた。管電圧を 90 kV、管電流を 110 μA、SDD (X線源から検出器までの距離) を 500 mm、SRD (X線焦点から試験体までの距離) を 300 mm、送りライン数を 5 line、アベレージ数を 16 と設定した。

c) 画像相関画像の取得と水分移動によるひずみの評価

撮影には、USB カメラ (FLIR 社 Grasshopper3、モデル GS3-U3-51S5M-C、画素数 5.0 MP、

フレームレート 75 FPS、イメージセンサーSonyIMX250、Mono)、レンズ (Computar 社 1.1 型サイズカメラ用 12 メガピクセルレンズ、モデル V3528-MPY、f=35 mm、F2.8) を用いた。得られた画像は 2448×2048 pixels、256 濃度段階のグレースケールで、1pixel は約 0.028 mm であった。

2) 実験結果

a) X線ラジオグラフィによる水分の移動状態

吸水によるグレースケールの差分を図 3-7 に示す。時間が経つにつれ、水が浸透する様子が確認できた。図 3-8 に天秤で測った質量変化とグレースケールから算出した試験体の質量変化の関係を示す。水分による質量変化とグレースケールから算出した質量変化が高い線形性があることが確認できた。グレースケールからの吸水高さの経時変化を図 3-9 に示す。経時変化に伴い、吸水高さの増加率が緩くなっており、乾燥条件は異なるが、既報における挙動と一致することが確認された。

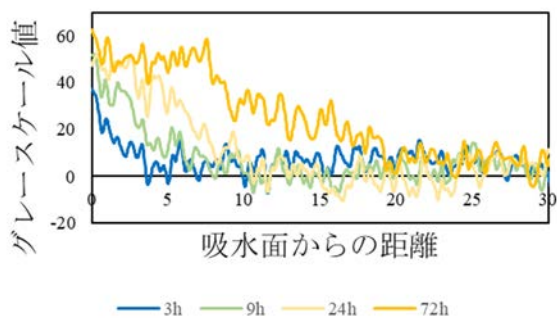


図 3-7 吸水時のグレースケールの変化

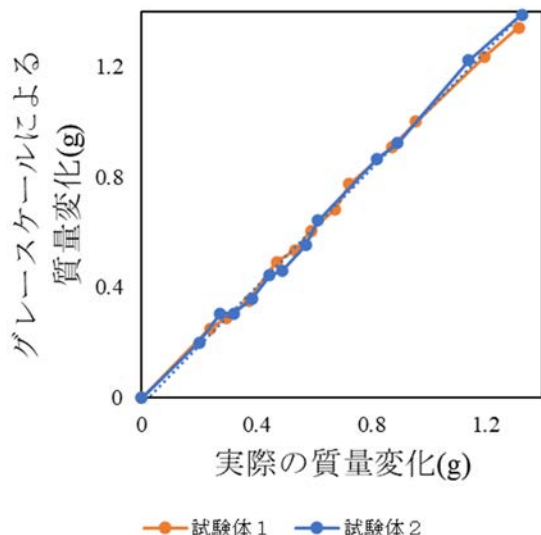


図 3-8 実際の質量変化量とグレースケールによる質量変化量の関係

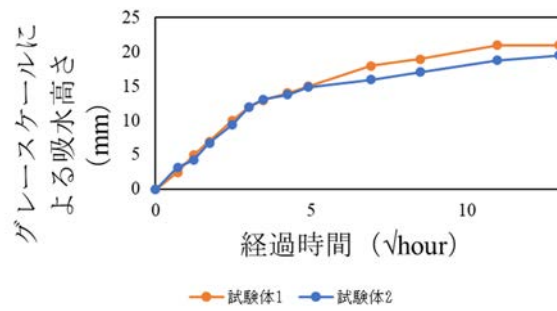


図 3-9 吸水高さの経時変化

b) 画像相関法を用いた吸水過程のひずみ変化

画像相関法による乾燥・吸水過程におけるひずみの分布を図 3-10 に示す。乾燥 5 日後の画像を見ると、試験体 1 と 2 どちらも、赤い領域の粗骨材と紫の領域のモルタルの収縮が確認できる。乾燥前を基準としたひずみ分布では吸水により乾燥収縮ひずみが回復する傾向を確認できる。

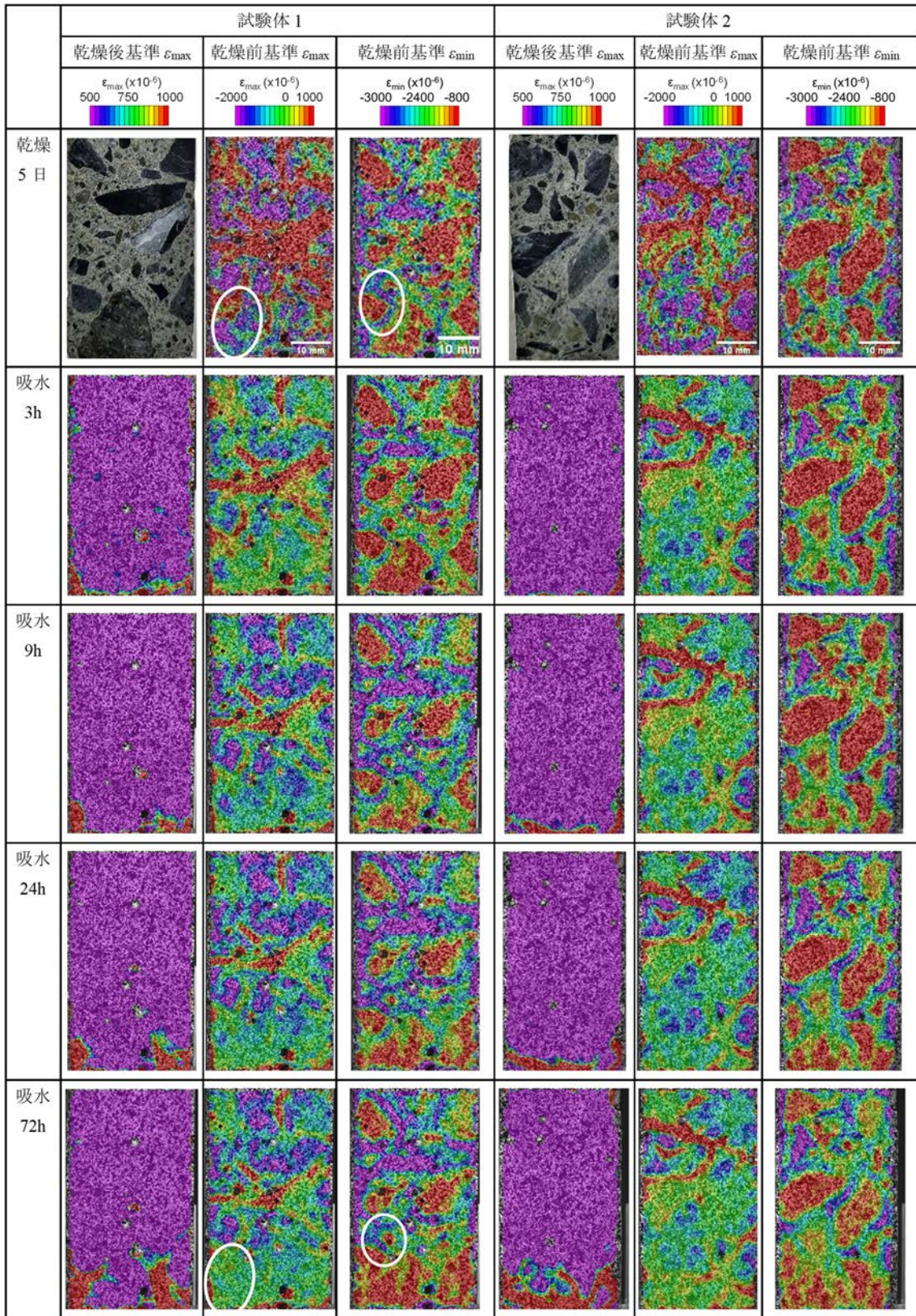


図 3-10 乾燥・吸水に伴う主ひずみ分布
 (左：乾燥後基準 ϵ_{\max} 、中：乾燥前基準 ϵ_{\max} 、右：乾燥前基準 ϵ_{\min} 、負の値が膨張、
 正の値が収縮)

c) X線ラジオグラフィによる水分分布と画像相関法によるひずみ分布の関係

図 3-11 に吸水に伴うグレースケールによる吸水高さとの画像相関による吸水高さの関係を示す。画像相関からの吸水高さは最大主ひずみが $600 \mu\text{m/m}$ 以上になる最も高い点を基準にしたものである。図に示されるように、再吸水過程において、X線ラジオグラフィから得られる水分のフロントと画像相関法から得られる最大主ひずみのフロントは対応していることが確認できる。

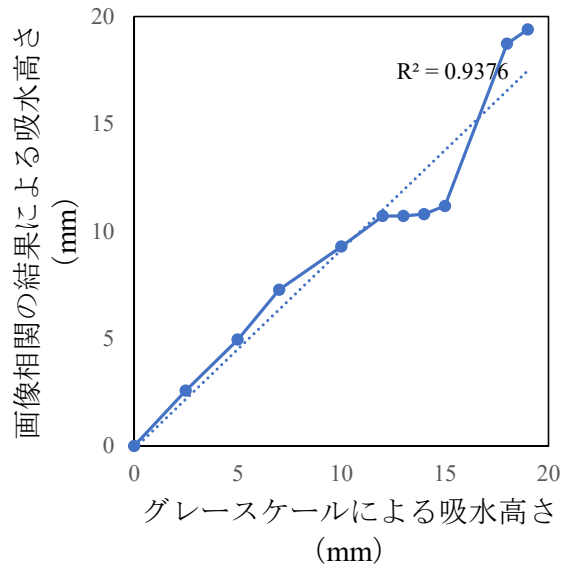


図 3-11 吸水中のひずみと水分のフロントの比較

(3) まとめ

コンクリート試験体について、乾燥後、また、再吸水後の物性値を取得するとともに、画像相関法を用いて吸水過程中のひずみの変化を取得した。また、X線ラジオグラフィにより水分の移動状態についても測定した。

その結果、乾燥に伴う乾燥収縮、質量減少、剛性低下が、再吸水に伴い回復する傾向を確認した。再吸水過程において、画像相関法を用いてひずみの分布が変化すること、X線ラジオグラフィにより水分の分布が変化すること、ひずみ分布と水分分布の比較により、再吸水のフロントが対応する傾向を確認した。

3.1.2 メソスケールひび割れ解析の実施とひび割れ量の評価（令和2年度～令和4年度）

（再委託先：名古屋大学）

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

本研究は、原子力発電所の鉄筋コンクリート（RC）造の建物の劣化を調査するための数値解析手法を開発することを目的としている。一般的な環境下で原子力発電所の建屋が生涯にわたって劣化する現象は、ひび割れ挙動とコンクリート中の物質移動過程（熱と水分）の連成によって再現されている。

令和3年度は、原子力発電所建屋の巨大RC壁（厚さ大）の時間依存性ひび割れ挙動を調査し、早期からの体積変化と長期乾燥過程による時間依存性ひび割れ挙動を合理的に再現することが確認された。しかし、参考モデルは簡略化されたものである。現実的な劣化（ひび割れ挙動）を表現するためには、さらに発展させなければならない点がいくつかある。マッシュコンクリートのひび割れ挙動に関する検討とは別に、1F事故後に氾濫した海水に浸かった乾燥コンクリート構造物の再濡れ過程を再現するために、コンクリートの液水摂取のシミュレーションを検討した。しかし、数値モデルは、コンクリートの再吸水過程における特徴的な液体の取り込みをすべて再現することは不可能であった。このため、セメント材料に見られる異常な吸水挙動や、再吸水時の膨張が既存ひび割れに与える影響などを考慮した数値モデルの開発が必要である。

(2) 令和4年度実施内容および成果

本年度は、若材齢からの乾燥に伴う挙動をRBSMにより評価した。また、接水後の挙動について、ひび割れの動的挙動（ひび割れの開閉を含む）を考慮した解析プログラムを開発し、水分浸透解析について代表的な部位について解析を実施した。

解析において乾燥過程で、モルタルと骨材の体積変化の違いにより微細ひび割れが発生する様子、再吸水過程において、液状水の浸透、マトリクスの吸水膨潤、膨潤に伴いひび割れが閉塞する様子を表現できる数値解析結果を得た。

また、原子炉建屋の中にある大断面の鉄筋コンクリート壁（以下、「RC壁」という。）の水和発熱による初期応力、乾燥収縮および地震時の面内水平加力による荷重変形関係ならびにひび割れ進展挙動について解析した。

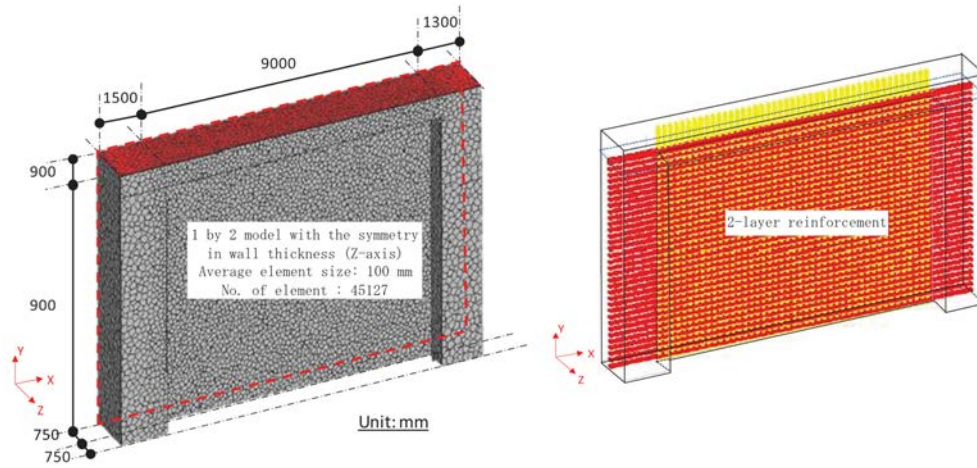
① 原子力発電所建屋の大規模RC壁構造における初期からの長期使用時の時間依存性ひび割れ解析

本研究では、計算対象となる構造モデルを見直し、変質過程（乾燥に伴う物性の変化、乾燥収縮ひび割れ）の数値的検討を行った。また、計算の現実性を向上させるために、追加的な数値条件を導入した。変質の進行は、前述の修正を加えて再度検討した。RC壁の劣化を再現した後、基準供試体の上部に繰返し横変形を与え、耐震性能を検討した。また、地震動時の荷重-変形曲線やひび割れ伝播状況を調査し、歴史的劣化が巨大RC壁構造物の構造性能に与える影響を明らかにした。

1) 構造モデルの見直し

原子力発電所建屋の巨大なRC壁の現実的な劣化過程を表現するために、基準供試体のメッシュを原子力発電所の原子炉建屋の内壁に沿うように修正した。内壁は隣接するRC梁や柱によって拘束されているため、現実的な拘束条件を提供するために、構造モデルは支持体と隣接するRC部材のボロノイ図を用いて要素分割した。2層の鉄筋は前モデルと同様に割

り当てたが、各鉄筋の端部は隣接する RC 部材まで延長した。計算コストの削減のため、肉厚中心に沿った対称性を持つハーフモデルを導入した。基準供試体の形状および鉄筋の配置を図 3-12 に示す。



Material properties		Arrangement of Reinforced bar				
Compressive strength of concrete at 28 days, MPa	34.6	Layer	Arrangement direction	Cross-section area (mm ²)	Spacing (mm)	Distance from concrete surface (mm)
Tensile Strength of concrete at 28 days, MPa	3.5					
Young' s Modulus of concrete at 28 days, MPa	28,000	1 st	Horizontal	1140 (D38)	200	70
Thermal Expansion Coefficient, $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$	1.0	1 st	Vertical			110
Drying shrinkage coefficient, $\times 10^{-6}/\text{S}$	1,800	2 nd	Horizontal			170
Young' s Modulus of reinforced bar, MPa	200,000	2 nd	Vertical			210
Yield Strength of reinforced bar, MPa	295					

図 3-12 基準供試体の形状および鉄筋の配置

2) 施工過程検討

また、本解析では、施工過程を適切に考慮した。予備検討から、拘束された体積変化に関するひび割れ挙動は、内部拘束条件と外部拘束条件に支配されている。構造モデルを、コンクリートが一度に打設されたと仮定すると拘束影響は過大に評価される。現実的な条件では、壁のコンクリート打設時期には外的拘束は存在しないので、これを再現するために壁と隣接する柱と一緒に打設し、その後、上部の梁を打設することを模擬して解析を行った。数値的には、以下のように具体的な条件によって施工の順序を検討した。

a) 柱および壁の打設

- ・ 上部梁の変形を下部構造から分離するために、上部梁と他の部材の界面に非常に低いバネ剛性（ヤング率）を設定する。
- ・ 上部梁の打設時のコンクリートの体積変化（質量輸送、クリープ挙動、自己収縮）を考慮しない。
- ・ 上部梁の境界条件は、当初は完全自由とし、上部構造を表現するために境界条件を完全固定に変更し、地震動を支配する横変位を割り当てる。

b) 梁の打設（柱および壁打設後 30 日）

- ・ 水和による発熱を考慮する。
- ・ 硬化処理による機械的性質の発現を考慮する。

c) 梁硬化後の挙動

- ・ 上部構造からの拘束を表現するため、上部支持板の境界条件を完全固定に変更する。

3) 数値検討のための追加事項

本研究では、関連現象の数値モデルは令和 3 年度と同様に実施した。各数値モデルの詳細については、令和 3 年度および過去の研究^[3,4,5,6,7]に記載されている通りである。各数値モデルの詳細については、令和 3 年度および既往研究に記載されているが、本研究のために追加修正した内容を以下に示す。

a) 数値計算のための境界条件

今回の数値解析では、RC 部材に隣接する固体のモデル化について、境界条件を見直した。図 3-13 は、現在のリファレンスモデルにおいて、物質移動と構造解析のために割り当てられた境界条件を示している。なお、RC 梁・柱についても、RC 壁と同様に、関連する現象（体積変化、硬化・乾燥過程による MPC、クリープ、自己収縮など）が考慮されていることに留意されたい。水分はコンクリートの乾燥収縮に大きく影響するため、壁厚の水分分布は実験データと同じくするように設定した^[8]。

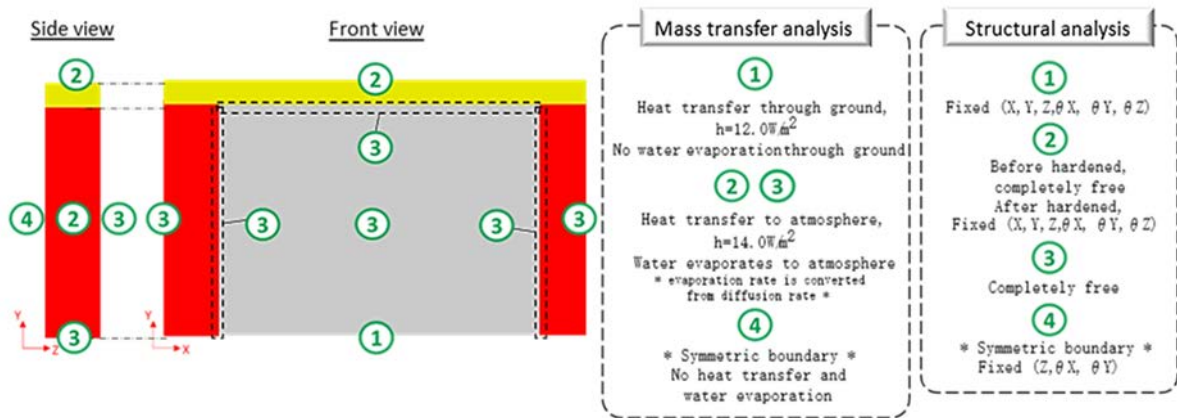


図 3-13 物質移動と構造解析のための境界条件

b) 数値的な検討のための数値フロー

本研究で実施した数値フローは、令和3年度と同様である。ただし、RC 構造物の変質過程を再現した上で耐震性能を評価することとした。今回の数値検討では、築年数が浅い段階から60年の運転期間を想定して計算を行い、RC 構造の地震動を模擬した周期的な載荷条件を割り当てた。計算ステップは合計2,778ステップである。このうち778ステップは、60年までの劣化過程を計算したものである。計算時間を最小化するため、1時間から3ヶ月まで段階的に時間感覚を増加させた。後の2,000ステップは、RC 構造の耐震性能を評価するためのステップである。1/1600、1/800、1/400（構造物の高さに対する横方向の変位の割合）の地震動を支配するために、0.056 mmの変位増分が割り当てられた。

4) 解析結果

a) 初期から長期にわたる大規模 RC 構造物の劣化の全過程

大規模な RC 構造物の変質を、初期から長期にわたる拘束された体積変化に関するひび割れの伝播に基づいて調査した。温度、水分、コンクリート応力（水平・垂直応力）、2次元ひび割れ断面の分布をモニターし、ひび割れがどのように発生・進展していくかを明らかにした。図 3-14 は、劣化過程を温度ひび割れ、乾燥収縮ひび割れの発生として解明した数値結果である。

初期の経年変化では、拘束された体積変化に関する温度ひび割れは、拘束条件が付与された下部から発生し、局所的な貫通ひび割れを形成して伝播する。ひび割れ分布から、構造物の長さ方向に複数の熱亀裂が発生していることがわかる。ひび割れの平均間隔は1.5 m、ひび割れの最大幅は中央と表面でそれぞれ0.34 mm、0.14 mmであった。本研究では、柱などの拘束体が壁と一緒に配置されているため、壁と柱の界面での温度ひび割れは消失している。しかし、壁や柱の拘束効果により、上部梁と他の部材の界面では温度ひび割れが発生することを確認した。長期間の供用では、水分の蒸発に伴うコンクリートの乾燥収縮により、浅いひび割れの発生だけでなく、既存のひび割れが伝播して拡大することが確認された。壁面下部から発生した温度ひび割れは、柱に向かう斜めひび割れ、上梁に向かう垂直ひび割れへと発展していく。平均ひび割れ間隔に大きな変化はないが、最大ひび割れ幅は壁面中央部で0.61 mm、表面部で0.19 mmと大きくなっている。令和3年度との比較では、長期運転中の劣化過程はほぼ同じである。これは、すべての RC 部材がすでに硬化し、他の RC 部材に対す

る拘束体として機能しているため、モデルの改訂や施工プロセスの検討は解析結果に大きくは影響がないことを意味している。

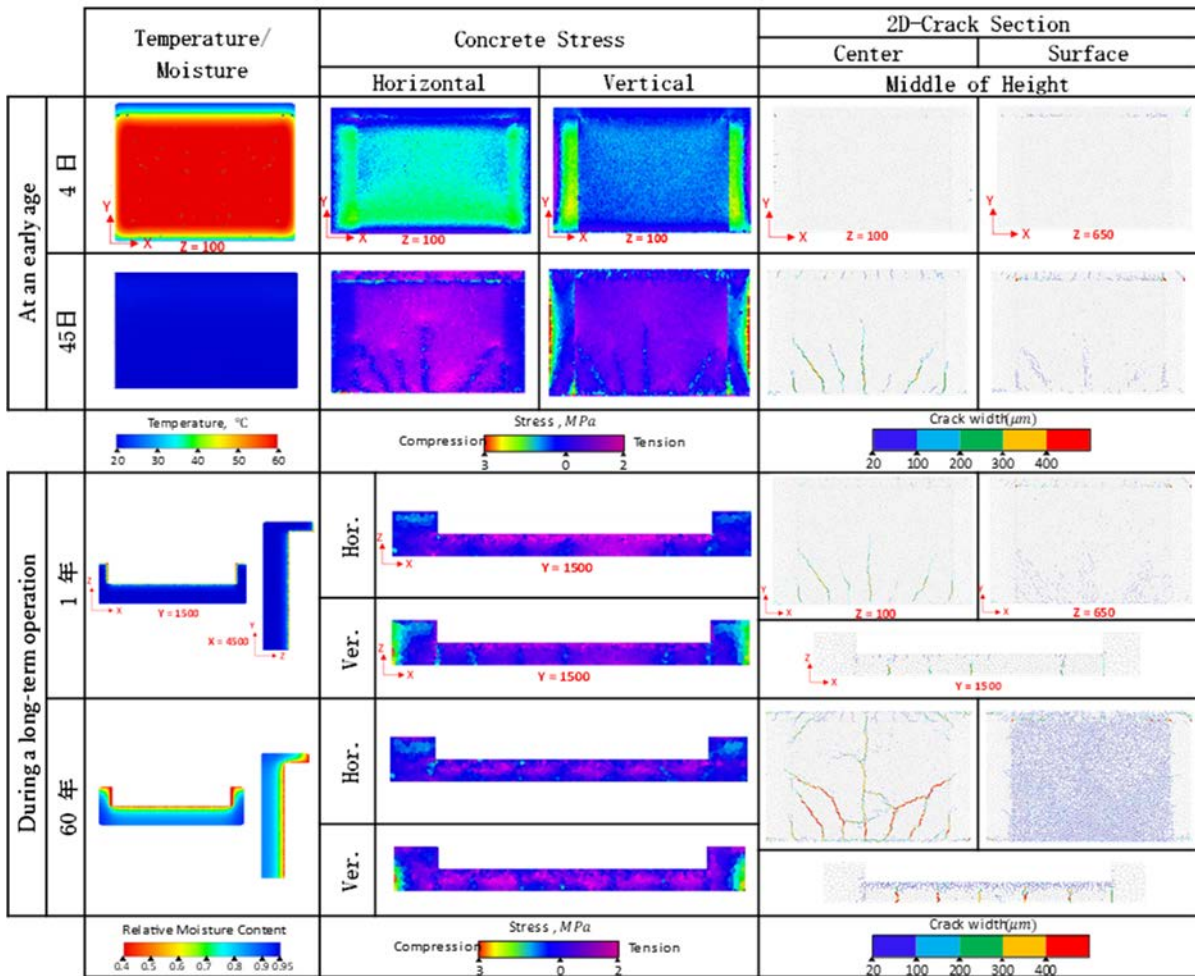


図 3-14 早期から長期運用に向けた劣化の状況

b) 高経年化した大規模 RC 構造物の耐震性能に及ぼす経年変化の影響

RC 造の大規模構造物の耐震性能について、健全なケースと初期の温度応力と乾燥収縮を考慮したケース（高経年化ケース）を比較検討した。健全なケースと高経年化ケースについて、1/1600、1/800、1/400 の地震動を支配するために周期的な横変位を载荷した。また、RC 構造物の耐震性能を規定する重要な特性（初期剛性、ピーク荷重、横変位、ピーク荷重時の構造ひび割れなど）を検討するために、単調载荷を割り当てた。図 3-15 は、地震荷重下での荷重変形とコンクリート応力・ひび割れの分布の比較を示したものである。

水平荷重载荷条件下での荷重-変形関係の比較から、高経年化ケースにおいて初期剛性の低下とピーク荷重の減少を確認した。また、熱履歴および乾燥による応力の蓄積とひび割れ発生ならびに乾燥に伴う物性変化により、初期剛性は 55.6 %、ピーク荷重は 89.3 % となった。また、ピーク時の横変位は劣化に伴い 27.4 mm から 29.9 mm に増加し、ピーク点から計算した全体の平均剛性は 81.8 % に減少した。

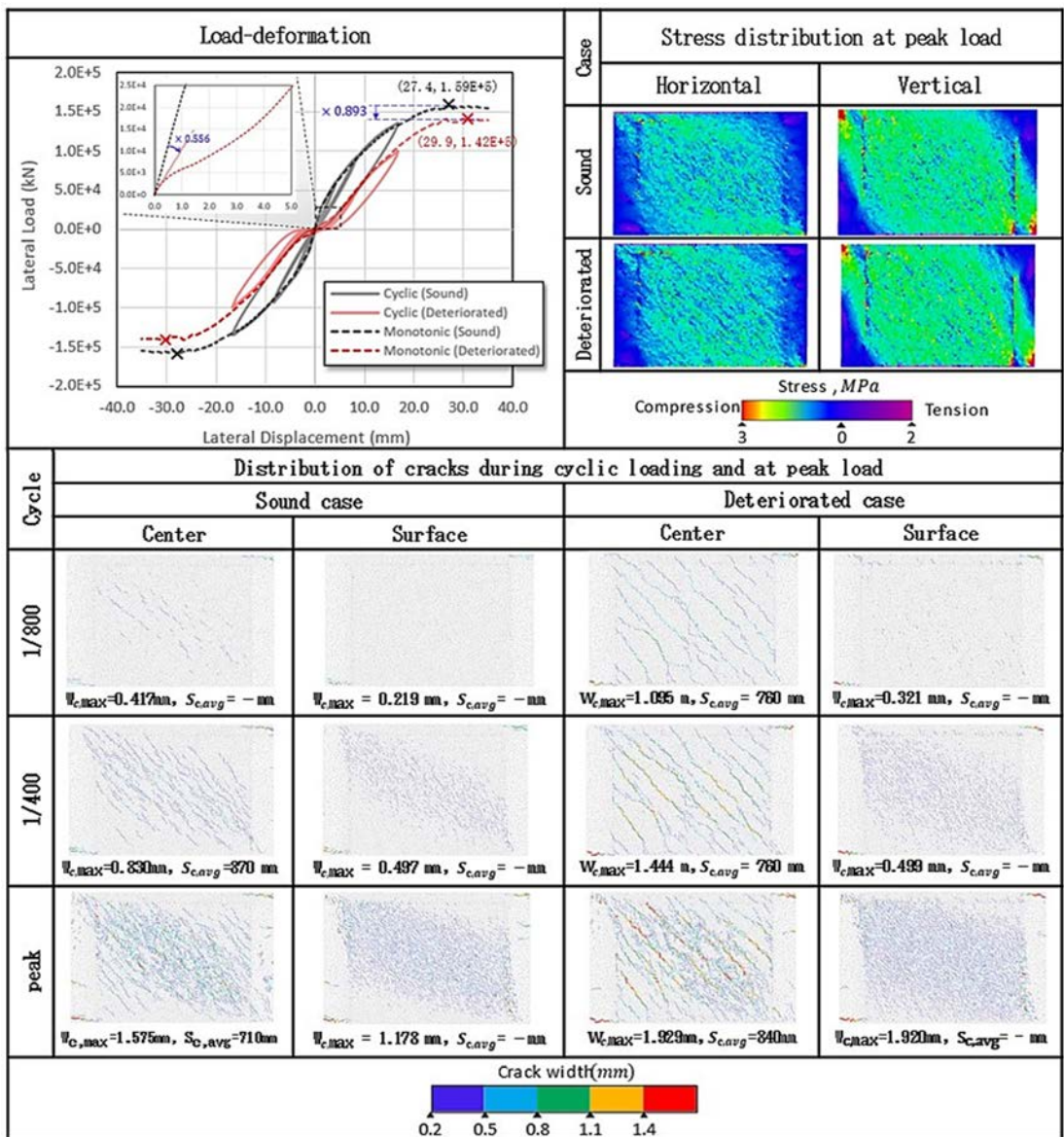


図 3-15 地震荷重下における構造物のひび割れからの劣化

コンクリート応力とひび割れの分布について、RC 壁の隅部に水平方向と垂直方向の圧縮応力が発生していることが確認された。その結果、応力ベクトルとして、RC 構造物の斜め方向に発生する構造ひび割れが、主応力方向に壁表面に観察された。健全なケースと高経年化ケースを比較すると、高経年化ケースでは、構造ひび割れが最初に発生し、最大ひび割れ幅が大きく、RC 構造全体にひび割れが分布した。健全なケースよりもひび割れの量(幅、本数)はかなり多いことがわかる。ピーク時のひび割れ幅は、健全ケースで中央が 1.75 mm、表面が 1.28 mm である。高経年化ケースでは、中央と表面のひび割れ幅はそれぞれ 1.96 mm と 1.10 mm である。また、健全なケースと高経年化ケースのひび割れの平均間隔は、それぞれ 670 mm、630 mm であった。両ケースとも中央部に局所的なひび割れが観察されるが、高経年化ケースの方が視認しやすい。

② コンクリートひび割れにおける吸水特性

本年度は、セメント系材料への吸水シミュレーションのための数値モデルの開発をさらに進めた。その後、コンクリートのひび割れを介した液水の浸透過程を、再湿潤後のコンクリートの膨張を考慮することにより、ひび割れたコンクリートの液水浸透挙動と既存ひび割れの挙動を検討した。

1) セメント系材料における吸水挙動

セメント系材料における吸水の異常な挙動、すなわち乾燥過程と吸水過程で異なる相対湿度と吸水率の関係を示す吸・脱水曲線のヒステリシスは、細孔構造における水分の脱着・吸着の際の微細構造変化の結果である。各細孔径の拡散速度が異なるため、細孔径が交互に変化することで、吸水特性（浸透深さ、累積吸水量と時間の平方根の関係）の線形性は、時間と経過に伴って崩れていく。令和3年度には、ケイ酸カルシウム水和物の挙動に基づき、動的組織変化モデルを実装した。このモデルは、吸着過程における微細構造データに関する 1H NMR Relaxometry 研究に基づいて提案された^[9,10]。数値解析の結果、コンクリートへの吸水時の浸透深さの変化を合理的に再現することができたが、その他の特性（累積吸水量、吸水過程での水分分布など）は実験結果とは異なった^[11]。

本年度は、このような特性を再現するために、動的微細構造モデルをさらに発展させた。実験では、コンクリート供試体を乾燥させると必然的にコンクリート内部に微細なひび割れが発生し、その微細なひび割れによって急激な吸水が生じることが確認された。このことから、令和3年度再現できなかった吸水量（吸着面付近の水分分布の急激な増加など）は、微細ひび割れが吸水量に与える影響を考慮することで再現できると考えられる。そこで、微細ひび割れが液水吸収過程に及ぼす影響を明らかにするため、トラスネットワークモデルの中に、コンクリートのひび割れを介した液水吸収を導入した。液水吸収のシミュレーションは、厳しい乾燥を経たひび割れたコンクリートに焦点を当てた参考研究に基づく。

a) トラスネットワークモデル (TNM) によるひび割れからの吸水

ひび割れは、コンクリート中の水の吸収を促進する上で重要な役割を担っている。TNM では、図 3-16 に示すように、ひび割れからの吸水は境界トラス要素（緑線）により明示的にモデル化した。コンクリート母材からの吸水は、令和3年度と同様に内部トラス要素（青線）を用いてモデル化した。また、ひび割れ面におけるトラス要素の境界を変更することで、急激な吸収速度を導入した。各数値モデルの詳細については、次項で説明する。

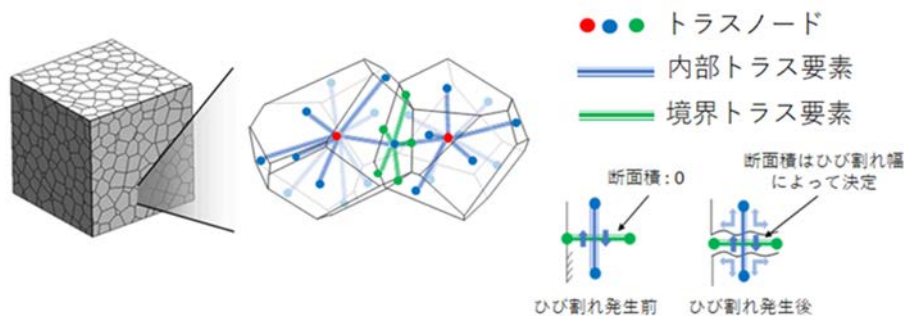


図 3-16 トラスネットワークモデルの概要図^[12]

b) 毛細管上昇高に基づく境界条件の変更

境界変更の基準は、(3-1)式に示すように、Lucas-Washburn 方程式によって決定される毛細管上昇高さの発達に依存している。

$$\left(\frac{2\beta_m}{r} + \frac{y}{\frac{r\beta_w}{2} + \frac{r^2}{8\mu}} \right) \cdot \dot{y} = p_{c0}(1 - \beta_s) - \rho g \sin(\phi) \quad (3-1)$$

ここで、 β_m は動的接触角の補正係数、 r は毛細管半径、 y は毛細管上昇量、 β_w は壁面滑りの補正係数、 μ は動的粘性、 β_s はスティックスリップの挙動に関する補正係数、 ρ は液体（水）の密度、 ϕ は毛管の傾斜角、 g は重力による加速度、 p_{c0} は $2\gamma \cos(\alpha_0)$ として決定される毛管圧、 γ は表面張力で α_0 は液体-固体接触角である。

Crank-Nicolson 法を用いて、方程式を時間的に離散化し、非常に小さな時間増分でのひび割れ開口部に基いて毛細管上昇を計算した。Lucas-Washburn 方程式の詳細は文献^[13]に記載されている。毛細管上昇が境界トラス要素の位置を超えて発達する場合、トラスノードの境界条件は吸収面にすることとした。その模式図を図 3-17 に描く。

c) Cubic 則

吸収面からつながっていないひび割れ、あるいは毛細管上昇高さを超えて位置するひび割れについては、ひび割れを通る水分輸送を三乗則でモデル化した^[13]。毛細管上昇高さを超えて位置する境界トラス要素の拡散係数は、(3-2)式に示すように、ひび割れの開口部に基いて決定された。

$$D_w^{cr}(S) = \frac{\xi p_r w^2}{12\mu} \cdot \frac{(1-m)}{m} \cdot \sqrt{S} \cdot \left[1 - \left(1 - S^{\frac{1}{m}} \right)^m \right]^2 \cdot S^{\frac{-1}{m-1}} \cdot \left[S^{\frac{-1}{m}} - 1 \right]^{-m} \quad (3-2)$$

ここで、 w は等価ひび割れ幅、 ξ はねじれ係数、 p_r は基準圧力（実験的に 18.6237 N/mm^2 として決定）、 m はファングヌッテンパラメータ（ 0.4396 ）、 μ は水の粘性である。

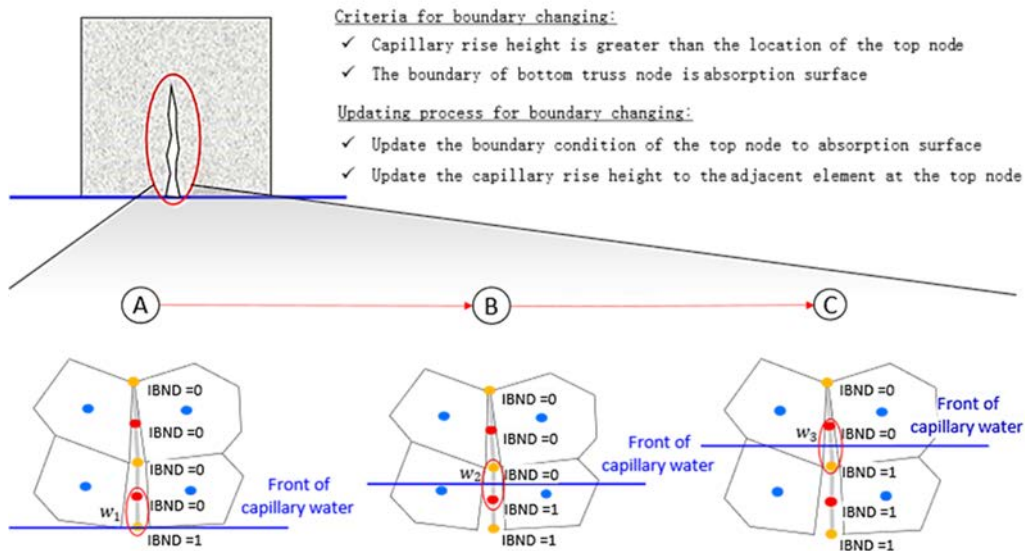


図 3-17 毛管上昇高さの発現に関する境界条件を変更した場合の模式図

2) ひび割れコンクリートへの液水吸水シミュレーション

本研究では、前記1)項で示した数値モデルにより、ひび割れたコンクリートを通ずる液水の上昇をシミュレーションした。このシミュレーションは、東京大学の研究における参考実験^[14]に基づいて行われた。シミュレーションの詳細については、以下の項目で説明する。

a) 参考実験の概要

実験では、断面 100×100 mm のコンクリート試料を厚さ 10 mm のコンクリート平板に切断し、105 °Cでオープン乾燥させた後、液水の吸い上げ実験を行った。再吸水時にコンクリートが膨張するため、DIC (Digital Image Correlation) 法を用いた2次元ひずみ分布測定により、液体の吸い上げ過程を調査した。図 3-18 に参考実験の概要を示す。

b) 数値計算の具体的な実施方法と材料パラメータの詳細

図 3-19 は、モルタルと球状骨材の複合材料としてメッシュ化した参考供試体のモデルである。最大骨材径と骨材比は、参考実験のコンクリート配合を基に割り当てた。

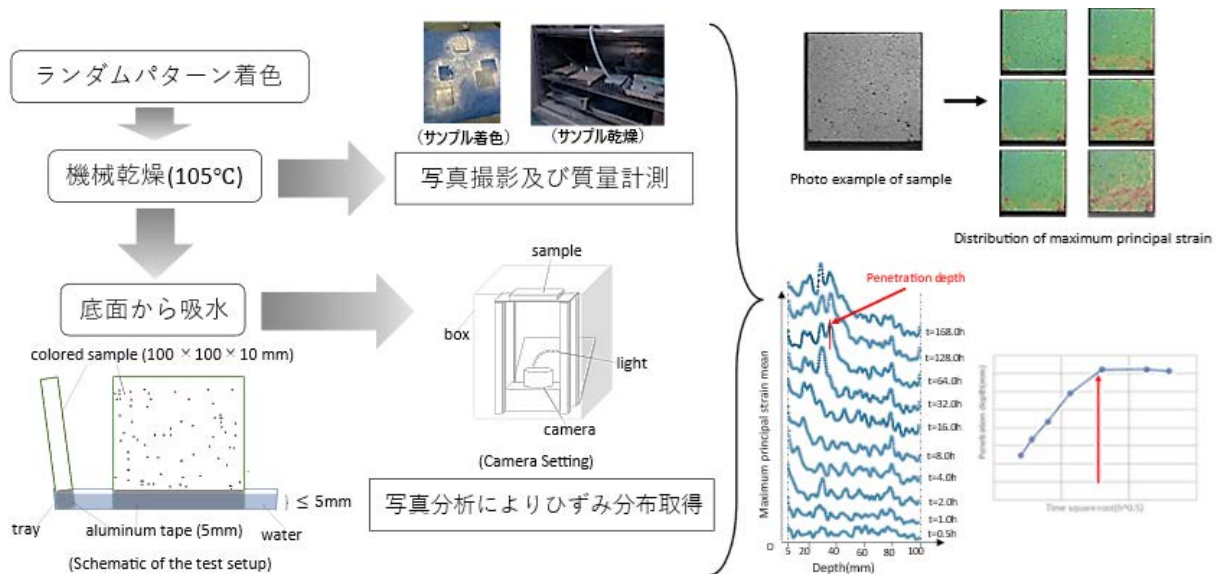


図 3-18 参考実験の概要

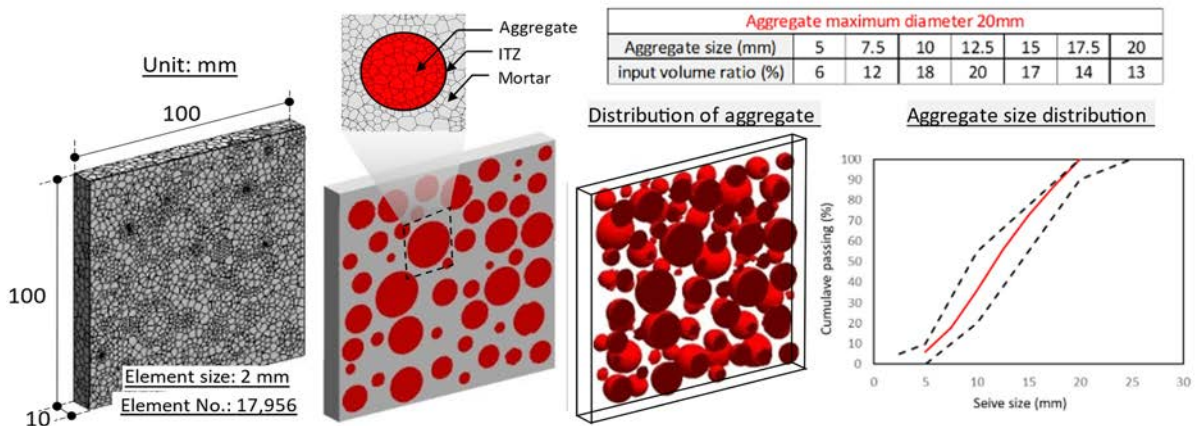


図 3-19 コンクリート供試体の3相モデル

表 3-6 水吸着シミュレーションで使した入力パラメータ

Mechanical properties					
	E_c (N/mm ²)	f_t (N/mm ²)	f_c (N/mm ²)	G_{ft} (N/mm)	
Mortar	16,900	3.79	46.6	0.0615	
Aggregate	70,000	10.0	150.0	0.0200	
Dynamic microstructural change Model		Diffusion coefficient of mortar (D_{agg})			
		S_d	S_v	τ (hr)	
		0.220	0.840	166	
			Interlayer	Gel	Capillary
		$\phi_{Eq, d, i}$	0.180	0.100	0.720
		$\phi_{Eq, v, i}$	0.250	0.550	0.200
n_i	1.0	1.0	1.0		
D_i (m ² /s)	$D_{Cap}/500$	$D_{Cap}/100$	2.8×10^7		
Diffusion coefficient of aggregate (D_{agg}) is 10 times of D_{agg} at fully saturation					

表 3-6 は、基準コンクリート供試体の機械的性質および水分移動特性について、使用したパラメータを示す。機械的性質の変化の影響を考慮し、モルタルの含水率に基づきヤング係数とモルタルの強度の残留比を割り当てた。乾燥・再湿潤過程における体積変化については、実験結果から得られた経験式に基づき、モルタルと骨材の体積変化率を算出した。乾燥過程での体積変化率の詳細は、先行研究^[15]に記載した。

c) ひび割れコンクリートにおける含水量に関する数値解析フロー

各段階の最初に、動的な組織変化モデルを用いて、TNM で水分移動解析を実施した。クラックが発生した場合、Lucas-Washburn 方程式に基づく境界変化が考慮される。毛細管上昇高さを求め、境界条件を変更する基準として使用した。また、毛細管上昇高さを超える境界トラス要素の拡散係数を決定するために、三乗則を考慮する。水分分布に基づき、RBSM により力の釣合問題を解き、乾燥時の収縮と再湿潤時の膨張によるひび割れの開閉を再現した。

3) 解析結果

図 3-20 は、ひび割れコンクリートにおける吸水特性および乾燥過程での構造応答に関する検討結果を示したものである。105 °C 炉乾燥の工程では、モルタルと骨材の体積変化の違いにより発生した微細ひび割れを再現することができた。このマイクロクラックは、骨材に垂直な方向から発生し、モルタル領域まで進展するものであり、過去の数値実験^[15]と一致する。微細ひび割れの幅は 1~10 ミクロンであり、先行研究^[15, 16]と一致する。

乾燥工程後、ひび割れたコンクリートを通る水分の吸収をシミュレーションした。水分分布、変形、ひび割れから、提案したモデルが再湿潤過程における液水の取り込みと膨張を再現できることが示された。浸透深さの展開の比較から、数値と実験結果の間には、DIC によ

って解釈される同様の傾向が見られた。

初期状態での吸水高さや時間の平方根の線形関係からの逸脱として、吸水挙動の異常な挙動が明確に観察された。この異常な挙動は、吸水過程における微細構造の変化だけでなく、微細ひび割れの閉塞によっても誘発されたと考えられる。ひび割れを介した液水の吸収を無視した数値結果との比較は、ひび割れを介した急激な吸収も初期段階での異常な挙動を引き起こすことを明らかにした。この傾向は実験でも報告されている^[16]。蛍光イメージング法を用いて調査したところ、吸収面から伝播する表面微細なひび割れが、水辺の急速な発達を引き起こすことが報告されている^[16]。

再湿潤過程では、実験^[17,18]と同様に、コンクリートの膨張と毛細管水流の発生が確認された。さらに、既存の閉鎖を誘発するコンクリートの膨張は、予想通り観察された。

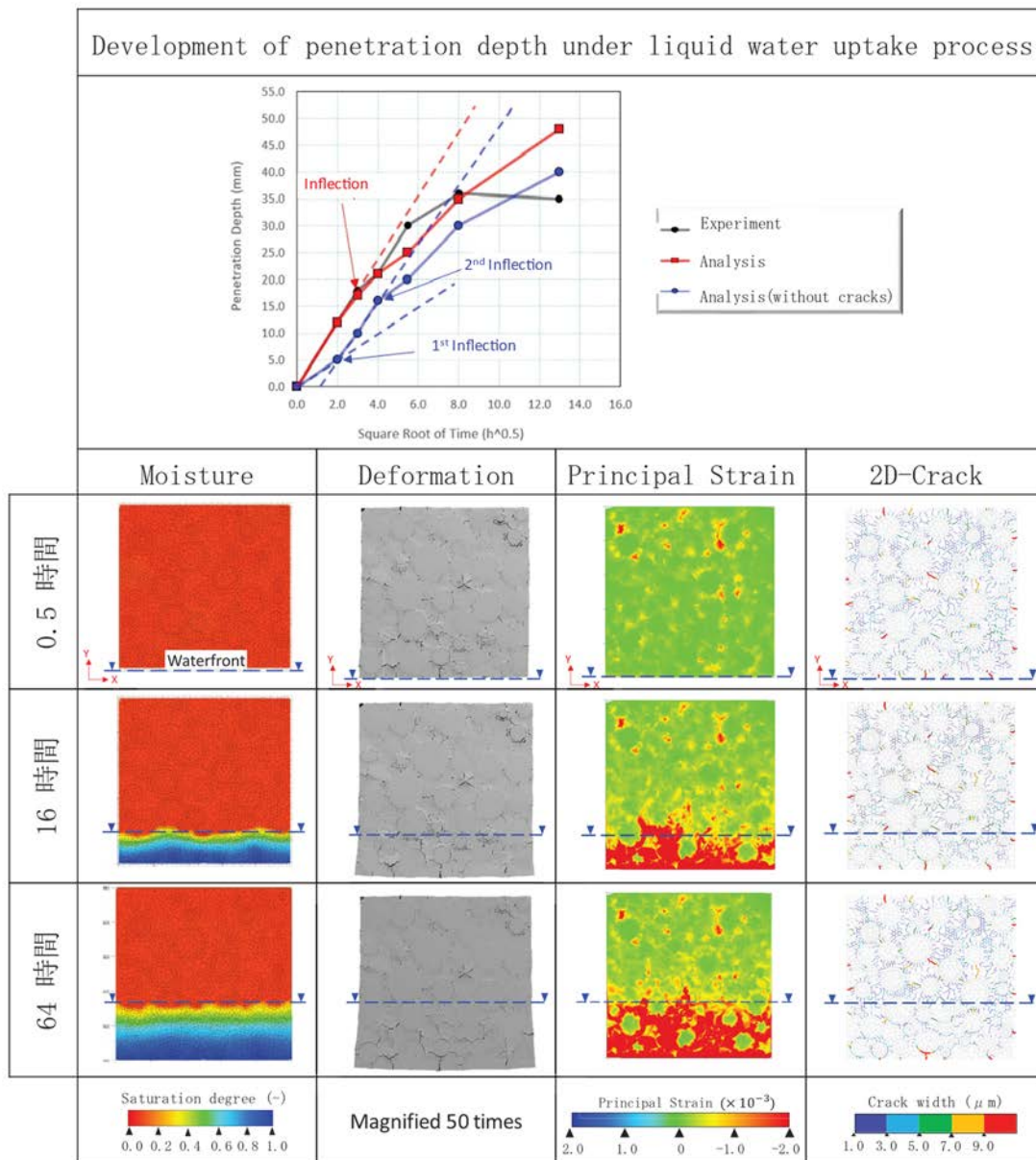


図 3-20 再湿潤過程における吸水特性と構造応答性

(3) まとめ

本研究では、コンクリートの打ち込みから、供用期間ならびに地震時の応答を考慮したひび割れ性状について数値解析により示した。地震時には、場合によっては貫通ひび割れが生じる可能性が示された。ただし、この荷重は相当に大きくなってからなので、地震時の応答変異などとの関係から、ひび割れの程度を推定することが重要となる。

また、ひび割れから水分の吸水挙動について、ひび割れの開閉を考慮した数値モデルの提案を行い、解析を行った。定性的には実験データをよく表現し、モルタル部の膨張によるひび割れの閉塞や、それに伴う吸水速度の変化（吸水高さと時間の平方根の関係において線形関係から逸脱する様子）が表現できることを確認した。

3.2 コンクリート部材の状態を考慮した浸透挙動解析の手法検討

(再委託先：太平洋コンサルタント、太平洋セメント)

3.2.1 モデルによる核種浸透シミュレーション（令和2年度～令和4年度）

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

① セメントペーストの主要水和物による Cs、Sr 収着モデル

前研究では、セメントペースト中の主要な水和物であり、コンクリートの Cs、Sr の収着に大きく影響を及ぼす C-S-H の Cs、Sr 収着をモデル化した^[2]。近年、C-S-H はセメント間隙液中のアルカリ金属元素による電荷補償によって、間隙液中の $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ が C-S-H 中の $\text{Si}(\text{OH})_4$ と置換され、C-A-S-H として存在していることがわかってきている。したがって、本研究では、前研究で作成した C-S-H による Cs、Sr 収着モデルを参考に、C-A-S-H への Cs、Sr 収着モデルを作成した。

令和2年度は、C-A-S-H による Cs、Sr 収着モデル作成に必要な試験方法を検討し、モデル化のための試料の作製および収着試験を開始した。C-A-S-H は材料および配合、炭酸化状態によって $\text{Ca}/(\text{Al}+\text{Si})$ モル比（以下、「C/(A+S)比」という。）が変化する。C/(A+S)比が Cs、Sr の収着および浸透深さに大きく影響することに着目し、C/(A+S)比=0.7~1.2 の C-A-S-H の合成および Cs、Sr 収着試験を行い、C-A-S-H の Cs、Sr 収着モデルを作成した。C-A-S-H 合成時は、 $\text{Si}(\text{OH})_4$ と $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ を置換させるため、Na もしくは K を共存させた。試料名は、C/(A+S)比、CASH、共存元素の順に示す（例：C/(A+S)比=0.7 かつ共存元素が Na の C-A-S-H の場合「0.7CASH(Na)」）。また、共存元素が収着に及ぼす影響を調査するため、収着試験は Cs もしくは Sr の単独溶液だけでなく、Cs と Sr の混合溶液や Na、K 共存溶液でも行った。収着試験の水準表を表 3-7 に示す。

令和3年度は、これまでに実施した C-A-S-H の Cs もしくは Sr の単独溶液の収着試験の結果にフィッティングして、C-A-S-H への Cs、Sr 収着挙動をモデル化した。モデル化では、Haas らの C-A-S-H の溶解平衡モデル^[19]や Hosokawa らの C-A-S-H の Na、K 収着モデル^[20]を基に、C-A-S-H の Cs、Sr 収着反応式を作成し、収着試験結果にフィッティングするよう各式の平衡定数を求めた。本事業の成果だけでなく、富田ら^[21]が報告している C/(A+S)比=1.2 の C-A-S-H への収着試験結果も使用した。フィッティングした結果を図 3-21 に示す。また、作成したモデルによってフィッティングに用いていない混合溶液の収着試験結果を再現できるか計算し、解析結果と実験結果が概ね一致することを確認した。

本項のまとめを以下に示す。

- Cs もしくは Sr 単独相では、初期液相濃度および C/(A+S)比が低いほど、分配比が大きくなる傾向にあった。
- Sr の分配比は Cs の分配比より大きい傾向にあった。
- Cs もしくは Sr の単独溶液と Cs と Sr の混合溶液の分配比には大きな差はなかった。
- 0.1 M の Na、K を共存させた場合は、共存させなかった場合に比べて分配比が小さくなった。
- 作成した C-A-S-H の Cs、Sr 収着モデルは、実環境に近い他元素が共存する環境における収着を再現することができた。

注：放射性廃棄物処分分野では、イオンの固液間の分配の比率を分配係数と称するが、この値は、種々の実験条件に依存するものであることから、本稿では「分配比」と称する。また、放射性廃棄物処分分野での用語として「収着」が使用される。次項で述べる理由から本来はイオン交換であることが明確な場合はこの表現は不適切と考えられるものの、通例に従い収着と表現する。

表 3-7 収着試験水準表

固相名	対象元素	ベース液相	対象元素の初期液相濃度 (M)		
			1.0×10^{-5}	1.0×10^{-3}	1.0×10^{-1}
0.7CASH (Na)	Cs	CASH0.7 (Na)	●	○	○
	Sr	平衡液	●	○	○
0.9CASH (Na)	Cs	CASH0.9 (Na) 平衡液	●	○	○
1.0CASH (Na)	Cs	CASH1.0 (Na) 平衡液	●	○	○
	Sr		●	○	○
	Cs/Sr=1		●	○	○
	Cs	CASH1.0 (Na) 平衡液 +0.1M Na、K	●	○	○
	Sr		●	○	○
	Cs/Sr=1		●	○	○
1.0CASH (K)	Cs	CASH1.0 (K) 平衡液	●	○	○

○ : 安定同位体と ICP 質量分析法 (ICP-MS) による試験

● : 非安定同位体とオートウェルガンマシステムによる試験

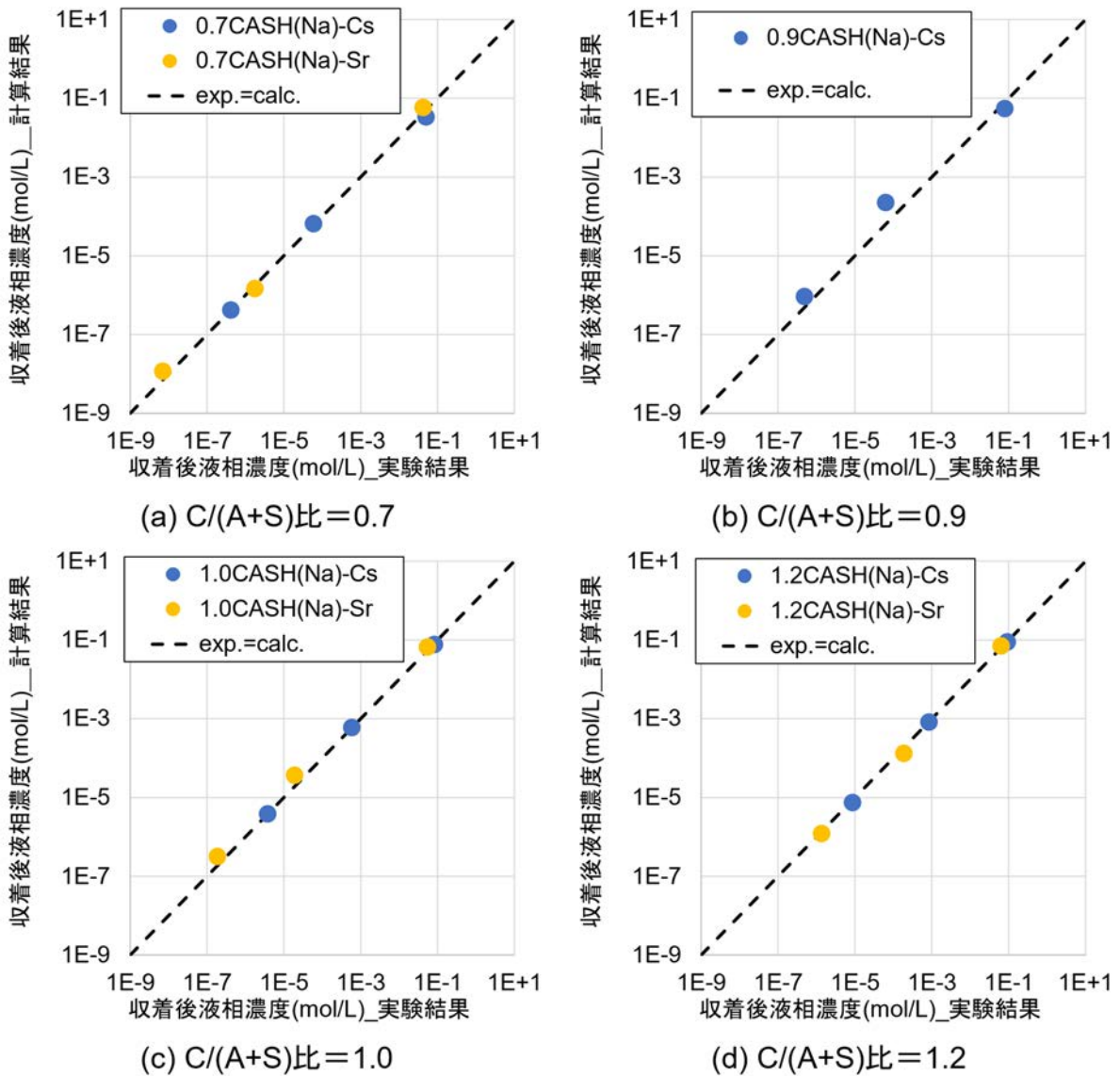


図 3-21 各 C/(A+S) 比の C-A-S-H の Cs、Sr 単独相の収着試験結果に対しフィッティングした結果

② コンクリートへの Cs、Sr 浸透予測

令和 3 年度は、細川らが開発した多元素移動計算（物質移動モデル）と相平衡計算（熱力学相平衡モデル）を連成させた移行予測モデル^[22]に作成した C-A-S-H の Cs、Sr 収着モデルを反映したプログラムを用いて炭酸化処理を行っていないコンクリート（以下、「健全なコンクリート」という。）および促進炭酸化処理を行い、10 mm 程度まで炭酸化させた炭酸化コンクリートへの安定核種を用いた Cs、Sr 浸透試験（0.1 M の CsCl と SrCl₂ の混合溶液に、液固比 5（質量比）で 56 日間浸漬）について計算を行い、計算結果と試験結果を比較した（図 3-22）。

本項のまとめを以下に示す。

- Cs は、健全なコンクリートでは浸透深さは、計算により実験結果を概ね再現できた。濃度プロファイルは完全には一致しなかったが、実験結果より浸透濃度を大きく見積る、安全側の結果であった。

- Sr は、健全なコンクリートでは表面濃度を小さく、浸透深さを深く見積る結果であった。
- 炭酸化したコンクリートの計算では、実験から求めた炭酸化部のセメントあたりの CO₂ 濃度プロファイルを反映できるようにモデルを改良した。
- Cs は、実験では、コンクリートの炭酸化に伴い収着量が増加したのに対し、計算では健全なコンクリートとほとんど変わらない結果となった。
- Sr は、実験で確認されたコンクリートの炭酸化による収着量の増加の傾向が、計算でも再現できた。ただし、計算結果は実験結果に比べて表面付近の収着量の増加が小さく、浸透深さも小さかった。
- 炭酸化したコンクリートでは、炭酸化による Cs の吸着量増加を再現できなかった理由として、本稿での計算における炭酸化の影響は C-A-S-H の C/(A+S) 比の低下による収着量の増加に留まったためである。実験結果の再現には、C-A-S-H とアルミン酸 Ca 水和物の炭酸化によって生成する非晶質アルミノシリケートゲルによる収着を考慮する必要があると考えられる。

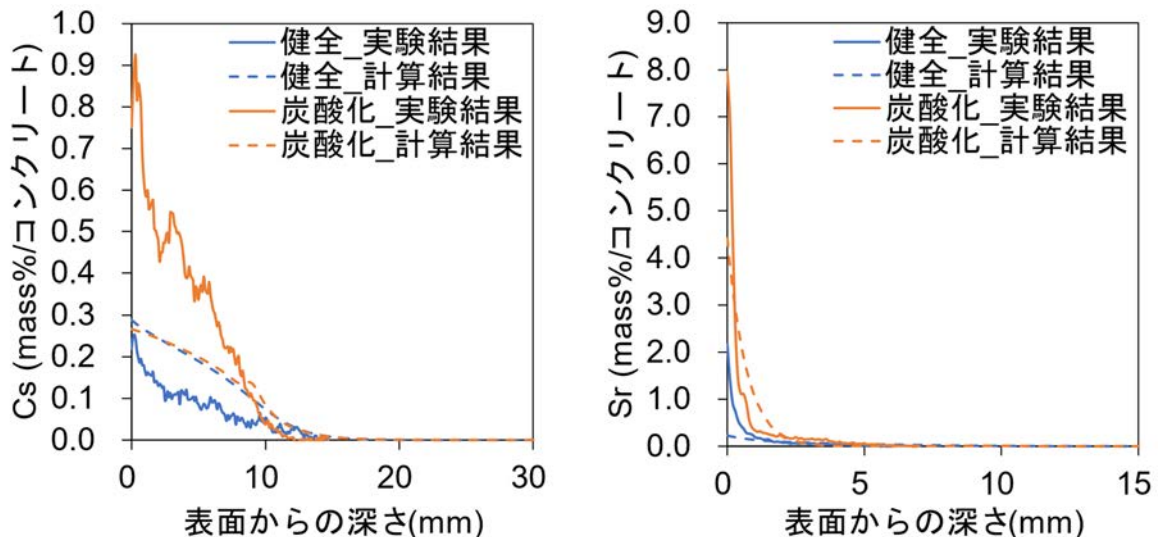


図 3-22 健全、炭酸化コンクリート試料の Cs、Sr 浸透プロファイルの実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)

(2) 令和 4 年度実施内容および成果

1) 1F コンクリートの汚染分布予測に適用する熱力学的相平衡多元素移動モデルの再考察

コンクリートへの物質移動は、コンクリートを構成する各構成相と外来物質の相互作用を伴う、コンクリートの複雑な空隙中の拡散と考えられる。本事業において、この物質移動を可能な限り原理に忠実に再現する基礎研究を継続してきたが、検討内容が多岐にわたり複雑であるため、令和 4 年度の成果を説明する前に、改めてこの理論計算で考慮している内容に関して概説する。

鉄筋コンクリートの重大な劣化現象は海水からの Cl⁻ 浸透による鋼材腐食であるため、Cl⁻ のみの移動を見かけの拡散係数として取り扱う方法が関連学会の規準類では現在も標準である^[23]。しかし、Cl⁻ はセメント水和物の AFm 相に置換吸着されることから、この反応を取り扱うことができる熱力学的相平衡計算が多元素物質移動モデルとともに考慮されるよう

になった^[22]。熱力学的相平衡計算においてはすべての主要な元素が考慮される。そして、計算においては、相互作用する相を指定し、かつ固溶体効果を考慮できるようにモデルを構築する必要がある。この取り組みは、主には Cl⁻イオンの浸透を考慮してきたため、本事業で考慮する Cs や Sr については取り扱われてこなかった。そこで、前事業開始時から、できるだけ単純な系から始め、徐々に現実に近い系へと解析を進めてきた。

図 3-23 に熱力学的相平衡多元素移動モデルにおいて考慮すべき要因の一覧を示す。ここでは飽水状態のひび割れのないコンクリートを仮定する。ここでは、コンクリートへの物質浸透は、固液間の相互作用を伴う、コンクリート内の空隙中の拡散であることを前提として、溶液の特性と、コンクリート側の空隙と吸着の特性に分けて影響を考える。なお、放射性廃棄物処分分野では、固液間の相互作用を吸着と通称されるが、1) 項においてはイオン浸透を取り扱うため、固液間の相互作用はすべてイオン交換であることから、イオン交換によるイオンの固相との相互作用を吸着と称する。

まず浸透経路について考える。イオンの浸透経路は主にはセメント水和物が形成する複雑な空隙となる。この空隙の量は例えばアルキメデス法など種々の方法で測定できるが、浸透に重要な空隙の連結性は拡散実験を行わなければ評価できない。したがって、モデルにおいても何らかの測定に基づき、連結性の指標である屈曲度（空隙が直線状の場合に対して何倍の距離の経路となるかの指標）を設定する必要がある。従来の研究から、屈曲度は水セメント比が小さいほど大きく、OPC に比べ高炉セメントや FAC で大きくなることがわかっている。水和の進行によっても強度発現とともに屈曲度は大きくなる。しかし、強度が空隙率に依存するのに対し、屈曲度は同じ空隙率でも生成するセメント水和物（とくに C-A-S-H）の組成により大きく異なる。C/(A+S) 比が小さいほど、Al/Si 比が大きいほど、屈曲度は大きくなる。この現象は複雑であり、現在も生成する C-A-S-H の組成と連結性を原理的にモデル化できるレベルにはなく、実験結果に一致するように屈曲度を設定することになる。

次に吸着について考える。鉄筋コンクリートの塩害において重要な Cl⁻イオンは AFm と称される層状 Ca アルミネート水和物の層間のアニオン交換サイトに、他の種々のアニオン（CO₃²⁻、SO₄²⁻、OH⁻など）と競合してイオン交換により吸着される。一方、アルカリ金属については OPC の場合、ほとんど相互作用する水和物がない。セメント水和物の主要相は水酸化 Ca、ケイ酸 Ca 水和物およびアルミン酸 Ca 水和物であるため、Ca と同族の元素は類似の挙動をする。1 wt%程度の少量成分として含まれる Mg、あるいは海水からもたらされる Mg は Ca とイオン半径が化学反応の観点からは相当程度に異なるため、Ca-Mg 間の固溶は限定的で、Mg は独自の相を形成する。しかし、常に Ca の 0.1 wt%未満程度で共存する Sr は Ca と置換固溶するものと考えられる。

OPC の C-A-S-H は、Ca 過剰系なので、アルカリ金属と相互作用する能力は小さいが、OPC に FA などのポゾラン物質が添加されると、C-A-S-H の C/(A+S) 比が低下し、アルカリ金属との相互作用が大きくなる。

このアルカリ金属と相互作用する相として重要なものが C-A-S-H 以外に 2 つある。1 つは骨材中の粘土類などのアルカリ金属とイオン交換し、Cs を特異的に強く吸着する物質である。Cs を特異的に吸着する鉱物として、黒雲母変質生成物のパーミキュライトのフレイドエッジサイトが有名である。それ以外にも Cs を吸着する鉱物は多くあるが未解明であり、骨材ごとに Cs との相互作用の程度は大きく異なる。また、セメント水和物が炭酸化、あるいは Ca 溶脱により分解すると、シリカゲルとアルミナゲルが生成するが、ここにアルカリ金属イオンが存在すると非晶質のアルカリ金属アルミノケイ酸塩が生成し、カチオン交換能が生じる。これが第 2 の相である。Ca は炭酸塩として、もしくは溶脱して除去されるため、カ

チオン交換サイトにはアルカリ金属塩が相互作用する。

イオン交換体は、常にイオン交換サイトに何らかのイオンを保有し、電荷が厳密に中性に保たれている。よって、 Cl^- にせよ、 Cs^+ にせよ、何らかの等価のイオンの放出なしに一方的に吸着されることはあり得ない。そして、そのイオン交換サイトには交換されやすいイオンの序列がある。熱力学的相平衡モデルにおいては、その程度を溶解度積の違いとして考慮することになる。このイオン交換の特性から考えて、イオン交換物質を純水に浸漬した場合、イオン交換体からイオンを放出することは電荷中性を崩すことになるので、イオン溶出は起き得ない。起きるとすると、固体内部の含水率に応じて固液間のイオン平衡が成り立っている液相の希釈もしくは、イオン交換体自体の溶解である。以降、イオン交換体である C-A-S-H と Cs もしくは Sr との相互作用を調べるため、ある濃度の CsCl 溶液に C-A-S-H を浸漬し、Cs 濃度変化を測定しているが、これは、 Cs^+ イオンの吸着（あるいは収着）を見ているのではなく、あらかじめ C-A-S-H にイオン吸着していた何らかのカチオンとの交換反応を見ていることになる。イオン交換反応は、固相と液相の競合するイオンのモル数で決定されるため、液固比も影響することになり、溶解度積が固液比に依存しないこととは異なる状況である。ただし、本事業では、使用したモデルの特性上、イオン交換も溶解度積として取り扱うため、計算と実験に一部不整合が出る可能性も含んだものである。

以降、モデルの開発は、以下の順序で各種要因の取り込みを行った。

- ・ 前事業で Cs、Sr の相互作用相として考慮していた C-S-H への Al の固溶効果（Si-Al の置換は、電荷補償のため、Al にはアルカリ金属が帯同する）
- ・ C-A-S-H の Al/Si 比と共存イオンおよびイオン濃度の影響（イオン交換を溶解度積として表現するため、C-A-S-H 組成とイオン濃度の影響は適宜再現できるように調整）
- ・ 炭酸化と溶脱による C-A-S-H の C/(A+S) 比の変化（上記の C-A-S-H のイオン吸着特性を反映させるため、C-A-S-H そのもの組成変化を再現）
- ・ セメント水和物の炭酸化による非晶質アルカリ金属アルミノケイ酸塩の生成（C-A-S-H とアルミン酸 Ca 水和物の分解後の生成物をゼオライトと仮定して再現）
- ・ 骨材への吸着（1F に利用された阿武隈川の川砂利を 1 つの相と見做してモデル化）
- ・ ひび割れ部への浸透（屈曲度の変化と見做して、移動度を一定倍率で増加）
- ・ 乾燥時の非定常水分移動（吸着反応との速度的競合の再現は差分法計算における時間・空間分割で適切に再現できていない可能性はある）
- ・ 複数の因子の段階的な組合せによるモデルの検証

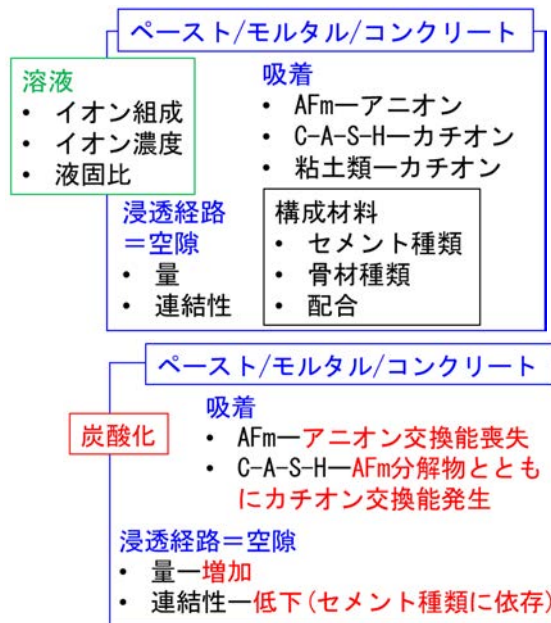


図 3-23 熱力学的相平衡多元素移動モデルにおいて考慮すべき要因一覧^[24]

本項では、Hosokawa らが開発した多元素移動計算（物質移動モデル）と相平衡計算（熱力学相平衡モデル）を連成させた移行予測モデル^[22]に令和 4 年度までの成果を反映させた解析プログラムを用いて、コンクリート部材の材料や状態が異なる条件で Cs、Sr の浸透解析を行った。また、令和 4 年度までの成果を取りまとめ、実際のコンクリート部材における長期的な核種の浸透挙動評価に必要な知見を、今後の課題も含め提示した。

2) 様々な条件における Cs、Sr の浸透予測

令和 2 年度までに 1F の 1 号機や 4、5、6 号機の一部に使用されている OPC コンクリートへの Cs、Sr の浸透深さ計算を実施してきた。令和 4 年度は 2、3 号機および 4、5、6 号機の一部に使用されている FAC コンクリートについても Cs、Sr の浸透深さ計算を実施した。浸透試験に供した試験体は、令和 2 年度および令和 3 年度に表 3-8 および表 3-9 に示す調合で作製した。浸透試験の条件を表 3-10 に示す。浸透試験の試験体は、イオンの浸透挙動を評価するため浸透面以外は樹脂で塗装した。なお、OPC コンクリートの浸透試験の詳細は令和 3 年度の報告書^[25]、FAC コンクリートの浸透試験の詳細は本報告書の「3.2.2 ダメージを受けたコンクリートの核種移行評価」と「3.3.1 低濃度領域での ¹³⁷Cs と ⁹⁰Sr の競合浸透の評価」に記載されており、本項ではそれらの実験結果を用いて計算結果の妥当性の検討を行った。

表 3-8 OPC コンクリートの Cs、Sr 浸透試験の試験体の調査^[25]

調合名	W/C	s/a	単位量 (kg/m ³)					AE 剤① 添加率 (C×%)	AE 剤② 添加率 (C×%)
			W	C	SS	G-2005	G-1305		
OPC コン クリート	0.55	46	163	296	825	280	719	0.25	0.002

※AE 剤②は 100 倍希釈して使用。

W/C:水セメント比、s/a : 細骨材率、W : 水、C : OPC、SS : 細骨材(山砂)、G-2005 : 最大寸法が 20 mm の粗骨材(碎石)、G-1305 : 最大寸法が 13 mm の粗骨材 (碎石)

表 3-9 FAC コンクリートの Cs、Sr 浸透試験の試験体の計画調査^[26]

調合名	W/P	s/a	単位量 (kg/m ³)						AE 剤 添加率 (P×%)
			W	P		SS	SG-2005	SG-1305	
				OPC	FA				
G. max 20mm	0.55	45.5	182	281	49	772	894	—	0.65
G. max 13mm							—	917	0.50

※AE 剤は 100 倍希釈し、練り混ぜ水(W)の一部として使用。

W/P:水粉体比、s/a : 細骨材率、W : 水、P : 粉体、SS : 現場細骨材、SG-2005 : 最大寸法が 20 mm の現場粗骨材、SG-1305 : 最大寸法が 13 mm の現場粗骨材

表 3-10 浸透試験の条件

項目	OPC-高濃度浸透試験	FAC-高濃度浸透試験	FAC-低濃度浸透試験
試験体	OPC コンクリート	FAC コンクリート ひび割れ導入後の G. max20 mm	FAC コンクリート ひび割れ導入後の G. max13 mm
試験体表面の ひび割れ幅 (貫通/非貫通)	なし	0.08 mm (非貫通)	①Cs : 0.08 mm (非貫通) ②Sr : 0.25 mm (貫通) ③Cs : 0.03 mm (非貫通) ④Sr : 0.15 mm (貫通)
状態	促進炭酸化/飽水	健全/飽水	①②健全/飽水 ③④健全/乾燥
浸漬液濃度	0.1 M CsCl+SrCl ₂		1 日海水 +7 日初期汚染水 ([Cs ⁺] = 3.5 μM、[Sr ²⁺] = 71 μM)
浸漬期間	56 日間	7 日間	8 日間
分析手法	EPMA		IP

a) 計算プログラムの概要

Cs、Sr の浸透計算には、Hosokawa らが開発した多元素移動計算（物質移動モデル）と相平衡計算（熱力学相平衡モデル）を連成させた移行予測モデル^[22]を用いた。モデルには、Haas らの C-A-S-H の溶解平衡モデル^[19]、令和 3 年度に作成した C-A-S-H の Cs、Sr 収着モデル、Hosokawa らの C-A-S-H の Na、K 収着モデル^[20]および平成 31 年度に作成した現場骨材の陽イオン交換モデル^[2]を組み込んだ。それ以外に本モデルで用いた水和物の反応式とその平衡定数 ($\log K$) を表 3-11 に示す。さらに、これ以外の液相化学種や固相の反応式と平衡定数については、PHREEQC に付属のデータベース (WATEQ4F^[27])を用いた。

表 3-11 各水和物の反応式とその熱力学的平衡定数

鉱物相	反応式	$\log K$	Ref.
Al(OH) ₃ (a)	$\text{Al(OH)}_3 + \text{OH}^- = \text{Al(OH)}_4^-$	0.24	a
Brucite	$\text{Mg(OH)}_2 + 2\text{H}^+ = \text{Mg}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	16.84	a
C ₄ AH ₁₃	$(\text{CaO})_4\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 13\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al(OH)}_4^- + 6\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-25.56	a
C ₄ FH ₁₃	$(\text{CaO})_4\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot 13\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Fe(OH)}_4^- + 6\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-29.88	a
Calcite	$\text{CaCO}_3 + \text{H}^+ = \text{Ca}^{2+} + \text{HCO}_3^-$	1.849	a
Ettringite	$\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12} \cdot 26\text{H}_2\text{O} = 2\text{Al(OH)}_4^- + 6\text{Ca}^{2+} + 26\text{H}_2\text{O} + 4\text{OH}^- + 3\text{SO}_4^{2-}$	-45.09	a
Friedel's salt	$\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{Cl}_2(\text{OH})_{12} \cdot 4\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al(OH)}_4^- + 2\text{Cl}^- + 4\text{OH}^- + 4\text{H}_2\text{O}$	-27.3	b
Hemicarbonate	$\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{CO}_3)_{0.5}(\text{OH})_{13} \cdot 7\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al(OH)}_4^- + 0.5\text{CO}_3^{2-} + 5\text{OH}^- + 7\text{H}_2\text{O}$	-29.13	d
Monocarbonate	$(\text{CaO})_3(\text{Al}_2\text{O}_3)\text{CaCO}_3 \cdot 11\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al(OH)}_4^- + \text{CO}_3^{2-} + 4\text{OH}^- + 5\text{H}_2\text{O}$	-31.47	a
Monosulfate	$(\text{CaO})_3\text{Al}_2\text{O}_3\text{CaSO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O} = 4\text{Ca}^{2+} + 2\text{Al(OH)}_4^- + \text{SO}_4^{2-} + 4\text{OH}^- + 6\text{H}_2\text{O}$	-27.7	a
MSH06	$\text{Mg}_{0.82}\text{SiO}_{2.385}(\text{OH})_{0.87} + 1.64\text{H}^+ + 0.745\text{H}_2\text{O} = 0.82\text{Mg}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4$	9.12	e
MSH12	$\text{Mg}_{1.07}\text{SiO}_{2.075}(\text{OH})_{1.99} + 2.14\text{H}^+ = 1.07\text{Mg}^{2+} + \text{H}_4\text{SiO}_4 + 0.065\text{H}_2\text{O}$	12.73	e
OH-Hydrotalcite	$\text{Mg}_4\text{Al}_2(\text{OH})_{14} \cdot 3\text{H}_2\text{O} = 4\text{Mg}^{2+} + 2\text{Al(OH)}_4^- + 6\text{OH}^- + 3\text{H}_2\text{O}$	-56.02	a
Silica	$\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} = \text{H}_4\text{SiO}_4$	-2.85	c
Sr(OH) ₂	$\text{Sr(OH)}_2 + 2\text{H}^+ = \text{Sr}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	27.52	e

a: Lothenbach et al. ^[28]、b: Loser et al. ^[29]、c: Bénard et al. ^[30]、
d: Lothenbach et al. ^[31]、e: THERMODDEM ^[32]

b) 健全飽水状態のコンクリートへの高濃度の Cs、Sr 浸透試験と計算結果

図 3-24 に FAC コンクリートに高濃度の Cs、Sr を浸透させた試験の実験結果と計算結果の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。実験結果はひび割れ導入コンクリートの浸透試験結果から、ひび割れ以外の部分（健全部）のプロファイルを抽出したものである。

Cs は、セメントの種類が変わっても、図 3-22 と同様に浸透プロファイルを概ね再現でき

た。一方、Sr は図 3-22 と同様に表面付近の高濃度の収着は再現できなかつた。Sr の収着については、現在モデルでは C-A-S-H による収着と骨材による収着を考慮している。しかし、Haga らは Sr 濃度 10 mM で収着試験を行った場合、Ettringite や Monocarbonate 等のセメント水和物中の他の Ca 系の鉱物も Sr を収着することを報告している^[33]。したがって、実験結果の Sr の浸透プロファイルと合わせるためには、他の Ca 系の鉱物の Ca と Sr のイオン交換を考慮する必要があると考える。また、実験結果では Sr は内部でも濃度が高い傾向にあった。現場骨材は Si を多く含み、EPMA で測定する際、Si のピークが強く検出されるため、Si とピーク位置に近い Sr も Si のピークの影響を受けて、Sr の濃度が高く見積もられている可能性がある。また、現場骨材自体に Sr が含まれていた可能性もある。

健全飽水状態の FAC コンクリートへの高濃度の Cs、Sr 浸透の場合は、Cs の浸透プロファイルは予測できるのに対し、Sr は大まかな浸透プロファイルは予測できるものの表面付近の濃度の予測は今後の課題である。

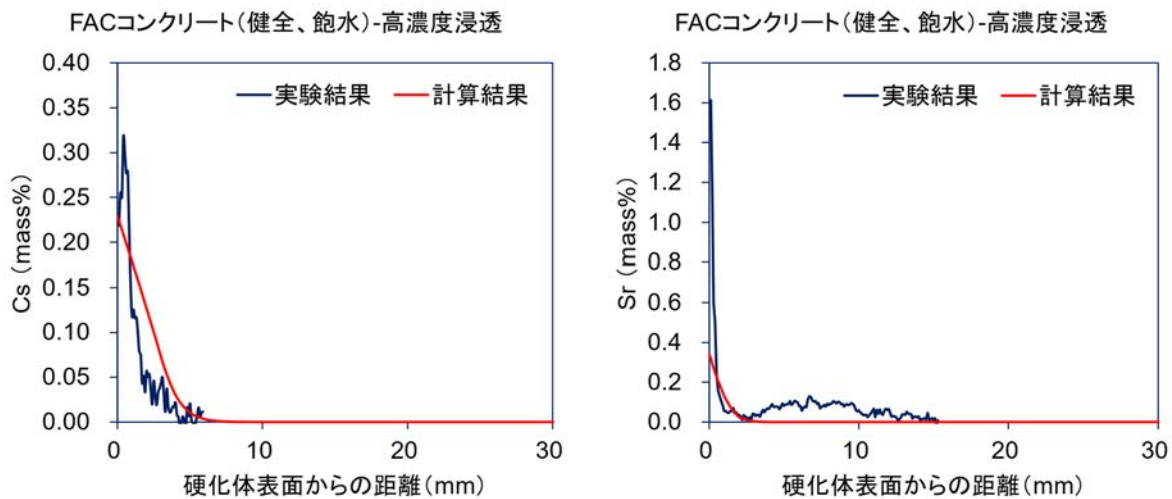


図 3-24 健全飽水-FAC コンクリート-高濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル
—実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)

c) 健全飽水状態のコンクリートへの低濃度の Cs、Sr 浸透試験と計算結果

図 3-25 に FAC コンクリートに低濃度の Cs、Sr を浸透させた試験の実験結果と計算結果の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。実験結果はひび割れ導入コンクリートの浸透試験結果から、ひび割れ以外の部分 (健全部) のプロファイルを抽出したものである。令和 3 年度までに低濃度浸透試験では特に Cs において粗骨材への収着が大きいことがわかっているため^[25]、低濃度の浸透試験については現場粗骨材の粉砕物の CEC=0.14 mol/kg をモデルに反映した。

Cs は、表面付近の濃度プロファイルは一致していたが、内部の濃度プロファイルは一致しなかつた。Cs の実験結果は表面付近と内部で濃度プロファイルの傾きが大きく異なるため、この現象を再現するには内部での Cs の浸透機構を解明しモデルに反映する必要がある。一方、Sr は図 3-22 と同様に表面付近の高濃度の収着は再現できなかつたが、3 mm 程度までの濃度プロファイルは一致していた。また、図 3-24 と同様に 3 mm 以降のバックグラウンドの濃度が高かつた。現場骨材自体に Sr もしくは β 線を放出する物質が含まれていた可能性がある。

したがって、健全飽水状態の FAC コンクリートへの低濃度の Cs、Sr 浸透の場合は、Cs は

表面付近の濃度プロファイルは予測できるが内部での浸透は小さく見積もる可能性があり、Sr は表面付近の濃度を小さく見積もる可能性があるが、内部での浸透は概ね予測できると考えられる。挙動を再現できていない部分については、今後より詳細に分析し、機構を解明してモデルに反映する必要がある。

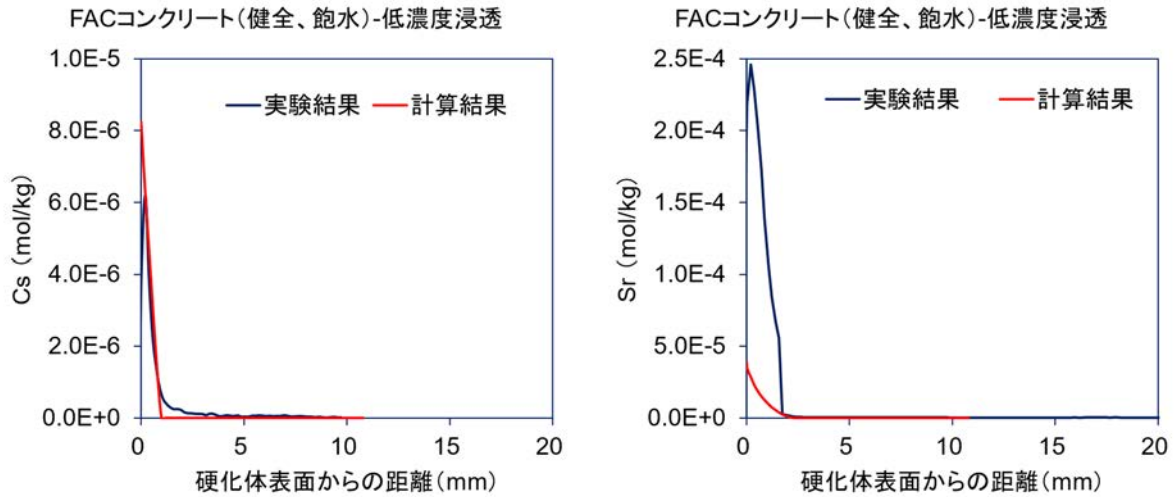


図 3-25 健全飽水-FAC コンクリート-低濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル
 __実験結果と計算結果の比較__粗骨材の収着影響反映後 (左 : Cs、右 : Sr)

d) ひび割れ部の浸透

ひび割れ部では、健全部に比べて Cs、Sr の浸透が大きかった。そこで、各イオンの拡散係数に補正値を乗じることで、ひび割れ部の浸透プロファイルとフィッティングさせた。図 3-26 は表面のひび割れ幅が 0.08 mm の非貫通のひび割れを導入した FAC コンクリートに高濃度の Cs、Sr を浸透させた試験のひび割れ部の実験結果と計算結果の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。ひび割れ部の高濃度浸透では、Cs は拡散係数に補正値として 300 を乗じることで実験結果と計算結果が概ね一致した。一方、Sr は Cs と同じ補正値 300 では浸透プロファイルが一致せず、補正値を 1000 にすると表面濃度以外の浸透プロファイルが概ね一致した。Sr は、C-A-S-H の収着等による濃度の減少よりも、ひび割れ中の Sr の拡散の方が、Sr の浸透に及ぼす影響が大きいと考えられる。

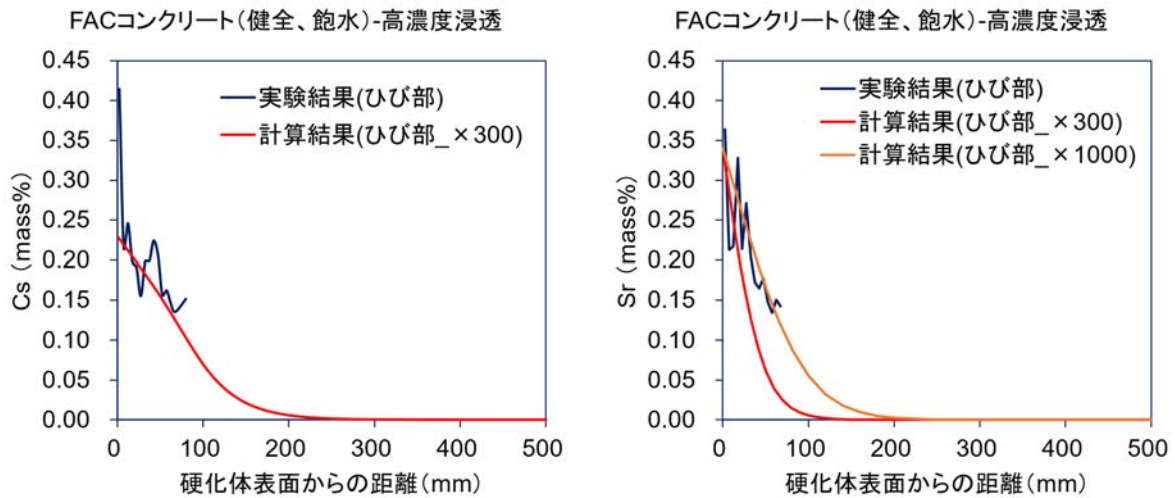


図 3-26 健全飽水-FAC コンクリート-高濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル
 ―実験結果と計算結果の比較―ひび割れ部の浸透 (左 : Cs、右 : Sr)

図 3-27 に表面のひび割れ幅が 0.08 mm の非貫通のひび割れを導入した FAC コンクリートに低濃度の Cs を浸透させた試験、表面のひび割れ幅が 0.25 mm の貫通のひび割れを導入した FAC コンクリートに低濃度の Sr を浸透させた試験のひび割れ部の実験結果と計算結果を示す。浸透プロファイルにフィッティングさせると、ひび割れ幅が 0.08 mm の試験では補正値は 12、ひび割れ幅が 0.25 mm の試験では補正値は 40 であった。ひび割れ幅が大きく、貫通している試料は補正値が大きくなった。ただし、それぞれ浸透させた元素が異なるため、図 3-26 と同様に Cs と Sr で挙動が異なる可能性もある。Cs、Sr のひび割れ部への低濃度浸透では、補正値を乗じることで浸透プロファイルを概ね再現することができたが、Cs は図 3-25 と同様に浸透深さを小さく見積もる傾向にあった。

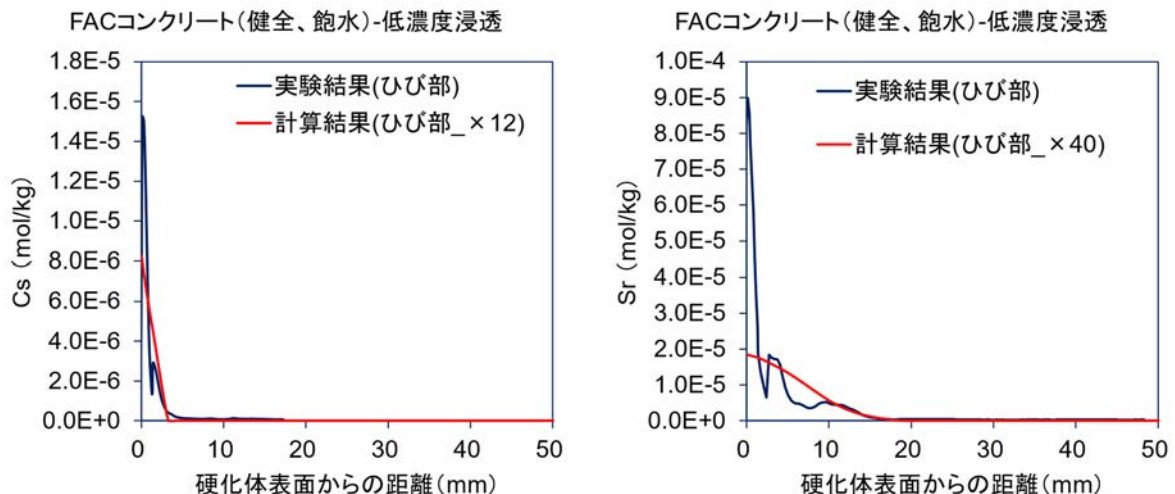


図 3-27 健全飽水-FAC コンクリート-低濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル
 ―実験結果と計算結果の比較―
 ―ひび割れ部の浸透 (左 : ひび割れ幅 0.08 mm、右 : ひび割れ幅 0.25 mm)

e) 乾燥試料への浸透

飽水状態のコンクリート中でのイオンの物質移行挙動計算では、拡散と相平衡を考慮した。一方、乾燥したコンクリート中でのイオンの物質移行挙動計算では、それらに加えて移流の影響も考慮する必要がある。細川らのプログラムでは、試料の初期飽水度と試料の外側の環境（境界条件）の飽水度が入力でき、各 node において水蒸気と液状水とが常に平衡を保つように計算している。したがって、水蒸気、液状水がそれぞれの拡散係数に基づいて移動し各 node における気液相平衡(sorption isotherm)から外れた場合、両者が平衡となるように水蒸気と液状水との間で水分の授受が行われるようになっている。本研究で浸透試験に使用した乾燥試料は、水セメント比 55 %のコンクリート試料を湿度 60 %の環境で乾燥させたことから、秋田らの文献^[34]を参考に初期飽水度を 50 %と推定して計算を行った。

図 3-28 に表面のひび割れ幅が 0.03 mm の非貫通のひび割れを導入した乾燥した FAC コンクリートに低濃度の Cs を浸透させた試験、表面のひび割れ幅が 0.15 mm の貫通のひび割れを導入した乾燥した FAC コンクリートに低濃度の Sr を浸透させた試験の健全部の実験結果と計算結果を示す。乾燥試料においても、Cs は健全飽水試料の低濃度浸透と同様に表面付近の濃度プロファイルは一致するものの内部の濃度プロファイルは一致しなかった。一方、Sr は浸透濃度と深さを小さく見積る傾向にあった。Sr の浸透についてはまだ考慮していない機構が存在している可能性もあり、実際に起きている機構を解明し、モデルに組み込む必要がある。

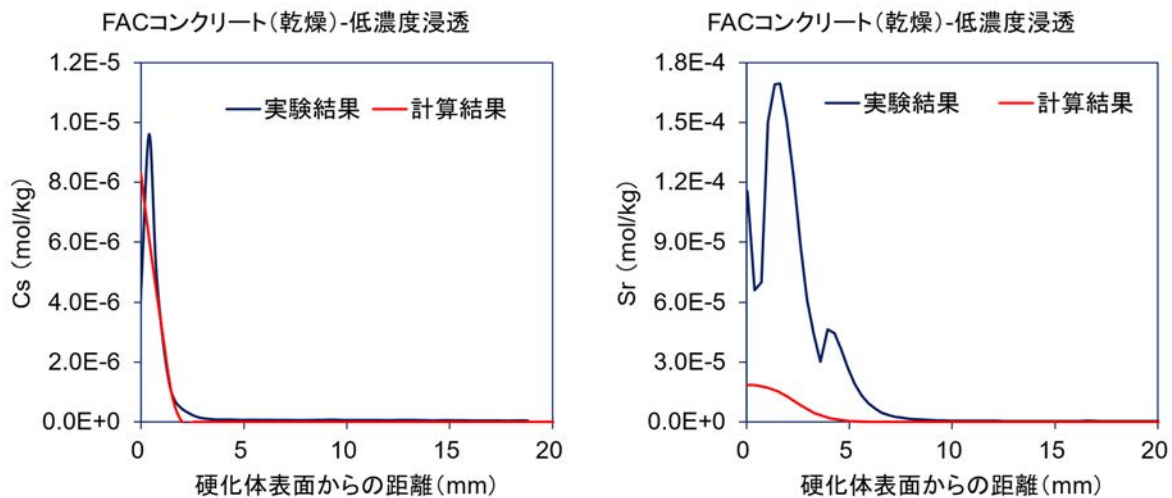


図 3-28 健全乾燥-FAC コンクリート-低濃度 Cs 浸透プロファイル
 —実験結果と計算結果の比較
 —健全部 (左：ひび割れ幅 0.03 mm、右：ひび割れ幅 0.15 mm)

f) 炭酸化部の収着

令和 3 年度に課題として挙げられた炭酸化部分への Cs、Sr の収着量増加を計算する手法を検討した。富田ら^[21]は本研究と同様の方法で作製した Ca/Si 比=1.4 の C-A-S-H を促進炭酸化させると、XRD では CaCO₃ のピークのみ、NMR では C-A-S-H が完全に分解され、アルミノシリケートゲルのみが確認されたことを報告している。また、促進炭酸化させた本試料で本研究と同様に Cs、Sr の収着試験を行うと Cs、Sr の収着が大きかったことを報告している。

本試料の CaCO₃ 以外の組成 (Ca/Si 比=0.07、Al/Si 比=0.16、Na/Si 比=0.37) と類似するカルシウムアルミノシリケート鉱物を熱力学データベース (THERMOCHEM) で検索したところ MordeniteJ (Ca/Si 比=0.06、Al/Si 比=0.19、Na/Si 比=0.39) が該当した^[32]。そこで、表 3-12 に示す通り、MordeniteJ の Na と Cs が置換した Mordenite(Cs)、MordeniteJ の Ca が Sr と置換した Mordenite(Sr) の相を作成し、富田らの収着試験結果にフィッティングして、この 2 つの相の平衡定数を求めた。また、作成したモデルを用いて富田らが報告している実環境で炭酸化した C-A-S-H の Cs、Sr 収着結果を再現できるか検証した。フィッティング結果と検証結果を図 3-29 に示す。促進炭酸化試料にフィッティングして作成したモデルによって、高濃度領域においては、炭酸化程度の小さい実環境炭酸化試料の Cs、Sr 収着も概ね再現することができた。一方、低濃度領域においては必ずしも良好な再現はできなかったものの、本研究では暫定的にこの値を用いて予測する。

表 3-12 作成した炭酸化部の Cs、Sr 収着相および平衡定数フィッティング結果

鉱物相	反応式	logK	Ref.
MordeniteJ	$Ca_{0.289}Na_{0.362}Al_{0.94}Si_{5.06}O_{12} \cdot 3.468H_2O + 3.76H^+ + 4.772H_2O = 0.94Al^{3+} + 0.289Ca^{2+} + 0.362Na^+ + 5.06H_4SiO_4$	-4.16	a
Mordenite(Cs)	$Ca_{0.289}Cs_{0.362}Al_{0.94}Si_{5.06}O_{12} \cdot 3.468H_2O + 3.76H^+ + 4.772H_2O = 0.94Al^{3+} + 0.289Ca^{2+} + 0.362Cs^+ + 5.06H_4SiO_4$	0.11	—
Mordenite(Sr)	$Sr_{0.289}Na_{0.362}Al_{0.94}Si_{5.06}O_{12} \cdot 3.468H_2O + 3.76H^+ + 4.772H_2O = 0.94Al^{3+} + 0.289Sr^{2+} + 0.362Na^+ + 5.06H_4SiO_4$	0.97	—

a: THERMOCHEM ^[32]

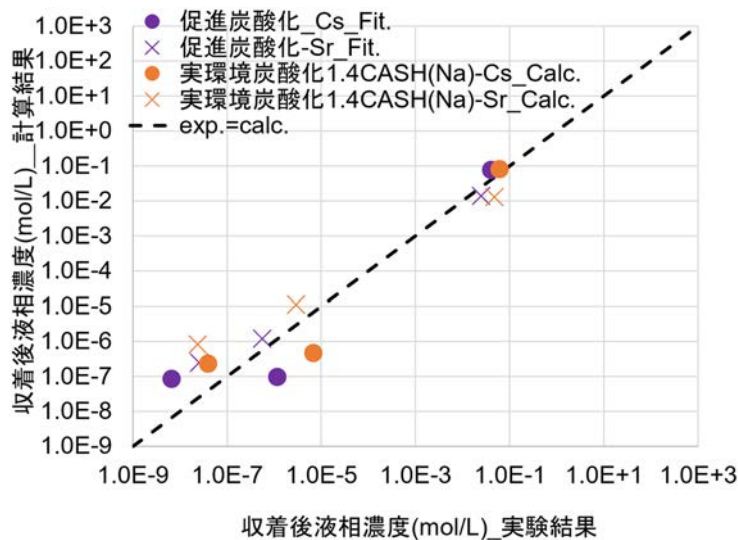


図 3-29 炭酸化した C-A-S-H の Cs、Sr 収着試験__実験結果と計算結果
(Fit. : フィッティングした結果、Calc. : 作成したモデルで計算した結果、
exp.=calc. : 実験結果と計算結果が一致する値)

g) 促進炭酸化飽水試料への浸透

「f) 炭酸化部の収着」で作成した Mordenite(Cs)、Mordenite(Sr) を加えて、令和 3 年度

に実施した促進炭酸化した OPC コンクリートへの Cs、Sr の浸透の再計算を行った。図 3-30 に促進炭酸化、飽水状態の OPC コンクリートに高濃度の Cs、Sr を浸透させた実験結果と計算結果の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。計算結果は、令和 3 年度の結果と Mordenite (Cs) および Mordenite (Sr) を加えた令和 4 年度の結果を示した。浸透プロファイルについては、Mordenite (Cs) を加えたことで、令和 3 年度に課題としていた炭酸化部分の Cs 収着量の増加を再現することができた。一方、Sr は表面濃度は一致しなかったが、内部での濃度プロファイルは比較的一致した。

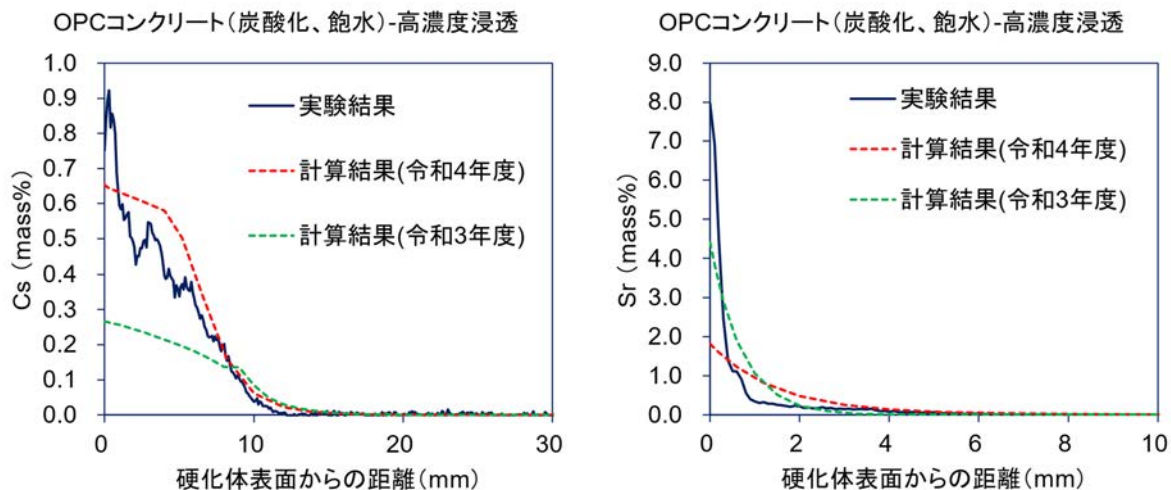


図 3-30 炭酸化飽水-OPC コンクリート-高濃度 Cs、Sr 浸透プロファイル
 —実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)

3) 1F コンクリートへの Cs、Sr 浸透予測

「2) 様々な条件における Cs、Sr の浸透予測」の検討を基に、表 3-13 に示す条件で、1F コンクリートへの Cs、Sr 浸透を予測した。予測対象は、1F タービン建屋地下の津波による海水の浸入～滞留水が除去されるまで (2201 日間) のコンクリートへの Cs、Sr 浸透とした。OPC コンクリートは、平成 31 年度に文献調査等を踏まえて設定したコンクリートの配合や境界条件^[2]を用いて、令和 4 年度までに改良したプログラムで計算を行った。また、本研究では FAC コンクリートに対する Cs、Sr 浸透についても検討したため、1F3 号機の一般構造用コンクリートの配合^[35]を用いて FAC コンクリートに対する Cs、Sr 浸透計算も行った。

表 3-13 1F コンクリートの Cs、Sr 浸透予測条件

	OPC	FAC
状態	健全飽水のひび割れ有/無 炭酸化飽水のひび割れ有/無	健全飽水のひび割れ有/無
配合	H31 年度に計算した OPC コンクリート ^[2] W/C=48 (%), s/a=38 (%), 空気量=3.5 (%)	FAC を用いた 1F3 号機の工事記録の一般構造用コンクリート ^[35] W/C=55 (%), s/a=45 (%), 空気量=4.5 (%), FA 添加率=15 (%)
解析期間	1F タービン建屋地下の津波による海水の浸入～滞留水が除去されるまで (2201 日間)	
境界条件	H31 年度の計算条件 ^[2]	
骨材の CEC	本研究で測定した現場骨材の CEC を使用 細骨材 : 0.02 mol/kg、粗骨材 : 0.14 mol/kg	
炭酸化部の CO ₂ 濃度プロファイル	報告されている 1F の中性化深さ 3.5 cm 程度 ^[36] と近い中性化深さ 2.5cm の Gadja の実構造物の CO ₂ 浸透プロファイル ^[37] を使用	
ひび割れ部の補正值	2) 項で検討した 0.08 mm の非貫通ひび割れ試料への補正值 12 を使用	

図 3-31 に健全飽水状態の OPC コンクリートの 1F タービン建屋地下の滞留水由来の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。また、図 3-32 に浸透初日と滞留水除去時の pH と鉱物量の計算結果、図 3-33 に C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果を示す。C-A-S-H の Ca/Si 比は健全なコンクリートでは表面、内部ともに初日～滞留水除去時まで 1.4 程度であった。濃度がクリアランスレベル (Cs は 100 Bq/kg (5×10^{-13} mol/kg)、Sr は 1000Bq/kg (4×10^{-10} mol/kg)) になる深さを浸透深さとしたところ、健全飽水状態の OPC コンクリートへの Cs の浸透深さは、健全部で 9 mm 程度、ひび割れ部で 25 mm 程度であった。一方、Sr の浸透深さは、健全部で 12 mm 程度、ひび割れ部で 32 mm 程度であった。Cs は Sr より浸透深さが小さくなる傾向にあった。ただし、2)c) 項で低濃度の Cs 浸透では浸透深さを小さく見積る可能性が示唆されているため、今後も検討が必要である。

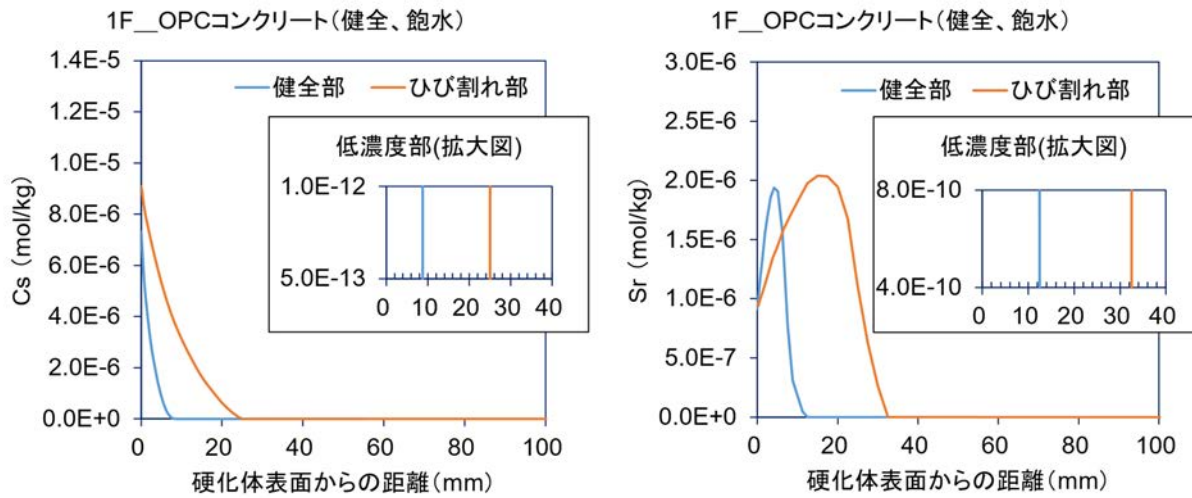


図 3-31 健全飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透プロファイル
 —実験結果と計算結果の比較 (左: Cs、右: Sr)

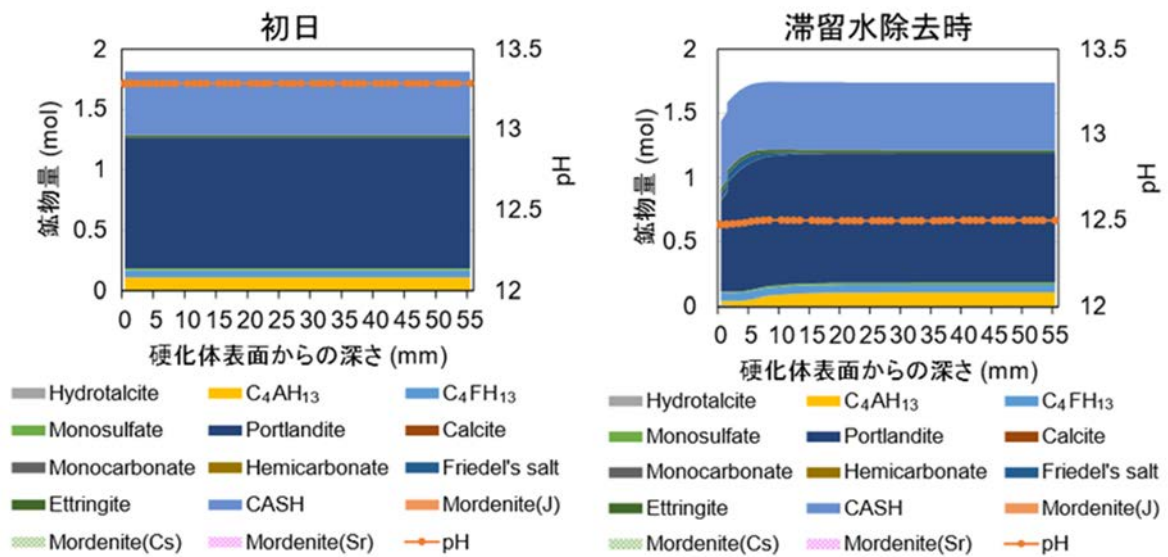


図 3-32 健全飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透
 —pH と鉍物量計算結果 (左: 初日、右: 滞留水除去時)

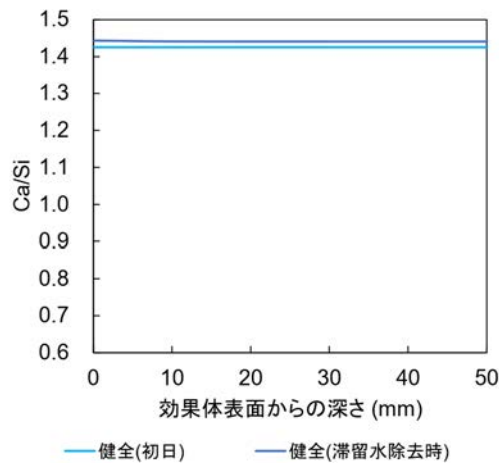


図 3-33 健全飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透
—C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果

図 3-34 に炭酸化飽水状態の OPC コンクリートの 1F タービン建屋地下の滞留水由来の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。また、図 3-35 に浸透初日と滞留水除去時の pH と鈹物量の計算結果、図 3-36 に C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果を示す。炭酸化したコンクリートの初日は炭酸化によって、表面の C-A-S-H の Ca/Si 比が 0.9 程度まで低下し、20 mm 程度まで健全部より Ca/Si 比が低下していた。一方、滞留水除去時では表面から 1.25 mm 程度までは C-A-S-H は分解されて Mordenite(J) と $Al(OH)_3$ が生成しており、20 mm 程度までは健全部よりも Ca/Si 比が低くなっていた。炭酸化飽水状態の OPC コンクリートへの Cs の浸透深さは、健全部で 8 mm 程度、ひび割れ部で 23 mm 程度であった。一方、Sr の浸透深さは健全部で 14 mm 程度、ひび割れ部で 38 mm 程度であった。したがって、Cs は骨材による収着が大きいため、炭酸化による C-A-S-H の Ca/Si 比の低下により収着量が増加したことによって、浸透深さが抑制されたと考えられる。一方、Sr は C-A-S-H による収着が大きく、炭酸化によって C-A-S-H の Ca/Si 比が低下した範囲の収着量が大きくなるため、健全部より浸透が進んだと考えられる。

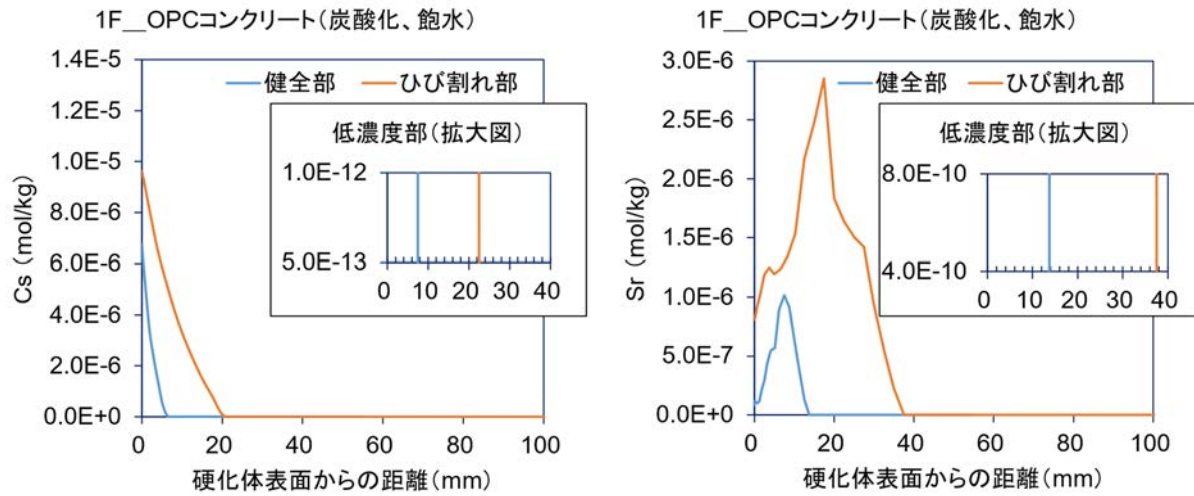


図 3-34 炭酸化飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透プロファイル
 —実験結果と計算結果の比較 (左 : Cs、右 : Sr)

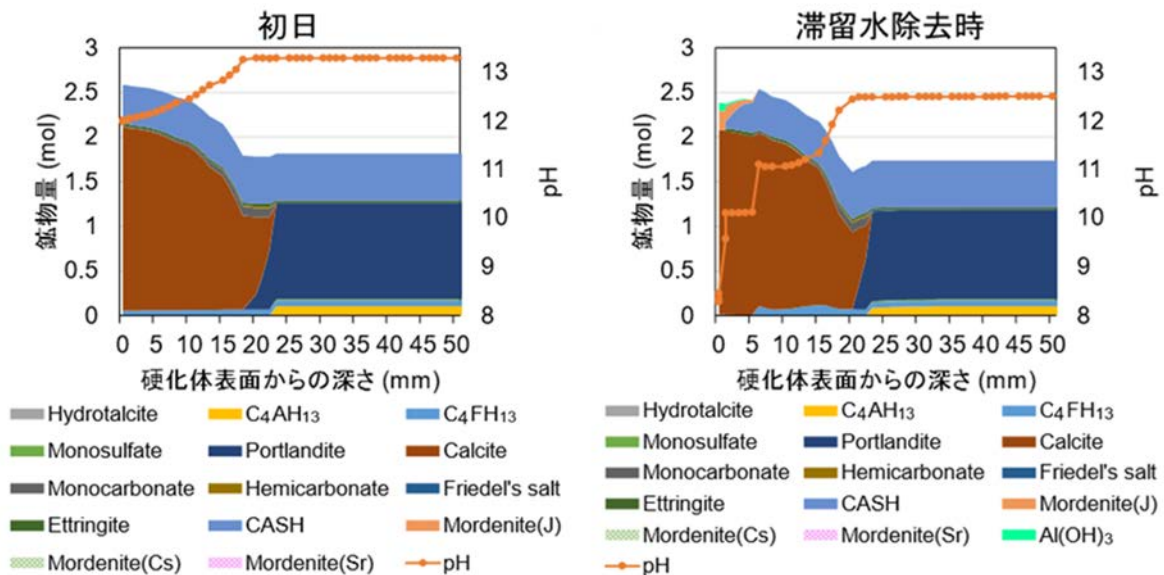


図 3-35 炭酸化飽水-OPC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透
 —pHと鉱物量計算結果 (左 : 初日、右 : 滞留水除去時)

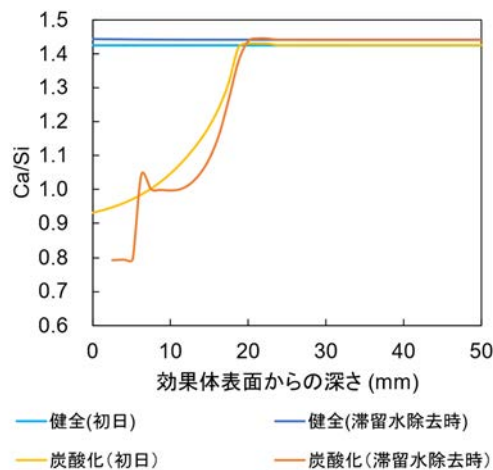


図 3-36 健全飽水および炭酸化飽水-OPC コンクリート
-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透 C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果

図 3-37 に健全飽水状態の FAC コンクリートの 1F タービン建屋地下の滞留水由来の Cs、Sr 浸透プロファイルを示す。また、図 3-38 に浸透初日と滞留水除去時の pH と 鈹物量の計算結果、図 3-39 に C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果を示す。健全飽水状態の OPC コンクリートでは、図 3-33 で示した通り、滞留水除去時の C-A-S-H の Ca/Si 比は低下していなかったが、健全飽水状態の FAC コンクリートでは、図 3-39 で示した通り、セメント量が少ない配合であることも影響し、滞留水除去時には表面付近において C-A-S-H の Ca/Si 比が低下していた。Cs の健全部への浸透深さは 11 mm 程度、ひび割れ部への浸透深さは 31 mm 程度であった。Sr の健全部への浸透深さは 14 mm 程度、ひび割れ部への浸透深さは 44 mm 程度であった。一般的に FAC は OPC よりもイオンの浸透を抑制することが知られているが、本計算条件で使用した FAC コンクリートの配合は OPC コンクリートより水セメント比が大きく、浸透が進む傾向にあるため、OPC 健全飽水状態のコンクリートより浸透深さが大きくなったと考える。

以上の結果より、配合や炭酸化の有無、ひび割れの有無等の条件によって、1F の滞留水由来の Cs、Sr 浸透が異なることが確認できた。

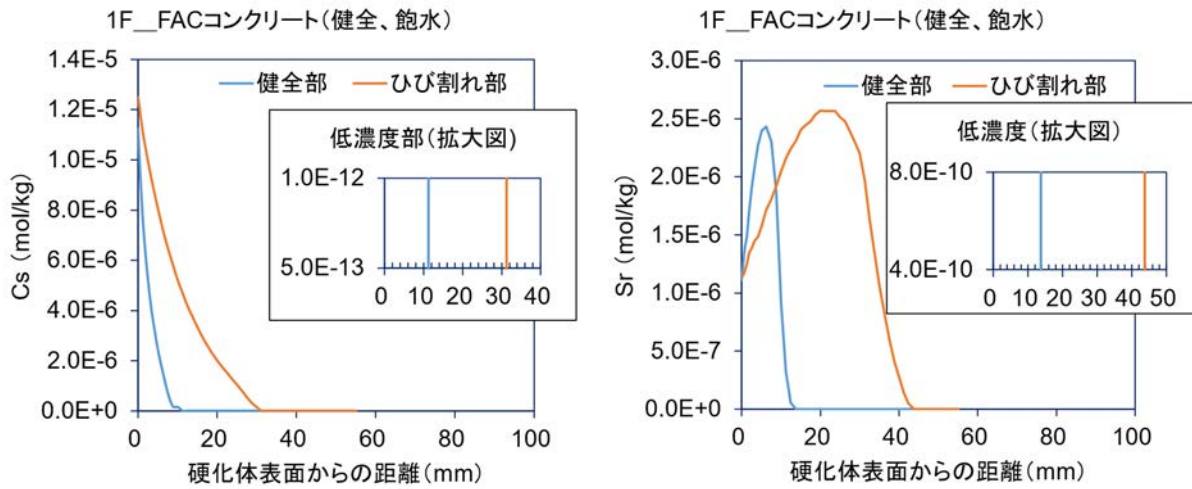


図 3-37 健全飽水-FAC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透プロファイル (左 : Cs、右 : Sr)

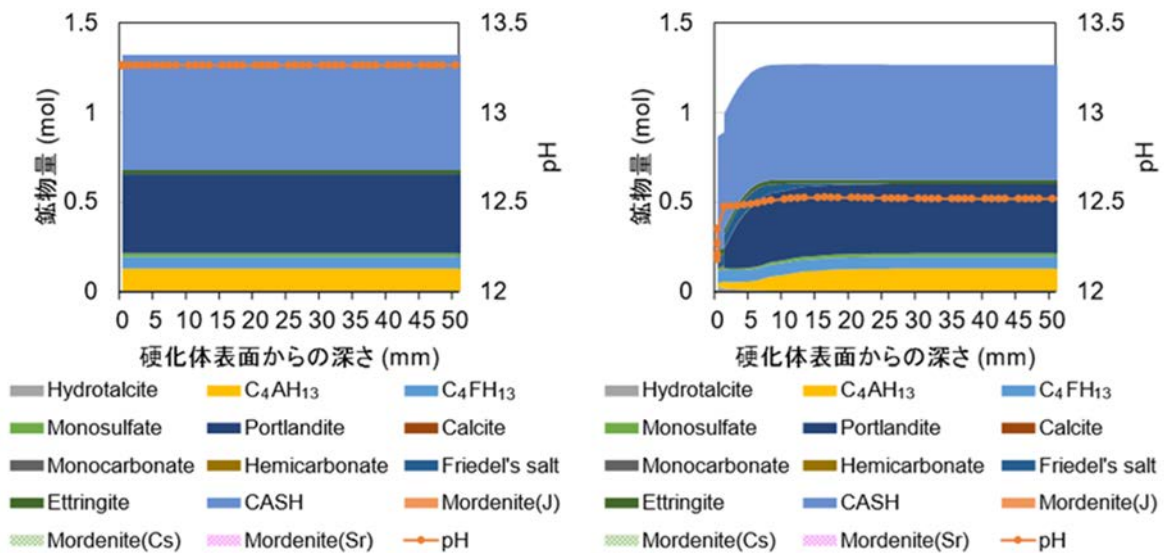


図 3-38 健全飽水-FAC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透 pH と鈷物量計算結果 (左 : 初日、右 : 滞留水除去時)

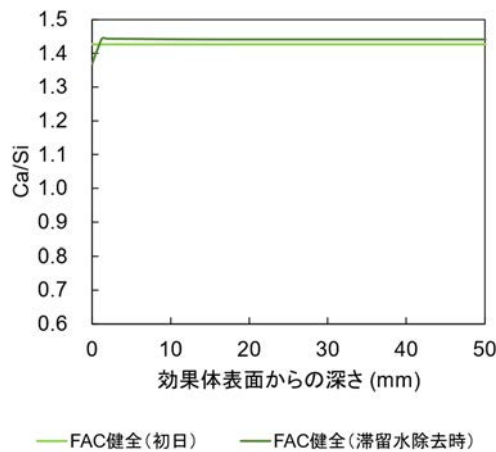


図 3-39 健全飽水-FAC コンクリート-1F タービン建屋地下の滞留水由来の浸透
—C-A-S-H の Ca/Si 比計算結果

4) 令和 4 年度までの成果の取りまとめと今後の課題

令和 4 年度までに、1F のコンクリートの汚染状況を推定するため、コンクリートの材料、液相濃度、ひび割れ、乾燥、炭酸化、溶脱が収着に及ぼす影響をモデルに反映してきた。令和 4 年度までの主な成果と課題を図 3-40 に示す。令和 4 年度までに骨材の収着や C-A-S-H、C-A-S-H 等の炭酸化によって生成するアルミノシリケートゲルによる収着についてモデル化した。また、1F のコンクリートを計算するために境界条件である滞留水の濃度推移や炭酸化部分の組成をモデルに反映する手法も検討した。さらに、様々な状態のコンクリートにおける浸透試験と計算結果との比較により、計算で再現できる要素と再現できていない要素について検討した。Cs については様々な条件において浸透プロファイルを概ね再現できたが、低濃度の浸透では浸透深さを小さく見積る傾向にあった。Sr については浸透深さは一致したが、浸透濃度は一致しない傾向にあった。

健全飽水状態の OPC コンクリートおよび FAC コンクリート、炭酸化飽水状態の OPC コンクリートについて、1F1 号機のタービン建屋地下の滞留水条件で Cs、Sr の浸透を推定した。配合や炭酸化の有無、ひび割れの有無等の条件によって、1F の滞留水由来の Cs、Sr 浸透が異なることが確認できた。1F コンクリート建屋への Cs、Sr の浸透をより正確に推定するためには、コンクリートの配合やひび割れ、炭酸化状態を正しく反映する必要がある。

今後の課題として、正確に汚染量を見積るためには、計算で浸透濃度を再現できなかった部分では何が起きているかを詳細に分析し、モデルに組み込む必要がある。また、1F の Cs、Sr 浸透を予測するためには実験室で作製した試料だけでなく、実構造物の評価を行う必要がある。

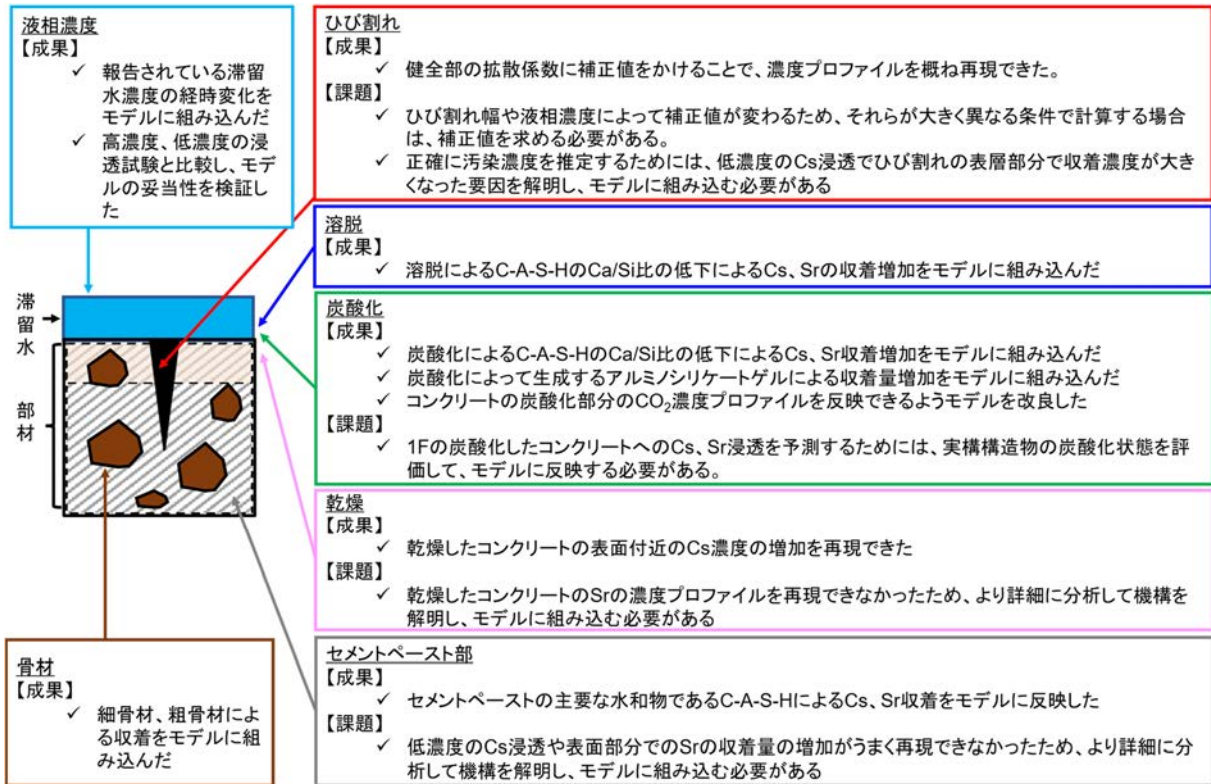


図 3-40 モデルによる核種浸透シミュレーションにおける令和4年度までの主な成果と課題

(3) まとめ

令和4年度は、令和3年度までに課題として挙げられた粗骨材による収着やC-A-S-H等の炭酸化によって生成するアルミノシリケートゲルによる収着をモデルに反映した。また、様々な条件 (OPC/FAC、健全/炭酸化、飽水/乾燥、ひび割れの有/無、液相濃度の高/低) の浸透試験について計算し、計算で再現できる要素と再現できていない要素について検討した。また、改良したプログラムによって1FのコンクリートのCs、Sr浸透を計算し、骨材量や炭酸化程度、ひび割れの有無が浸透に大きく影響することがわかった。

今後の課題として、低濃度でのCs浸透深さやSrの表面濃度が再現できなかったため、それらの部分についてより詳細に分析し、機構を解明してモデルに反映する必要がある。また、1FのCs、Sr浸透を予測するためには実験室で作製した試料だけでなく、実構造物の評価を行い、条件設定に組み込む必要がある。

3.2.2 ダメージを受けたコンクリートの核種移行評価（令和2年度～令和4年度）

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

令和2年度は、放射性核種の移行挙動を評価する上で重要なひび割れ部を考慮した物質移行評価を行うため、試験方法および評価方法について文献調査を行った。Cs、Srを使ったコンクリートのひび割れ部に関する物質移行挙動評価を行った報告はほとんどなく、C1の拡散試験に関する報告を中心に調査した。ひび割れの設定については、ひび割れが一様に存在する分散型と、ひび割れ部とセメントマトリクス部の相を分ける離散型の2つの考え方を比較検討し、浸透深さを考慮するため離散型のひび割れ評価が適切と考えた。想定するひび割れ幅については、女川原子力発電所2号機原子炉建屋の乾燥収縮ひび割れ調査報告^[38]より、平均ひび割れ幅は0.05～0.07 mm、ひび割れ幅0.2 mm以上のものは補修するという前提を考慮し、0.05～0.2 mm程度が現実的と考えた。試験体へのひび割れの導入方法については、硬質ポリ塩化ビニール管で拘束した試験体に対し、耐圧試験機で割裂引張の作用を与えることで、様々な幅のひび割れを作製できることを確認した。一方、ひび割れの開口面から反対側まで貫通したひび割れしか作製できない、除荷後にひび割れの閉塞が起きるためひび割れ幅の制御が難しいという点が課題となった。その他、令和3年度から開始する本試験に先立ち、使用材料（セメントおよび骨材）の組成・物理特性などの分析を行い、1Fの工事報告を参考に調合を検討した上でコンクリートの試験体を作製した。また、試験体内部のひび割れの形状をX線CTにより確認する方法について検討した。

令和3年度は、令和2年度に作製したコンクリートの圧縮強度および静弾性係数を測定するとともに、令和2年度に得られたひび割れ導入に関する課題を踏まえ、ひび割れ試験体の作製方法を改良し、試行した。ひび割れ幅の制御の精度を向上させるため、載荷方法を荷重制御から変位制御式の装置（Instron 3400）に変更するとともに、実構造物（鉄筋コンクリート部材）において想定される非貫通のひび割れを導入する方法を検討し、載荷装置の加圧板と試験体の間に金属棒を挟み、金属棒の設置位置によって深さ方向を制御することで、非貫通ひび割れの試料を作製できることを確認した。φ10×20 cmの円柱供試体より切り出し、ひび割れを導入した試験片については、樹脂被覆して1面暴露状態にし、0.1 MのCsCl+SrCl₂の混合溶液への浸漬試験を開始した。

(2) 令和4年度実施内容および成果

太平洋コンサルタントは、ひび割れ部を考慮した物質移行の評価に資するデータ取得と、ひび割れを含むコンクリートの物質移行モデル化を目的に、以下の内容を実施した。

a. 安定核種を使用した浸透試験

太平洋コンサルタントは、令和3年度までに成形し、浸漬試験に供した試験体について、EPMAによりCs、Srの浸透深さを測定し、ひび割れの状態ごとの浸透挙動を評価した。

b. 安定核種を使用した試験に基づく核種の移行評価

令和2年度の文献調査および浸漬試験の結果を踏まえ、ひび割れ部における浸透挙動のモデル化手法を検討した。また、長期の浸透挙動を計算した。

太平洋セメントは、令和3年度に引き続き、ひび割れを有するコンクリート部材の核種移行評価の手法検討において、太平洋コンサルタントによる調査および検討結果に基づく実施計画の策定に参画し、状態設定の妥当性と方向性について検討した。

令和3年度までに成形したコンクリート試験体を加工してひび割れを導入した試験片を複数個作製し、CsClとSrCl₂の混合溶液に浸漬して、断面のEPMA面分析を実施した。面

分析の結果に基づき、ひび割れ部における浸透挙動の評価手法を検討し、検討した手法により、長期の浸透挙動を計算した。

① 安定核種を使用した浸透試験

令和4年度は、ひび割れ部を考慮した物質移行の評価に資するデータ取得と、ひび割れを含むコンクリートの物質移行のモデル化を目的に、令和3年度までに成形し、浸漬試験に供した試験体について、EPMAによりCs、Srの浸透深さを測定し、ひび割れの状態ごとの浸透挙動を評価した。

1) 試験方法

令和3年度に成形した封緘養生状態のコンクリート試験体より試験片(6×8×2 cm)を切り出し、非貫通ひび割れを導入し、0.1 MのCsClとSrCl₂混合溶液に浸漬した。1週間後、浸漬試料を取り出して断面を切り出し、土木学会基準「EPMA法によるコンクリート中の元素の面分析方法」(JSCE-G 574-2013)を参考に、EPMAにより元素分布の面分析を実施した。装置は日本電子社製電子線マイクロアナライザーJXA-8200を使用し、加速電圧15 kV、プローブ電流200 nA、プローブ径50 μmでCl、Cs、Srの元素濃度を、単独の標準物質との信号強度との比例計算による比例法で測定した。試験体作製時の計画調合を表3-14に示す。

表 3-14 コンクリートの計画調合

調合名	水 粉体比 (W/P)	細骨材 率 (s/a)	単位量(kg/m ³)						AE 剤 添加率 (P×%)
			水 (W)	粉体(P)		細骨材 SS	粗骨材 SG-2005	粗骨材 SG-1305	
				普通 セメント	フライ アッシュ				
G. max20mm	0.55	45.5 %	182	281	49	772	894	—	0.65
G. max13mm							—	917	0.50

※AE 剤は 100 倍希釈し、練り混ぜ水(W)の一部として使用。

SS:現場細骨材、SG-2005:粒度が 20~5 mm の現場粗骨材、SG-1305:粒度が 13~5 mm の現場粗骨材

2) 試験結果

浸漬試料の EPMA 面分析結果を図 3-41 に示す。図 3-41 より、Cs、Sr、Cl ともに目視確認できたひび割れにほぼ沿って移動していることがわかるが、元素によって挙動が異なった。

Cs は暴露面およびひび割れ周辺の骨材を中心に多く分布し、ひび割れ沿いでもセメントペースト部からは検出されなかった。これは Cs がセメントペーストに浸透しなかったということではなく、Cs がセメントペーストには吸着されにくく、ある種の骨材に多く吸着される特性を持つためであると考えられる。Cs の分布から考えると、骨材へもイオン浸透は起きていることがわかる。また Sr も暴露表面およびひび割れに沿って分布しているが、表層やひび割れ部からセメントペーストへの拡散はごくわずかであり、ひび割れ内部での濃度分布に表層から深部まで大きな変化は認められず、Cs ほどではないが一部骨材への浸透が認められた。Sr は Cs よりもセメントペーストへの浸透速度が遅いため、ひび割れに沿って溶液が急速に浸透しても、ひび割れからセメントペーストへ浸透しなかったものと推定できる。Cl はセメントペースト中の Ca アルミネート系水和物の関連の硫酸イオンを Cl イオンが置換して Cl が吸着されるため、ひび割れ部沿いからセメントペースト部へ拡散した様子が顕著に測定された。Cl は骨材内部には分布していないが、骨材内部に浸透しないということではなく、骨材には吸着されないためであると考えられる。

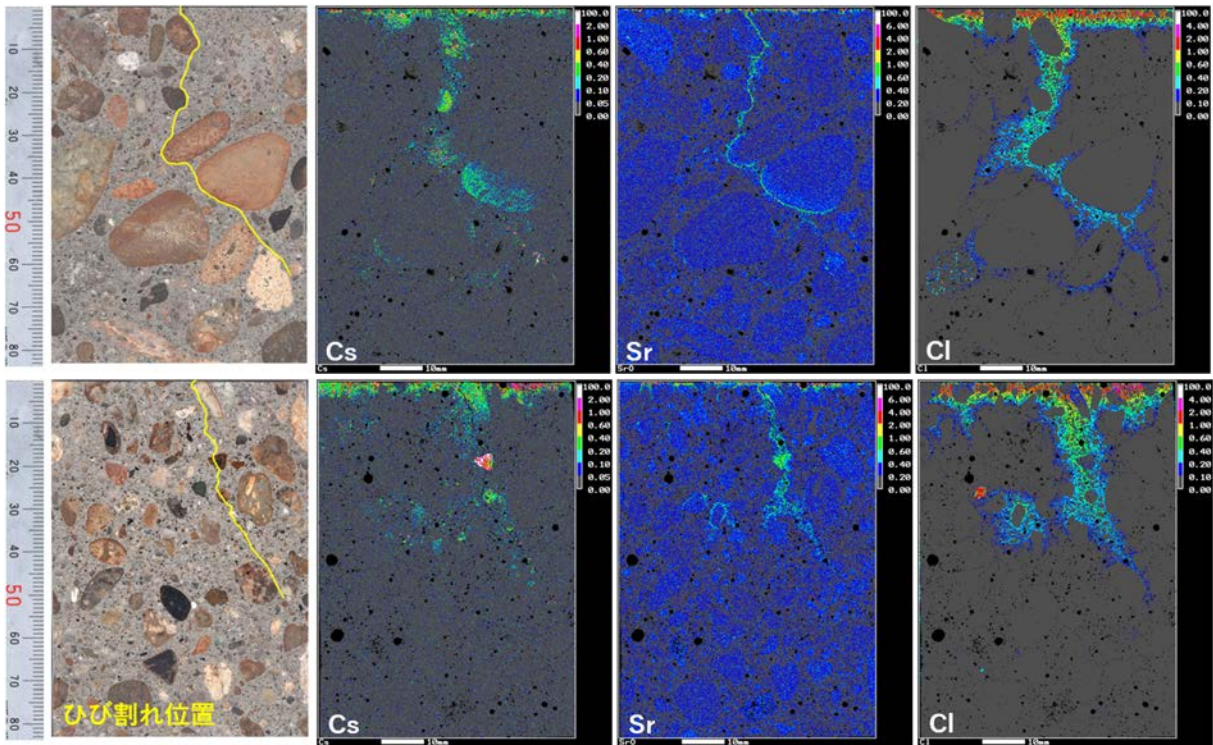


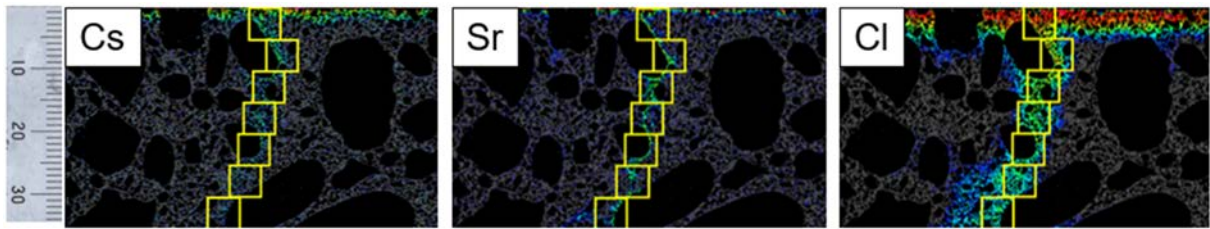
図 3-41 浸漬試料の EPMA 面分析結果

(浸透面ひび割れ幅：[上段] 0.08 mm [下段] 0.1 mm)

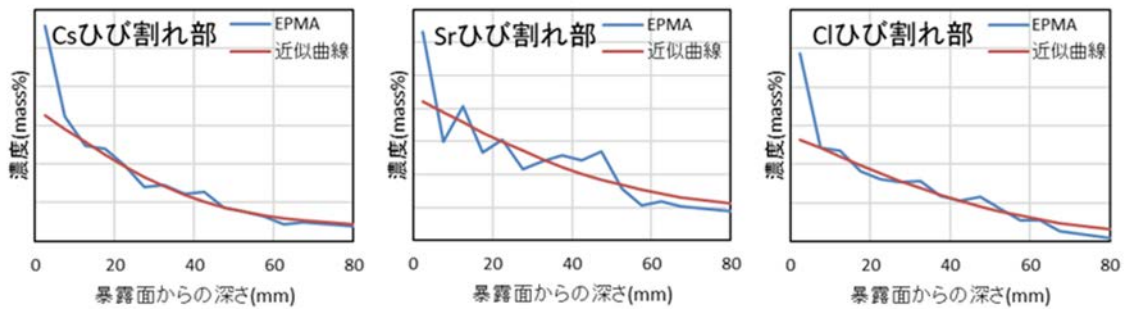
Sr が骨材にも微量存在している結果となっているが、EPMA の元素分離の特性上、Si と Sr を完全に分離することが難しく、骨材部分は Si の信号であると考えられる。

② 安定核種を使用した試験に基づく元素の移行評価

ひび割れ部における元素の浸透挙動の評価手法の検討として、浸漬した非貫通ひび割れ試料を用いて、ひび割れ部の濃度プロファイルの作成方法について検討した (図 3-42)。EPMA の面分析結果より、ひび割れに沿うようにおよそ 5 mm×5 mm のエリアごとの濃度を平均化し、5 mm 間隔の濃度プロファイルを得た。この濃度プロファイルを Fick の拡散方程式にフィッティングしてひび割れ周辺部の見かけの拡散係数とした。健全部の見かけの拡散係数は、ひび割れから浸透の影響を受けないよう離れた位置の深さごとの濃度プロファイルを使って算出した。



5mm間隔でひび割れ沿いを四角形に切り取り、四角形内の平均濃度を算出して深さvs濃度の濃度プロファイルを作成



フィックの式を使って拡散係数を算出

図 3-42 ひび割れ部における濃度プロファイルの作成方法

Cl、Cs、Srのひび無し部とひび割れ周辺部の拡散係数を表 3-15 に示す。ひび割れ部の拡散係数は、Clはひび無し部より約2桁、Csは約3桁、Srは約4桁大きくなった。また、開口部のひび割れ幅0.08 mmと0.1 mmではほとんど差はなく、一定の拡散係数にほぼ収束しているように見られる。また、それぞれのイオンの自己拡散係数は、Clは $2.03E-09$ 、Csは $2.06E-09$ 、Srは $7.90E-10$ で、ほぼ同程度であった。

以上の結果に基づく、長期の浸透挙動評価については、3.4節「処理・処分を見据えたコンクリート廃棄物の状態検討」で述べる。

表 3-15 ひび無し部とひび割れ部周辺の拡散係数

	ひび無し部の 拡散係数	ひび割れ部の拡散係数		自己拡散係数
		0.08 mm	0.1 mm	
Cl	$7.88E-12$	$1.81E-09$	$8.36E-10$	$2.03E-09$
Cs	$1.93E-12$	$9.51E-10$	$7.82E-10$	$2.06E-09$
Sr	$3.72E-14$	$1.55E-09$	$1.03E-09$	$7.90E-10$

(単位: m^2/s)

3.3 実際の核種の種類・濃度を考慮した収着/浸透挙動評価

3.3.1 低濃度領域での¹³⁷Csと⁹⁰Srの競合浸透の評価（令和2年度～令和4年度）

（再委託先：国立環境研究所、北海道大学）

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

令和2年度は、翌年度以降に測定するひび割れを含んだ従来よりも大きなコンクリート試料（60×60×30 mm）を用い、浸透プロファイルを測定するための手順開発の準備を行った。

令和3年度は、状態（炭酸化の有無と含水状態）が異なるひび割れのない1Fに使用された川砂利を粉砕した砕砂のOPCモルタル試料を用い、浸漬条件の履歴がCsとSr浸透挙動に与える影響を調査し、以下の結果を得た。

- ・単純塩化物溶液に比べ、現実の事故時の汚染水は海水と炉心水の混合物であるため、汚染水中の共存イオン（モル濃度比でCsに対してはKが2000倍、Srに対してはCaが100倍）の影響により、同一のCs濃度、Sr濃度であっても、表層での吸着濃度は、CsもSrも1桁以上低下した。これは、CsもSrもコンクリートの構成物へのイオン交換反応であるため、考慮対象イオンの濃度そのものではなく、それぞれが競争吸着するイオンの濃度比率が支配要因となるためである。汚染中の濃度は、Csは3.5 μM、Srは71 μMと低濃度であるため、それぞれのRIで標識した実験であるが、低濃度であることよりも、競争吸着するKもしくはCaとの大きな濃度差を再現することが重要である。この状況は、コンクリート構成物のイオン交換容量に比べ、溶液中のイオン量が十分に存在するという条件を前提としている。
- ・健全（非炭酸化）飽水試料に比較し、乾燥炭酸化試料では移流により、1時間以内に数mm程度深部への浸透が認められた。
- ・実汚染履歴に近い条件を考え、乾燥炭酸化試料を1日間海水に浸漬し、さらに初期汚染水に2ヶ月間浸漬した。この操作により、Csは5 mmから9 mmへとより深部に浸漬した。Srについては海水の影響が試験体のばらつきのためか明確な結果が得られなかった。より長期での浸透を調査が必要であった。

さらに、ひび割れ幅が異なる1Fに使用された川砂利を粉砕した砕砂のOPCモルタル試験体（封緘養生）に対する、初期汚染水からのCsとSrの浸透を調べ、以下の結果を得た。

- ・ひび割れ幅が0.1 mm程度の場合、7日材齢で浸透深さは10～20 mm程度となった。CsとSrのひび割れ部での浸透深さに大きな差はなかったが、ばらつきが大きい試験であることからSrの浸透が不明瞭でありさらなる検討が望ましい結果となった。
- ・この際、表層部に比べ2 mm深部の濃度は1桁以上低下した。
- ・ひび割れ幅が0.1 mmから0.25 mmとなると、ひび割れ部のCs浸透深さは15 mmから30 mmへ倍増した。
- ・材齢を7日から64日にした場合、ひび割れ部の浸透がより早く進むわけではなく、ひび割れがない部分の浸透と大差なかった。

(2) 令和4年度実施内容および成果

① はじめに

令和3年度の検討により、汚染履歴がCsとSrの浸透に与える影響が、実使用骨材を粉砕した砕砂を用いたモルタルの試験により明らかになったので、定量的浸透予測を行うため、浸漬約1年材齢における見かけの拡散係数を算定する。

令和3年度ではひび割れを有するモルタルで試験を行ったが、令和4年度では、ひび割れ

を有する1Fで使用された川砂利のFACコンクリートへの浸透試験を行う。この元素浸透は、試験体へひび割れを導入することが容易ではなく、試験体ごとのばらつきの影響を受けるため、試験体数を増やして、2ヶ月までの浸透試験を行う。

これらの評価では、固液間の相互作用が浸透に影響する可能性があり、現実の汚染の履歴と汚染水の低濃度領域の化学組成を反映した実験を行う必要があった。そこで、北海道大学はCsとSrの浸透評価のために、RIである ^{137}Cs と ^{90}Sr により標識した溶液を用いた浸透実験を行い、IPを用いて、定量マッピングした。

国立環境研究所は、ひび割れたコンクリートへのRI浸透実験とIPによる評価に関し北海道大学での検討の一部実験を分担するとともに支援した。

ひび割れを導入したコンクリートの実汚染履歴を再現した溶液への浸漬実験を行い、 ^{137}Cs と ^{90}Sr 浸透をIPにより定量マッピングし、Csは0.05 mmのような小さいひび割れは浸透しにくいこと、SrはCsよりもひび割れを浸透しやすく、ひび割れ幅が0.04 mmであってもSrは浸透することがわかった。

さらに、事故後の炉心水の同位体組成と海水との混合度合いを推定し、浸透実験で得られた物質濃度(mol/kg)を放射能濃度(Bq/kg)へ換算し、拡散係数を用いた深部への ^{137}Cs と ^{90}Sr の浸透深さの算定も行った。

② 実験方法

1) 材料

使用材料は、普通ポルトランドセメント（モルタル用）もしくはフライアッシュで15%置換したFAC（コンクリート用）、石灰石砕砂、現場粗骨材（コンクリートでは5~13 mmの粗骨材、モルタルでは粉碎し5 mm以下に調整）、水道水を用いた。水セメント比0.55、砂セメント比3でモルタルを混合し、3ヶ月以上封緘養生した試料を浸漬試験用に加工した。モルタル試料は50×50×20 mm、コンクリート試料は60×60×30 mmの直方体とした。

ひび割れのないモルタル試料の浸漬試験は、炭酸化や溶脱のない飽水状態の健全試料と、健全試料を3 mmまで促進炭酸化させた乾燥試料に対して行った。

ひび割れコンクリート試験体は、1F建屋コンクリートの調合情報を参考に、普通ポルトランドセメント、フライアッシュ、現場細骨材、現場粗骨材（粒径5~13 mm）、水道水を使用し、表 3-14 で示したG.max13の調合（水セメント比0.55、細骨材率=45.5 %）で作製した後、直方体に切り出した。ひび割れは直方体試験体の端部を丸鋼で圧縮荷重し、ひび割れを発生させた。ひび割れ導入の方法の性質上、ひび割れを再現良く発生させることは困難であった。ひび割れは1面から発生し、他の面に進展した。ひび割れ幅は最大開口部で測定した。作製したひび割れ試験体に対して60 %RH調湿を行い、CO₂濃度5 %で4週の促進炭酸化を行った。促進炭酸化試料はおよそ7 mmまで中性化していることをフェノールフタレイン噴霧によって確認した。なお、中性化と炭酸化の深さは同一ではなく、炭酸化の程度も遷移的であるとえられるものの、詳細な分析を行うまでには至っていない。

2) 浸漬試験

モルタル試料の浸透表面1面を残し、樹脂塗装したのちに ^{137}Cs 、 ^{90}Sr で標識した溶液へ浸漬した。浸漬条件は、事故直後の汚染水濃度を考慮した。表 3-16 に示した初期汚染水の推定化学組成によると、RbとCsを除いて、他のイオン濃度は海水の約80 wt%となっており、海水と炉内の冷却水が混合したものと考えられる。表 3-17 に実験水準を示す。試料は、炭酸化をしていない健全なモルタルの飽水状態（健全飽水）と乾燥炭酸化したものの2種類である。浸漬条件は、Cs、Srそれぞれの単純塩化物溶液、想定される事故直後の炉心水と海水の混合溶液（初期汚染水）、現実の汚染履歴を考慮し海水に1日浸漬しその後初期汚染水に

変えて浸漬（汚染履歴再現）の3種類である。

ひび割れコンクリート試料は、乾燥炭酸化したものであり、モルタル試料と同様に樹脂塗装し、履歴再現条件で浸漬試験を行った。ひび割れの状況を合わせて実験水準を表 3-18 に示す。

表 3-16 浸漬溶液の組成 [25]

日付	Na	K	Rb	Cs	Mg	Ca	Sr	Cl	SO ₄	対海水
単位	ppm	ppm	ppb	ppb	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	wt%
2011/3/12	8,100	309	96.1	467	960	310	6.22	15,000	670	80
2017/3/1	150	5.57	1.73	6.0	19	43	0.109	270	110	1.5
海水*	10,780	399	20	0.306	1,280	412	7.8	19,350	530	100
原子量	23.0	39.1	85.5	132.9	24.3	40.1	87.6	35.5	96.0	-
単位	mM	mM	μM	μM	mM	mM	μM	mM	mM	%
2011/3/12	352	7.90	1.12	3.51	39.5	7.73	71	423	6.98	80
2017/3/1	6.52	0.142	0.0202	0.045	0.782	1.07	1.24	7.61	1.15	1.5
海水*	469	10.2	0.234	0.00230	52.7	10.3	89.0	545	5.52	100

*) 野崎^[39]

表 3-17 モルタルの浸漬試験の水準と測定結果から求めた見かけの拡散係数

No	試料	溶液濃度 (μM)		RI (Bq/mL)		液量 (mL)	浸漬液特性	見かけの拡散係数 (10 ⁻¹³ m ² /s)	
		Cs	Sr	Cs	Sr			2ヶ月*	1年**
1	飽水健全	3.5		100		500	単純塩化物	0.5	1.0
2	粗骨材粉		71		20	500	単純塩化物	0.9	0.3
14	砕モルタル	3.5	71	100		500	海水 1d+初期汚染水	3.0	9.2
15	ル	3.5	71		20	500	海水 1d+初期汚染水	1.8	0.3
6		3.5		100		750	単純塩化物	0.9	0.3
7	乾燥炭酸		71		20	750	単純塩化物	1.3	0.3
9	化粗骨材	3.5	71	100		750	初期汚染水	2.9	1.7
10	粉碎モルタル	3.5	71		20	750	初期汚染水	32	0.7
12		3.5	71	100		750	海水 1d+初期汚染水	2.3	1.9
13		3.5	71		20	750	海水 1d+初期汚染水	1.8	1.5

*2ヶ月：No. 1, 2は56日、他は48日

**1年：No. 1, 2は435日、他は330日

表 3-18 ひび割れコンクリート（促進炭酸化）の浸漬実験水準
 (浸漬は汚染履歴再現条件、Cs = 3.5 μM、Sr = 71 μM、500 mL、浸漬期間 7, 60 日)

No	ひび割れ		RI (Bq/mL)	
	開口幅(mm)	状態	Cs	Sr
G13-17	0.03	非貫通	250	0
G13-18	0.08	非貫通	0	200
G13-19	0.04	非貫通	250	0
G13-20	0.04	非貫通	0	200
G13-23	0.15	貫通	250	0
G13-25	0.20	貫通	0	200
G13-26	0.20	貫通	250	0
G13-27	0.25	貫通	0	200

3) 測定

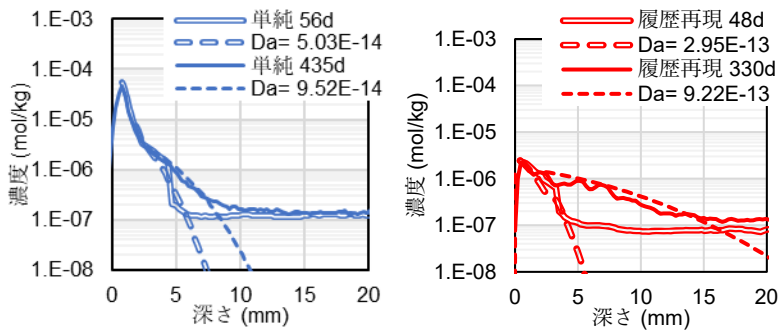
浸漬終了後、厚さ約 1.6 mm の薄片に加工し、イメージングプレート (IP、GE Healthcare 製 BAS IP MS 2025E) 上に一定期間密着暴露を行い、放射性物質の分布を取得した。画像読み取り装置 (富士フイルム製 Typhoon FRA 7000) を用いて PSL 値 (IP に蓄積された信号強度) の分布を取得した。データ解析ソフトは Image Quant TL (IQTL 製) を用いた。β線の強度は PSL 値として得られるが、濃度既知の標準濃度セメントペースト試料を同時に暴露し、その PSL 値と比較することで試料の PSL 値を放射能濃度 (Bq/kg) に変換した。さらに浸漬溶液の放射能濃度と物質濃度の比から試料の放射能濃度を物質濃度 (mol/kg) に変換した。

なお ⁹⁰Sr の測定は、⁹⁰Sr の β 壊変により ⁹⁰Y が生じ、半減期 64 時間で安定核種の ⁹⁰Zr に β 壊変するため、⁹⁰Sr の溶液中には常に一定量の ⁹⁰Y が存在している。⁹⁰Y は水酸化物の溶解度が低いため、コンクリート内部には浸透しないが表層に濃縮していると予想される。そこで ⁹⁰Y の影響を除くため、64 時間の 5 倍 (13 日、強度は 3 % まで減衰) を経過した後測定した IP 像をデータ解析に用いた。

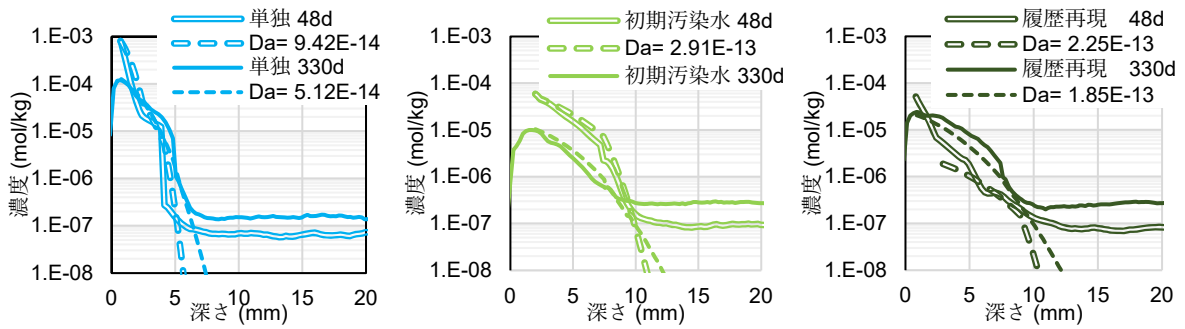
③ 結果

1) モルタルの長期浸漬

浸透試験により得られた Cs と Sr の濃度プロファイルをそれぞれ図 3-43 と図 3-44 に示す。図にはフィックの拡散側にフィッティングした結果も示す。フィッティングにより得られた見かけの拡散係数 (Da) の一覧は表 3-17 に示した。多くの場合で長期材齢の方が小さい Da となったが、飽水健全モルタルの履歴再現条件での Cs 浸透など一部では長期材齢で Da が大きくなった。また、乾燥炭酸化モルタルの初期汚染水条件での Sr 浸透は、短期材齢で例外的に浸透が大きくなった。これらの理由は不明であるが、全体的な傾向と異なるこれらの水準は試験片の不均一性など、RI 実験の制約で小型試験体にせざるを得なかったための避けがたい実験誤差である可能性はある。各条件での浸透への影響は長期材齢においても、すでに報告した短期材齢^[1]と同じである。

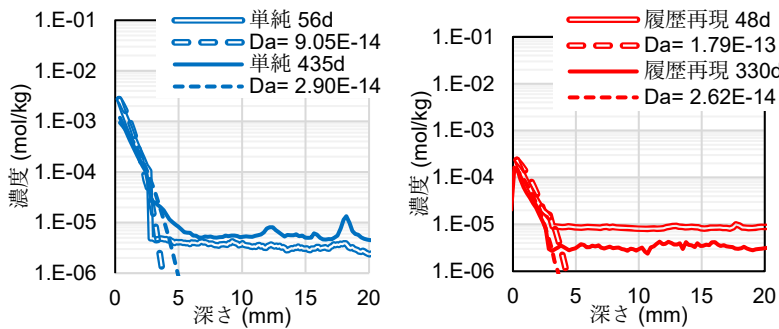


(a) 健全飽水

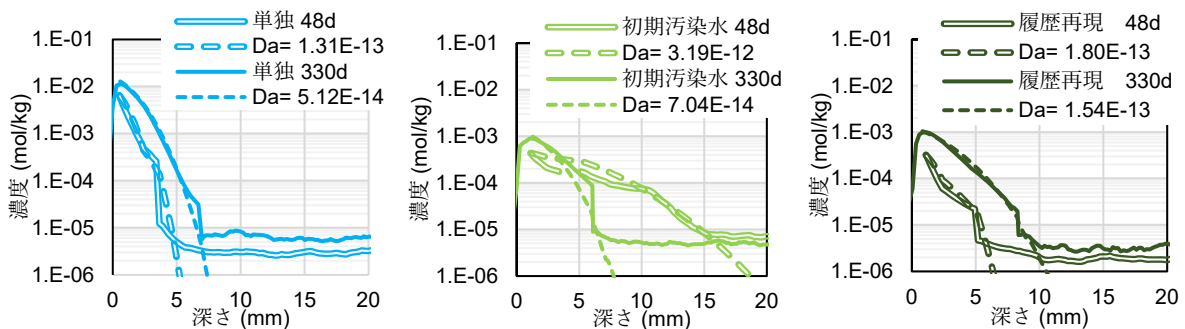


(b) 乾燥炭酸化

図 3-43 OPC モルタル試料の濃度プロファイルへのフィックの法則によるフィッティング(Cs)



(a) 健全飽水



(b) 乾燥炭酸化

図 3-44 OPC モルタル試料の濃度プロファイルへのフィックの法則によるフィッティング(Sr)

浸透実験では、骨材やセメント中の⁴⁰Kなど放射性核種が存在するため、バックグラウンドの放射線強度は一定値が存在しており、¹³⁷Csや⁹⁰Srの低濃度領域への浸透はIPでは評価できない。そこで、浸透プロファイルをフィックの拡散則にフィッティングし見かけの拡散係数を求め、この見かけの拡散係数と実験により得られた表面濃度から浸透プロファイルを再現することで実験値の検出下限以下の浸透予測が可能になる。表 3-19 に炉内のCsとSr全同位体構成比率と海水からの安定同位体混入の影響を考慮した汚染水中の検討対象核種(¹³⁷Csと⁹⁰Sr)の割合を示す。なお表 3-19 は、JAEAが取りまとめた「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」の報告書に基づく^[40]。事故直後では¹³⁷Csは全Csの約40%で、⁹⁰Srは全Srの約3%である。¹³⁷Cs 1 molあたりの放射能は 4.4×10^{14} Bq/mol、⁹⁰Sr 1 molあたりの放射能は 9.2×10^{13} Bq/molなので、クリアランスと考えられる100 Bq/kgに相当するCs濃度は 5×10^{-13} mol/kg、1000 Bq/kgに相当するSr濃度は 4×10^{-10} mol/kgである。

表 3-19 汚染水中の核種割合^[40]

半減期	核種	1F-1号機core当たりのFP重量(g/core)				FP核種割合%			天然組成%		推定した汚染水濃度における海水寄与割合%		汚染水中の核種割合%			
		0YR	1.0D	5.0YR	10.0YR	1.0D	5.0YR	10.0YR	Sr84	0.6	2011	2017	2011	2017		
stable	SR86	3.02E+01	3.03E+01	3.12E+01	3.12E+01	0.1	0.1	0.1	SR86	9.9	Sr	95.3	99.4	SR86	9.4	9.8
stable	SR87	1.09E-01	1.09E-01	1.09E-01	1.09E-01	0.0	0.0	0.0	SR87	7.0				SR87	6.7	7.0
stable	SR88	1.97E+04	1.97E+04	1.97E+04	1.97E+04	39.2	43.1	46.1	SR88	82.6				SR88	80.5	82.3
50.563d	SR89	1.27E+03	1.25E+03	1.68E-08	2.22E-19	2.5	0.0	0.0						SR89	0.1	0.0
28.79y	SR90	2.93E+04	2.93E+04	2.59E+04	2.30E+04	58.3	56.8	53.9						SR90	2.7	0.3
9.65h	SR91	1.39E+01	2.48E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						SR91	0.0	0.0
2.61h	SR92	4.17E+00	9.03E-03	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						SR92	0.0	0.0
7.43m	SR93	2.14E-01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						SR93	0.0	0.0
	Sr sum	5.03E+04	5.02E+04	4.57E+04	4.27E+04											
6.48d	CS132	4.29E-03	3.86E-03	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						CS132	0.0	0.0
stable	CS133	6.24E+04	6.25E+04	6.29E+04	6.29E+04	40.5	43.5	45.7	CS133	100	Cs	0.0	0.0	CS133	40.6	43.6
2.0652y	CS134	3.97E+03	3.97E+03	7.41E+02	1.38E+02	2.6	0.5	0.1						CS134	2.6	0.5
2.912h	CS134M	1.55E-01	5.01E-04	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						CS134M	0.0	0.0
2.3e6y	CS135	2.47E+04	2.47E+04	2.47E+04	2.47E+04	16.0	17.1	17.9						CS135	16.0	17.1
53m	CS135M	1.12E-02	7.42E-11	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						CS135M	0.0	0.0
13.16d	CS136	2.00E+01	1.90E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						CS136	0.0	0.0
30.08y	CS137	6.29E+04	6.29E+04	5.61E+04	5.00E+04	40.9	38.8	36.3						CS137	40.8	38.8
33.41m	CS138	1.75E+00	3.14E-13	0.00E+00	0.00E+00	0.0	0.0	0.0						CS138	0.0	0.0
	Cs sum	1.54E+05	1.54E+05	1.44E+05	1.38E+05											

図 3-45 に1年浸漬時のフィッティングにより求めた見かけの拡散係数による計算プロファイルを示す。現実の汚染に最も近い、乾燥炭酸化モルタルの汚染履歴再現条件での浸漬結果からの推定値を示す。クリアランスレベルとなるのは、Csでは19 mm、Srでは15 mmとなった。同条件で、タービンピットの滞留水が除去されるまでの予測をする場合、例えば2018年3月に滞留水が除去されたとすると、浸漬条件にあったのは7年間であるため、 $\sqrt{7} = 2.65$ 倍深く、Csは50 mm、Srは40 mmまで浸透することになる。汚染水は浄化システムにより、すべての元素の濃度が低下しているが、イオン交換体中のイオン組成に影響するのはK/Cs比とCa/Sr比であり、表 3-16 からK/Cs比は2300倍から3200倍と大きくは変化していない、Ca/Sr比は110倍から860倍と増加している。また、安定核種と放射性核種の割合については、表 3-19 に示すように¹³⁷Csでは変化がないが、⁹⁰Srでは1/10に低下している。したがって、Csの濃度プロファイルとしては経時的な組成変化の影響は小さいと考えられる。⁹⁰Srについては、表面濃度は実際にはこの計算よりも低下し、浸透深さも減少している可能性がある。

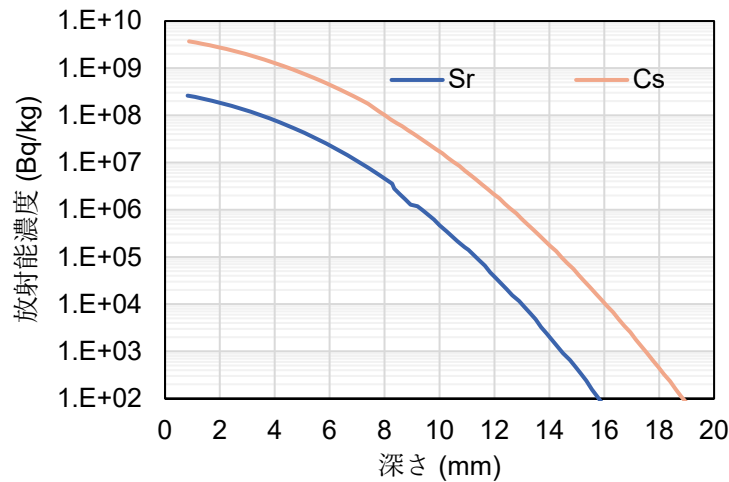


図 3-45 1年浸漬のフィックの拡散則による計算浸透プロファイル
(乾燥炭酸化モルタル試料、汚染履歴再現条件での浸漬)

2) ひび割れコンクリートへの浸透挙動

ひび割れを導入した乾燥炭酸化したコンクリートへの材齢 60 日における Cs の浸透状況の IP 像を図 3-46 に示す。ひび割れが 0.03 mm の場合はひび割れの有無により浸透状況は変わらないが（ひび割れは試験体中央部に存在しているが IP 像では見えない）、ひび割れが 0.2 mm となるとひび割れに沿った浸透が明確に認められる。

ひび割れがない部分と、ひび割れ部分の濃度プロファイルを得るため、IP 像に幅 5 mm で奥行きは試験体寸法全体とし、1×200 分割のメッシュを設置した（図 3-47）。濃度プロファイルを図 3-48 にひび割れがない部分と、ひび割れ部分の濃度プロファイルを示す。ひび割れ部へより浸透している様子が明確に表れている。材齢 7 日から 60 日にかけて、ひび割れがない部位でも浸透深さは大きくなるが、ひび割れ部での浸透深さも同程度であった。ひび割れ部であるからと言って、長期的に深部へより早く浸透するかどうかは不明確である。

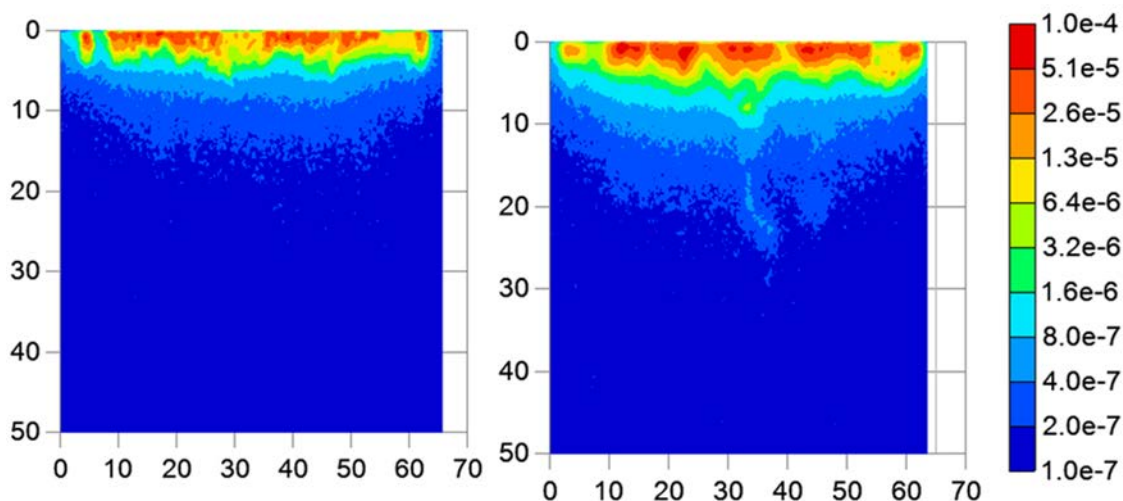


図 3-46 ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Cs 浸透
(表層でのひび割れ幅：左 0.03 mm、右 0.2 mm)

(乾燥炭酸化、汚染履歴再現条件 60 日、xy 軸は位置 (mm)、凡例は物質濃度 (mol/kg))

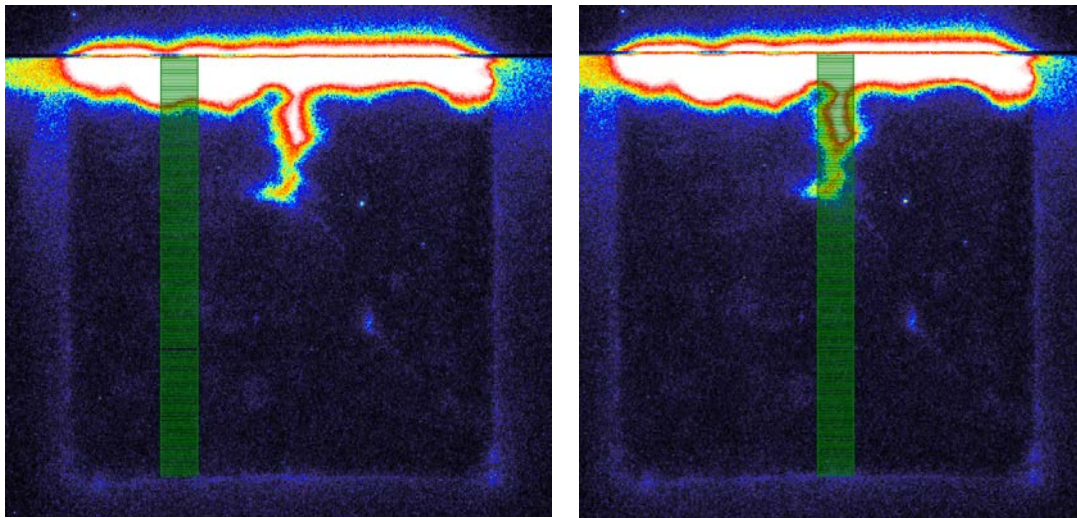


図 3-47 浸透プロファイル取得のためのメッシュの設定方法の例
(図 3-46 の右の場合)

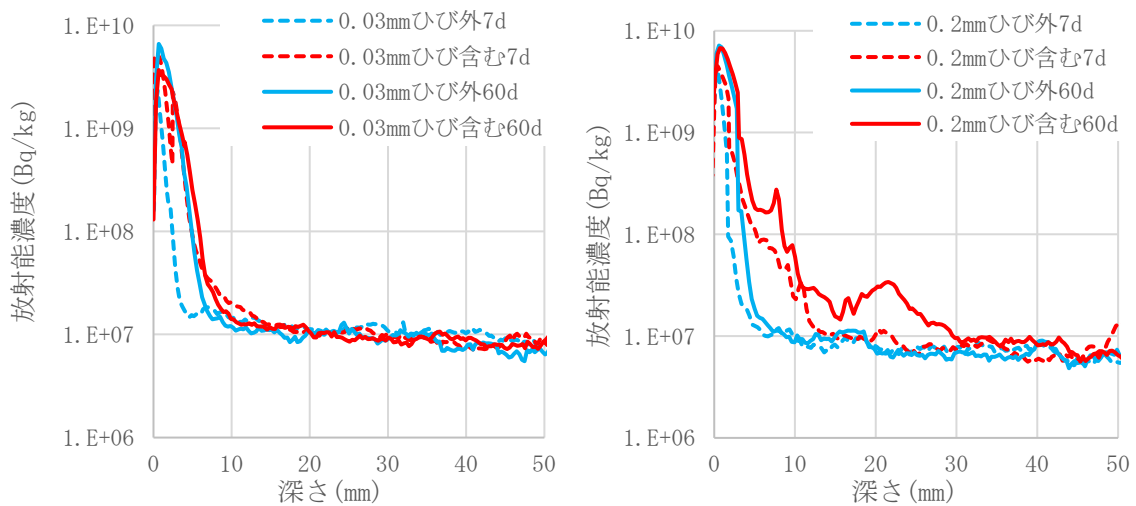


図 3-48 ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Cs 浸透プロファイル

ひび割れを導入した乾燥炭酸化したコンクリートへの材齢 60 日における Sr の浸透状況の IP 像を図 3-49 に示す。Cs と異なりひび割れが 0.04 mm と小さい場合でもひび割れに沿った浸透が不明瞭ながら認められる。ひび割れが 0.2 mm となるとひび割れに沿った浸透が明確に認められる。なお、試験体端部にも濃縮が認められるが、これはエポキシ樹脂に Sr が浸透しているものと考えられる。

ひび割れがない部分と、ひび割れを含む幅 10 mm の部分の濃度プロファイルを図 3-50 に示す。ひび割れ部への浸透が明確に表れている。材齢 7 日から 60 日にかけての浸透深さの変化は Cs と同様であった。

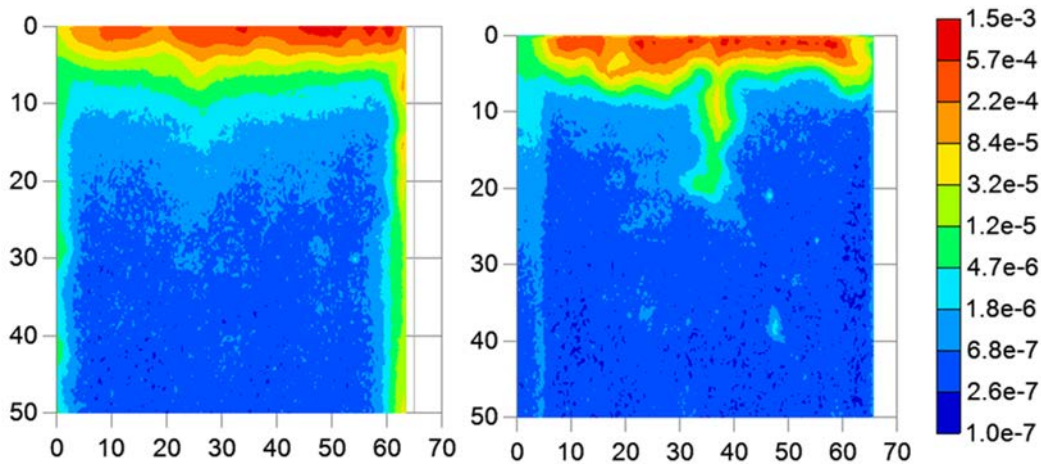


図 3-49 ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Sr 浸透
 (表層でのひび割れ幅：左 0.04 mm、右 0.2 mm)

(乾燥炭酸化、汚染履歴再現条件 60 日、xy 軸配置 (mm)、凡例は物質濃度 (mol/kg))

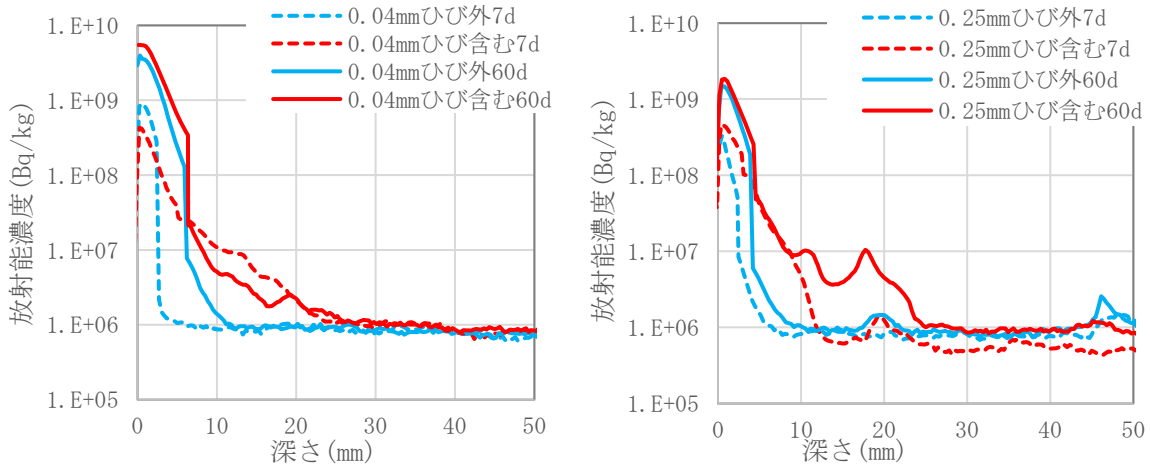


図 3-50 ひび割れ乾燥炭酸化 FAC コンクリートへの Sr 浸透プロファイル

材齢 60 日における異なるひび割れ幅のひび割れ部分の浸透プロファイルを図 3-51 に示す。Cs の場合、0.04 mm まではひび割れの影響は限定的であったが、0.2 mm のひび割れになるとひび割れ沿いに浸透が明確に認められた。Sr については、ひび割れ幅が 0.04 mm であっても浸透は進行する。さらに、ひび割れが 0.2 mm 以上となると深部への浸透量が多くなる傾向にあった。さらに大きなひび割れでどうなるのかはさらなる検討が必要である。

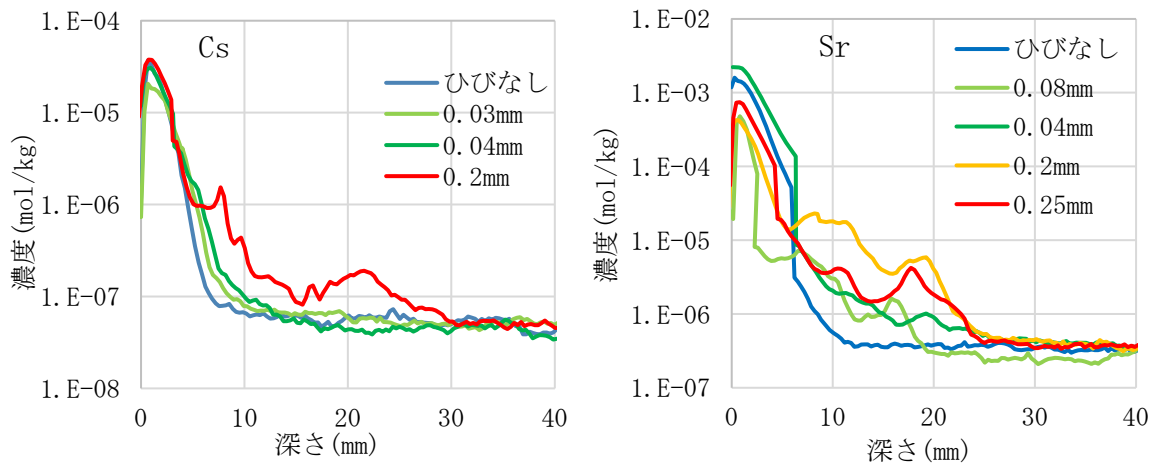


図 3-51 ひび割れ幅と浸透プロファイル (材齢 60 日)

ひび割れが浸透に及ぼす影響を定量的に評価するため、ひび割れがないモルタル試料で行ったように、浸透プロファイルにフィックの拡散側をフィッティングし、見かけの拡散係数 D_a を求めた (表 3-20)。ひび無し部を見ると、Cs、Sr いずれも材齢の経過により D_a は明確に小さくなり、標準偏差も小さくなった。これは初期には、1 日間海水に浸漬されてはいたものの水の移流に伴うイオン浸透が非定常状態で不安定に起きた可能性がある。材齢 60 日で比較すると、Cs と Sr は同等の D_a ($4 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$) となった。OPC モルタルの場合は材齢 1 年で $2 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ であり、FAC コンクリートと近い値であった。OPC と FAC を比較すると FAC の D_a は OPC の数分の 1 になるが、コンクリート中の骨材の存在と評価材齢が短期間の 60 日であったということから、FAC の D_a が大きな値となっている可能性がある。

ひび割れ部を見ると、ばらつきはかなり大きいですが、やはり材齢の進行とともに D_a は小さくなった。Cs と Sr を比較すると、Sr の方がひび割れ部の D_a が大きい。この原因を推定すると、Cs が骨材にイオン交換反応により吸着される速度は水の移流に比べても早いですが、Sr がコンクリートに吸着される機構が、セメントペースト中の Ca との溶解再析出反応であるとする、Cs よりも固相との相互作用が遅い可能性を考えることができる。

表 3-20 ひび割れた乾燥炭酸化コンクリートへの Cs と Sr の浸透プロファイルから
フィッティングにより求めた見かけの拡散係数

No	元素	ひび割れ		見かけの拡散係数 D_a ($10^{-13} \text{m}^2/\text{s}$)			
		開口幅 (mm)	状態	ひび無し部		ひび割れ部	
				7d	60d	7d	60d
G13-17	Cs	0.03	非貫通	11	3.0	40	3.4
G13-19		0.04	非貫通	21	3.1	13	9.0
G13-23		0.15	貫通	28	5.3	-	-
G13-26		0.20	貫通	23	2.8	87	14
平均				21	3.6	47	8.8
標準偏差				7.2	1.2	37	5.3
G13-20	Sr	0.04	非貫通	8.0	4.5	140	9.7
G13-18		0.08	非貫通	8.3	2.5	130	14
G13-25		0.20	貫通	42	8.0	95	52
G13-27		0.25	貫通	13	2.3	110	37
平均				20	4.3	110	33
標準偏差				15	2.6	15	16

モルタル試料の場合と同じく、見かけの拡散係数を用いて、クリアランスレベルとなる浸透深さを予測した結果を図 3-52 に示す。Cs と Sr の表面濃度はそれぞれ 10 億 Bq/kg と 1 億 Bq/kg 程度になり、材齢 60 日においてクリアランスレベルとなるのは双方とも約 11 mm であった。この傾向を外挿すると、材齢 1 年では 28 mm、材齢 7 年では 72 mm となる。モルタルでの 7 年材齢での推定値 (Cs で 50 mm、Sr で 42 mm) であるが、ばらつきが大きいことを考えると、モルタルでの推定値と近い値と考えられる。

ひび割れ部分についてはさらに浸透深さが大きくなる。材齢 60 日でクリアランスレベルとなるのは、Cs では 17 mm、Sr では 27 mm となる。この D_a を用いてタービンピットの汚染水が除去された段階の浸透予測は、Cs では 110 mm、Sr では 180 mm と計算できるが、モルタルでの検討のように、 D_a は 1 年材齢でかなり小さくなる可能性もあるし、ひび割れへの浸透がさらに進むのかどうかは継続的試験を試験をしてみなければわからない。

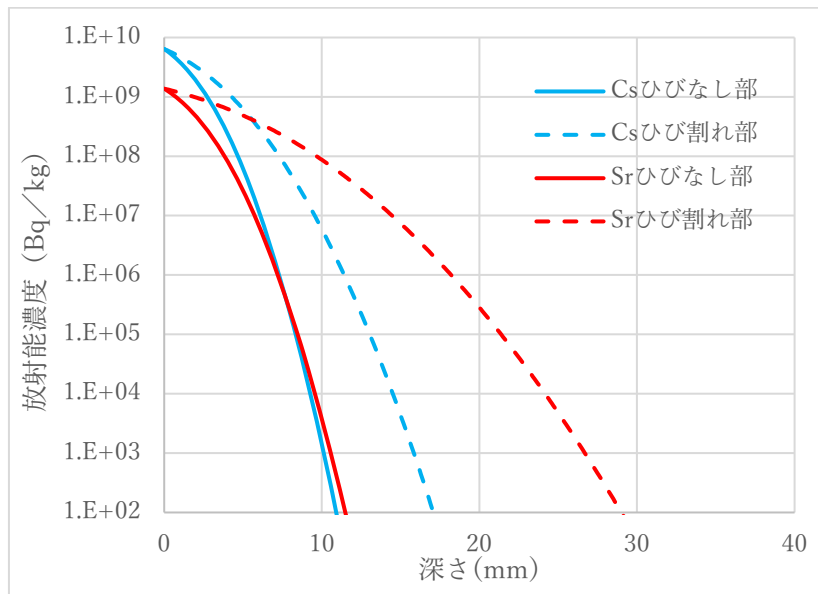


図 3-52 乾燥炭酸化 FAC コンクリートの見かけの拡散係数を用いたひびなし部とひび割れ部の Cs と Sr の材齢 60 日の浸透プロファイルの再現 (1 年材齢は横軸を 2.5 倍、7 年材齢は横軸を 6.5 倍すればよい)

(3) まとめ

モルタルを用いた検討では、種々の状態が異なる条件、すなわち溶液側としては Cs、Sr の競合イオン（それぞれ K、Ca）の存在、実汚染履歴の再現（1 日海水浸漬+初期汚染水）、試料側としては乾燥炭酸化、骨材種類（実使用された川砂利）を考慮し、材齢約 1 年の浸透状況を調べた。

- ・ 競合イオンの存在で、Cs、Sr ともに浸透が増加した。
- ・ 汚染履歴の再現（1 日海水へ浸漬）によって、Sr は浸透が増加した。
- ・ 骨材への Cs 吸着によって、Cs の浸透は抑制され、濃度依存性（低濃度で抑制大）があった。
- ・ 実験結果からフィックの拡散則で見かけの拡散係数を算出し、実汚染に近い乾燥炭酸化試料を汚染履歴再現条件で 1 年間浸漬した場合について、クリアランスレベル（Cs は 100 Bq/kg、Sr は 1000 Bq/kg）となる浸透深さは、Cs で 19 mm、Sr で 15 mm であった。

ひび割れを導入した乾燥炭酸化コンクリート（Cs、Sr それぞれ 4 個）を実汚染履歴条件で浸透を行い、材齢 7 日と材齢 60 日で浸透プロファイルを測定し、ひび割れが浸透に及ぼす影響を検討した。

- ・ Cs の浸透において、ひび割れ開口部が 0.04 mm 以下のひび割れは浸透に大きな影響を与えなかった。0.2 mm 以上の場合には明確に深部まで浸透した。
- ・ Sr は炭酸化コンクリートのひび割れ部において、ひび割れが 0.04 mm であっても健全部より深く浸透した。ひび割れが大きい方がより浸透は早い可能性はあるが、不明確であり今後の検討が必要である。
- ・ Cs/Sr ともにひび割れの影響を見かけの拡散係数 D_a として、健全部とともに比較評価した。 D_a は材齢の経過に従い、Cs、Sr ともにひび割れの有無によらず大きく低下し、ばらつきも小さくなった。
- ・ ひび無し部の D_a は Cs と Sr でほぼ同じ $4 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ であったが、ひび割れ部での D_a

は Cs では $9 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 、Sr では $33 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ と Sr で大きくなった。

- 上記の Da を用い、タービンピットから汚染水が除去された 7 年材齢での浸透深さを推定した。ひび無し部では、Cs、Sr とともに 72 mm、ひび割れ部では Cs は 110 mm、Sr では 180 mm となった。ただし、見かけの拡散係数は、2 ヶ月材齢よりも 1 年材齢では小さくなると見込まれ、さらに汚染水中の Cs と Sr 濃度は経時的に低下しているので、この数値は安全側である可能性が考えられる。

3.3.2 α 核種のコンクリート部材への収着挙動評価（令和2年度～令和4年度）

（連携先：JAEA）

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

汚染水にはCsやSrとともにPuやAmといった α 線を放出する核種（ α 核種）が含まれている。汚染水中の α 核種の濃度は原子炉建屋より下流で減少していることから、 α 核種が建屋に滞留している可能性が考えられる。放射性核種により汚染したコンクリートの除染や廃棄物としての処理、処分を検討する上で α 核種の付着や浸透の挙動の把握が重要である。

前研究ではOPCおよびFACについて、その変質状態を考慮してPuおよびAmの液固間の分配比ならびにセメントペースト試験片への1ヶ月間の浸漬による浸透深さを求めた。浸漬液の初期濃度が ^{239}Pu および ^{241}Am ともに約 10^6 Bq/cm³、固液比1:10の条件でPuの分配比は約 10^5 cm³/g以上と非常に高く、OPCとFACには有意な差が見られなかった一方で、健全状態に比べ炭酸化状態は分配比が低下することを明らかにした。 α 核種の浸透は、セメントの種類や状態での差は見られず、いずれも表層から1mmに大半が収着し、2mmまで浸透している可能性が示唆された。

令和3年度は、建屋と汚染水の接触が長期に及んでいることから、長期の浸漬の影響を確認するため、コンクリートが汚染水と接触した初期条件を検討し、長期浸漬試験を開始した。また、コンクリート材料である細骨材、粗骨材、塗料、鉄筋へのPuの分配比を求め、塗料に比べてセメントや骨材が高い分配比を示したことから、塗装がなくコンクリートが露出している箇所は α 核種の蓄積量が多くなっていることが示唆された。

(2) 令和4年度実施内容および成果

JAEAは、ひび割れを含むセメントの α 核種浸漬試験として、現場の建屋を想定したひび割れを含むセメントに対し、Pu等の α 核種を含む溶液に浸漬した。また、 α 核種の浸漬深さを求め、ひび割れ内への侵入と浸漬の挙動を評価した。 α 核種であるPuやAmの浸透はセメント表層から2mm程度に留まり、浸漬時間を延ばしても浸透深さは変わらなかった。また、ひび割れへの液の浸入を想定した場合であっても、 α 核種の浸透深さには顕著な影響が認められなかった。

① 目的

原子炉建屋と汚染水の接触は10年以上にわたっている。浸透深さは時間に依存しうることから、建屋への α 核種の浸透を評価するためには長期の浸漬試験が必要になる。そのため、令和3年度から引き続き3ヶ月、12ヶ月の浸漬を行い、 α 核種の移動挙動を短期の場合と比較した。

また、建屋のコンクリートは経年劣化や地震・事故時の影響によりひびが生じていることが懸念される。ひびがある場合、ひびの内部に汚染水が浸透することで、平滑な面より深く放射性核種が浸透する可能性がある。 α 核種はセメントペーストへの分配比が高く、表層に留まりやすいが、ひびの幅によって浸透の深さに影響することが考えられるため、ひび幅やセメントペーストの変質状態をパラメータとして ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性を求めた。

② セメントペーストの長期(1年)浸漬

1) 試験方法

セメントペーストの長期浸漬(3ヶ月、12ヶ月)を実施した。令和3年度から浸漬を開始しており、令和3年度成果報告書では浸漬期間1ヶ月までの結果を報告している。本年度は3ヶ月、12ヶ月浸漬後の試験片の分析を行った。炭酸化状態は浸漬液のpHに影響を与えることから、変質状態を変えた試験片を用いた。令和2年度の調査結果から、建屋のコンクリートには汚染水が接触する前に津波により浸水した海水が接触している箇所が存在していると推定されるため、浸漬液に浸漬する前に、1週間人工海水に浸漬する条件を設定した。 α 核種の浸透深さを分析するために試験片を粉末化する破壊分析に供するので、浸漬の期間ごとに試験片を1本ずつ使用した(条件A、B、Cごとに3本ずつ浸漬した)。試験条件を表3-21に示した。

表 3-21 セメントペーストの長期浸漬試験の条件

	セメント	変質状態	予備浸漬	浸漬期間
A	OPC (飽水)	健全	海水, 7日	1, 3, 12ヶ月
B	OPC (飽水)	炭酸化	海水, 7日	1, 3, 12ヶ月
C	OPC (飽水)	健全	—	1, 3, 12ヶ月
D	エポキシ樹脂 (ブランク)	—	—	12ヶ月

浸漬液は令和2年度に使用したものと同様に浸漬液を調製して用いた。U、Pu混合酸化物ペレット(Pu/Pu+U 30 wt%)を7 M硝酸溶液で溶解して純水で希釈した。濃度は $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ 2.7×10^3 Bq/mL、 $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$ 1.2×10^4 Bq/mLである。 ^{241}Am は ^{241}Pu の β^- 壊変により生じ、Puとともに含まれている。

試験片はセメントペーストを $10 \times 2.5 \times 50$ mmに切削加工し、エポキシ樹脂で被覆した後、浸漬する面(10×2.5 mm)を切り出して露出させた。ブランク試料としてエポキシ樹脂を同じ寸法に加工した。

あらかじめ海水と接触する条件(予備浸漬、AおよびB)については、各セメントペースト試験片を1つの容器の中で100 mLの人工海水に1週間浸漬した。浸漬の様子を図3-53に示した。その後表面をふき取り、予備浸漬をしない条件と併せて浸漬液350 mLに浸漬した。所定の期間経過後、試験片を引上げ、側面を1 M硝酸溶液を染み込ませた紙ワイパで拭きとり、自然乾燥させた。試験片をバイスで固定し、手回しグラインダーにサンドペーパー#180を接着して、5 mmの深さまで粉末化した。粉末は0.5、1、2、3、5 mmの深さでそれぞれ回収し、粉末とサンドペーパーを併せて1 M硝酸溶液10 mLに1晩浸漬した。ブランク試料として用いたエポキシ樹脂の試験片については、1 mmまでを粉末化した。この液を0.45 μm のシリンジフィルターでろ過し、ろ液を α 放射能分析に供した。

ろ液を希釈し、10 μL を試料皿に塗布し、高周波加熱して焼き付けた。 α 線分析装置(半導体検出器:ORTEC社製SSD、波高分析装置:ORTEC社製920-8MCA)にて測定した。 α 線のエネルギーに近い核種は、 $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ (5.15 MeV)、 $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$ (5.48 MeV)のように合算して取り扱った。浸漬液に使用したU、Pu混合酸化物ペレットの核種割合で補正し、 ^{239}Pu および ^{241}Am の濃度を求めた。

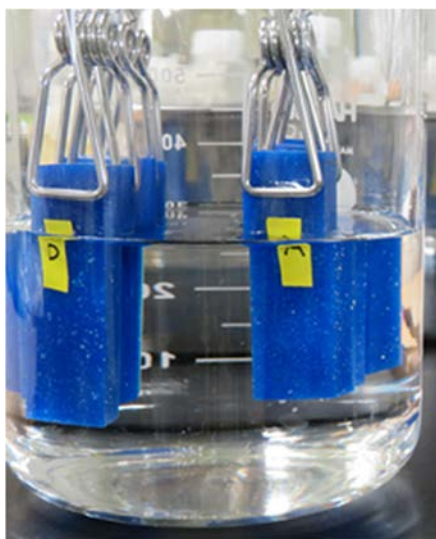


図 3-53 セメントペースト試験片の長期浸漬の様子

1) 結果と考察

変質状態および海水の影響を調べるため、12 ヶ月間浸漬後の各条件を比較した。12 ヶ月間浸漬したセメントペーストの ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性を図 3-54 に示した。縦軸は各層 (0~0.5 mm、0.5~1 mm、1~2 mm、2~3 mm、3~5 mm) に含まれる深さ方向 1 mm あたりの放射エネルギー (Bq/mm) とした。ここで、浸漬液との接触面積は 10×2.5 mm である。

セメントペースト試験片 A~C は、変質や海水の条件にかかわらず表層 (0~0.5 mm) の濃度がほぼ一致しており、Pu および Am の収着が飽和した、もしくは一定の速度で収着が進行したことを示す。0.5~1 mm では、健全 (A と C) に比べ炭酸化 (B) 試料は若干収着量が多くなっており、試験片が炭酸化したことで内部水の pH 上昇が健全状態より抑えられ、Pu や Am の浸透を促進した可能性が考えられる。1 mm 以降は、濃度の低下が緩やかとなり一定の値になるが、エポキシ (ブランク) の値と比べると、これは試験片内部への浸透ではなく、試験片のエポキシ表面への付着の寄与と考えられる。エポキシ樹脂のみの試験片では他のセメントペースト試験片の 1 mm 以降に比べ収着量が少ないものの、低濃度領域は作業上の誤差も大きくなり、また試験片の表面状態 (平滑さ) の違いによっても表面の付着量は異なる。試料 A は 1 mm 以降において B と C に比較して高い収着量である。予備的な海水接触の条件が A と C とで異なるが、0.5~1 mm では A と C で収着量に大きな違いはないため、より深い 1~2 mm での差が浸透による上昇であるとは考えにくく、分析作業中の二次的な汚染、もしくは試験片内部の不均一性 (ヒビや傷) による収着量の増加した可能性が考えられる。Pu と Am はいずれの条件でも同じ傾向を示した。

以上のことから、12 ヶ月の浸漬では 0.5~1 mm の浅い部分で炭酸化により若干浸透量が多くなっている可能性があるが、浸透深さへの影響は小さく、また、海水の予備浸漬の影響は見られなかった。

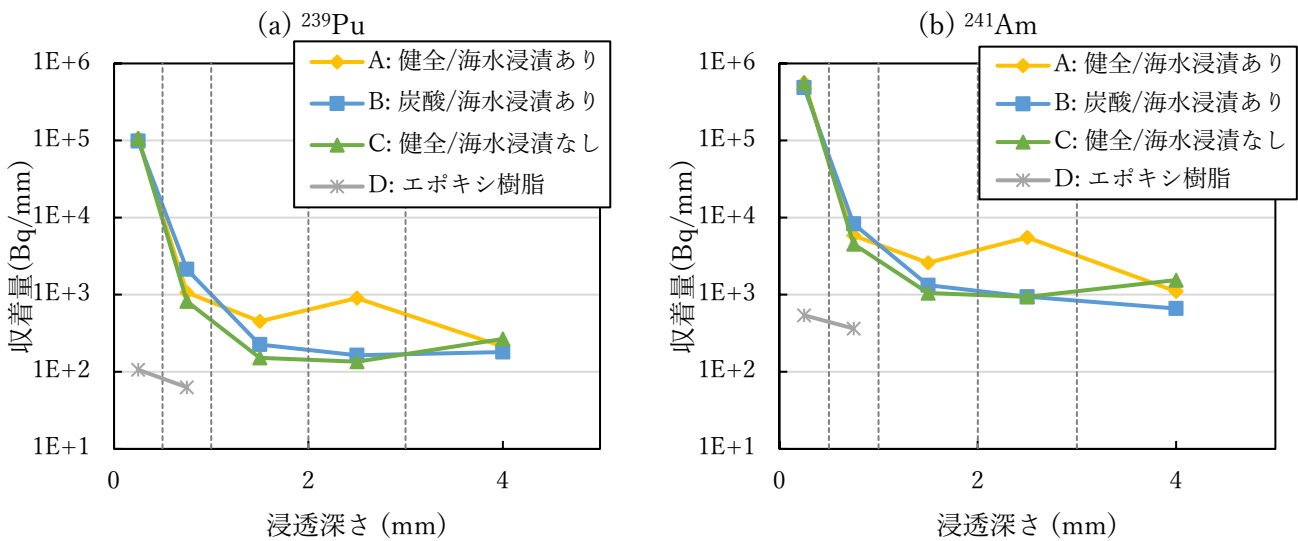


図 3-54 12 ヶ月浸漬したセメントペーストへの ^{239}Pu および ^{241}Am の浸透深さ依存性
(a) ^{239}Pu 、(b) ^{241}Am

浸漬期間による変化を見るため、1、3 および 12 ヶ月後における ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性を図 3-55 に示した。1 ヶ月浸漬の結果は令和 3 年度報告書で報告した値を引用した。 ^{239}Pu 濃度が低く定量に至らなかった場合は白抜きの記号で定量下限値を示した。

表層 (0~0.5 mm) では、いずれの試料および浸漬の条件、また、 ^{239}Pu と ^{241}Am を問わず、時間とともに収着量が増加した。一方、0.5 mm 以降の層では、浸漬期間 12 ヶ月の試験片が最も収着量が多い場合が多いが、1 ヶ月と 3 ヶ月で逆転している箇所もあり、必ずしも時間に比例していない。時間経過により収着量が減少する可能性として、セメント成分の溶脱に伴い Pu または Am が脱落することや、濃度が薄い溶液側に Pu または Am が溶出することなどが考えられる。しかしながら、放射能濃度が高く分析値が最も確からしい表層では時間経過により収着量が増加していることから、内部の濃度が低い領域の分析作業における二次的な汚染による影響、もしくは、浸漬期間により異なる試験片を使用していることから試験片の差異に基づく影響が考えられる。

1~2 mm においては、浸漬期間 12 ヶ月の収着量が 1 ヶ月もしくは 3 ヶ月とほぼ同程度であり、2 mm 以降においては収着量の変化が小さいことから、Pu および Am の浸透は 1 mm 以内に留まっており、12 ヶ月の浸漬では浸透深さの変化は見られなかった。

以上のことから、浸漬時間が長くなることにより Pu や Am の表層における収着量は増加するが、セメントペースト内部への浸透は進みにくいものと結論づけた。

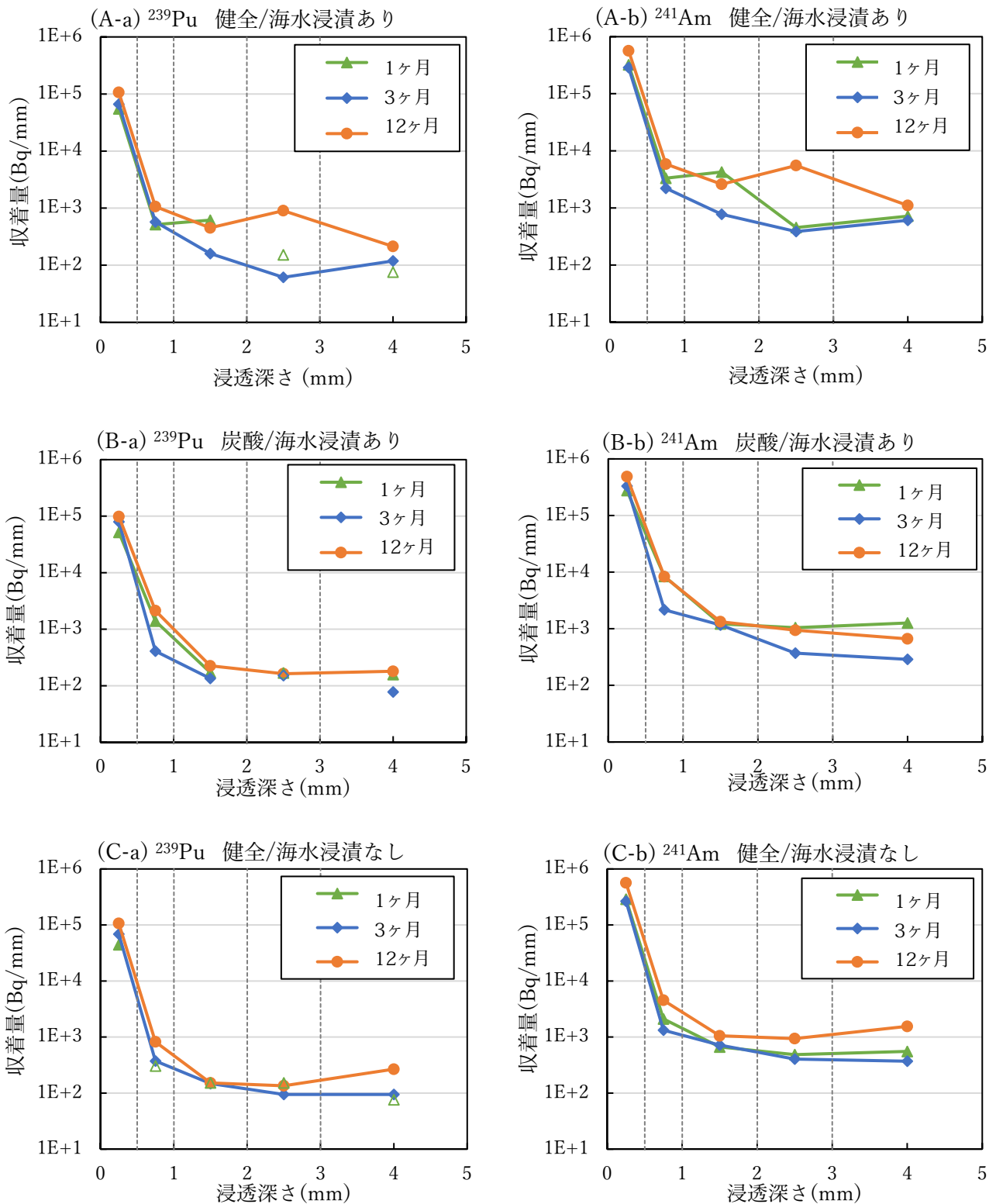


図 3-55 変質状態および予備浸漬条件の異なるセメントペーストの浸漬期間ごとの ²³⁹Pu および ²⁴¹Am 濃度の深さ依存性

白抜きのプロットは定量下限値を表す。試料 A、B、C は表 3-21 参照。

(A-a, B-a, C-a) ²³⁹Pu、(A-b, B-b, C-b) ²⁴¹Am

③ ひび割れ模擬セメントペーストの浸漬

1) 試験方法

ひび割れを模擬したセメントペースト試験片を作製した。セメントペーストに圧力をかける等の方法でひびを導入する場合、試験片間で同様の条件でひびを作製することは難しく、またグローブボックス内で試験片を取り扱うため、浸漬後に切断や観察してひびの形状を評価することも難しい。ひびの影響として、ひび割れの幅に応じて汚染水が浸透しやすくなることが予想されることから、ひびの幅に着目して試験片を準備した。ひびの幅を制御する方法として、2枚のセメントペースト板の間に任意の大きさのスペーサーを挟むこととした。ひび割れ模擬試験片の模式図を図 3-56 に示した。2枚のセメントペースト板の間に所定の大きさのガラスビーズを挟み、アルミテープで試験片を固定してから長期浸漬試験片と同様にエポキシ樹脂で被覆して浸漬する面を切り出した。

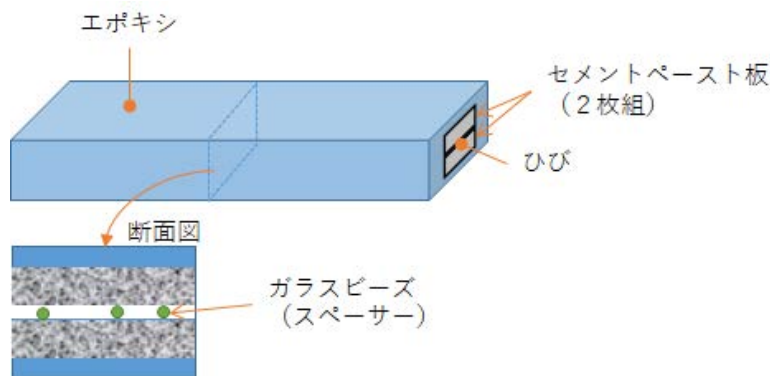


図 3-56 ひび割れ模擬試験片の構造

試験片の浸漬は、試験片の変質状態や予備浸漬の有無、ひび幅等を変えて行った。浸漬条件を表 3-22 に示した。セメントは FAC を用いた。FAC は OPC より硬化体内部の空隙水のアルカリ性が低いため、 α 核種の加水分解が抑制され浸透が深くなる可能性が懸念される。長期浸漬と同様に変質状態として健全および炭酸化条件を考慮するとともに、吸水の影響に関して飽水だけでなく乾燥状態を加えた。ひび幅は 0.1、0.5、1.0 mm とした。0.5 および 1.0 mm は通常の建屋の運用では想定しない大きなひびに相当する。比較のためガラスビーズを加えずにセメントペースト 2 枚を貼り合わせた試験片（ひび幅 0 mm）も用意した。

浸漬から分析までの操作には長期浸漬と基本的に同様に行った。浸漬方法に関し、ひび割れ模擬試験片の空洞に空気が内包されることから、セメント露出面を下向きに浸漬する場合は内部への水の浸入が制限されるおそれがあるため、図 3-57 に示すように試験片を横に置いて浸漬した。また、セメントペースト 2 枚を組んだ状態で粉末化を行うと、ひび部の空洞に粉末が入り込み回収が難しくなることから、浸漬後に図 3-58 に示した面を切断し、試験片を分割してからセメントペーストの 1 枚を粉末化した。ただし、ひび幅 0.1 mm の一部試験片 (d、e、i、k) およびひび幅 0 mm (m) については、セメントペーストが固く貼り付いており、3 面切断後も 2 枚のセメントペーストを分割することができなかったため、2 枚組のまま粉末化を行った。濃度は試験片 1 枚分に換算した。

表 3-22 ひび割れ試験片の浸漬条件

	セメント	変質状態	予備浸漬	浸漬期間	ひび幅 (mm)
a	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	7日	0.1
b	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	7日	0.5
c	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	7日	1.0
d	FAC (乾燥)	健全	海水, 7日	7日	0.1
e	FAC (乾燥)	健全	—	7日	0.1
f	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	1ヶ月	0.1
g	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	1ヶ月	0.5
h	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	1ヶ月	1.0
i	FAC (乾燥)	健全	海水, 7日	1ヶ月	0.1
j	FAC (乾燥)	健全	—	1ヶ月	0.1
k	FAC (飽水)	炭酸化	海水, 7日	7日	0.1
l	FAC (飽水)	炭酸化	海水, 7日	1ヶ月	0.1
m	FAC (飽水)	健全	海水, 7日	7日	0

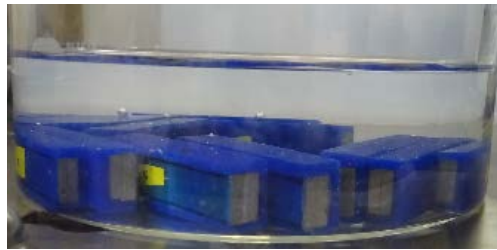


図 3-57 ひび割れ模擬試験片の浸漬の様子



図 3-58 ひび割れ模擬試験片を分析するための切断箇所

2) 結果と考察

ひび幅の影響を確認するため、ひび幅以外の条件が同じである試験片 a、b、c、f、g、h、m の浸透深さの依存性を図 3-59 に示した。

浸漬期間が1週間および1ヶ月のそれぞれの期間で、ひび幅の大きさが大きくなるほど内部への浸透量が多くなった傾向が見られた。ひび幅が0.1 mm の場合、1ヶ月の浸漬では1週の場合と浸透深さはほとんど同じであったが、ひび幅0.5 mm と1 mm では1ヶ月間で有意に収着量が増加しており、ひび幅0.5 mm では1~2 mm まで、ひび幅1 mm では深さ5 mm にも浸透していることが示された。ひび幅0 mm は3~5 mm の層で収着量が下がっているように見えるが、縦軸を深さ方向1 mm あたりの放射能量で示しているため、収着量が少ないと3~5 mm の層は2 mm を使用した分析値になっているため見かけ上低くなっていることにより、有意な浸透は1 mm までと考えられる。

浸漬期間1週間後から1ヶ月にかけてひび幅が大きい条件では Pu および Am の浸透が進

んでいることから、より時間を要する空隙部での溶液の拡散が寄与していることが示唆される。ひび幅が 0.1 mm 程度では 2 枚が密着した場合と変わらず、ひび内の水が少ないために拡散量も小さいこと、Pu と Am が高アルカリ溶液下で水酸化物として析出し、ひびを塞いだことが考えられる。

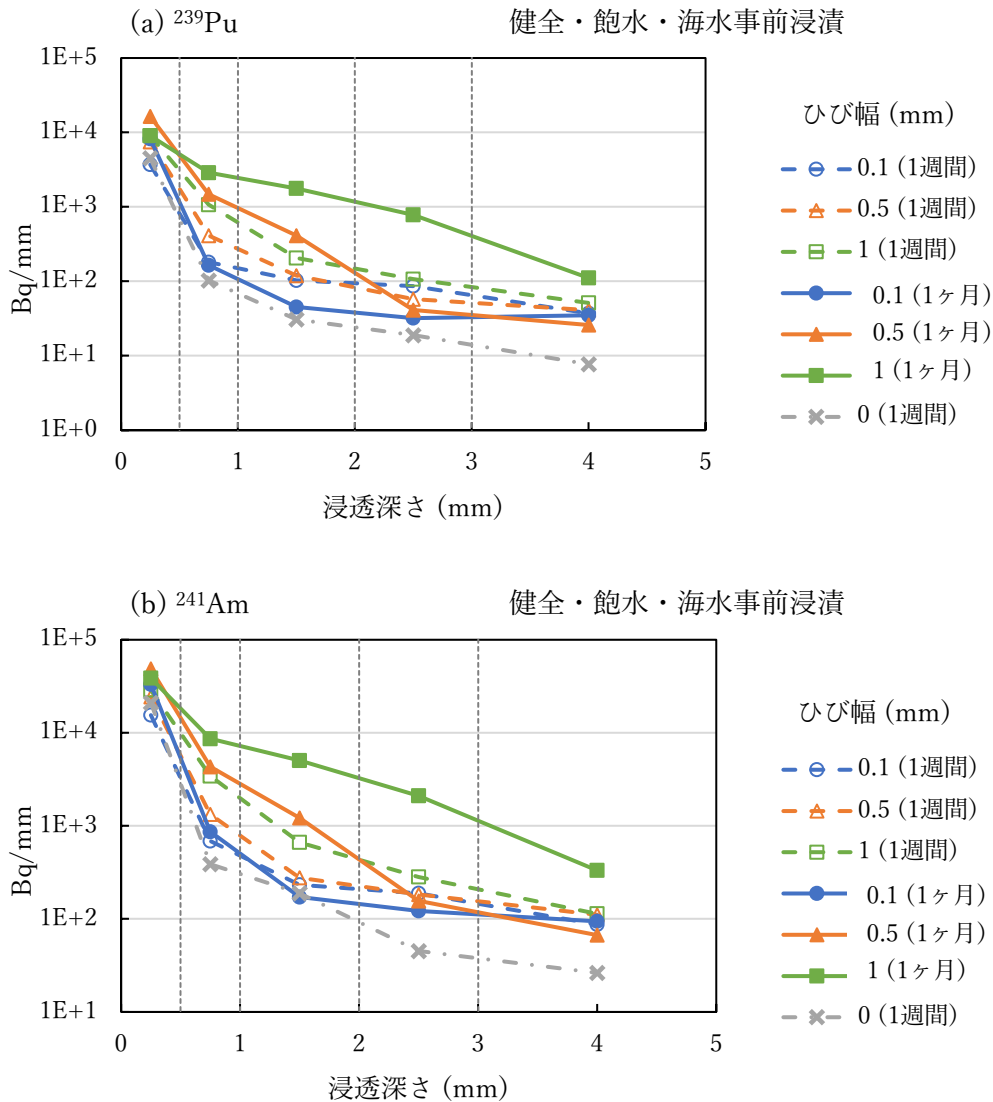


図 3-59 ひび幅の異なる試験片の ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性
(a) ^{239}Pu 、(b) ^{241}Am

ひびの存在に伴う変質状態等の影響を確認するため、ひび幅の条件が同じである試験片 d、e、i、j、k、l の浸透深さの依存性を図 3-60 に示した。変質状態、飽水乾燥状態、海水への事前浸漬の有無といった条件の異なる試験片の浸漬を行ったが、深さとともに濃度が下がる傾向が同様であり、違いが有意であることの判断が難しい。2 mm までは浸透している可能性はあるが、2 mm 以降は試験片の外表面 (エポキシ) に付着した量と考えられる。

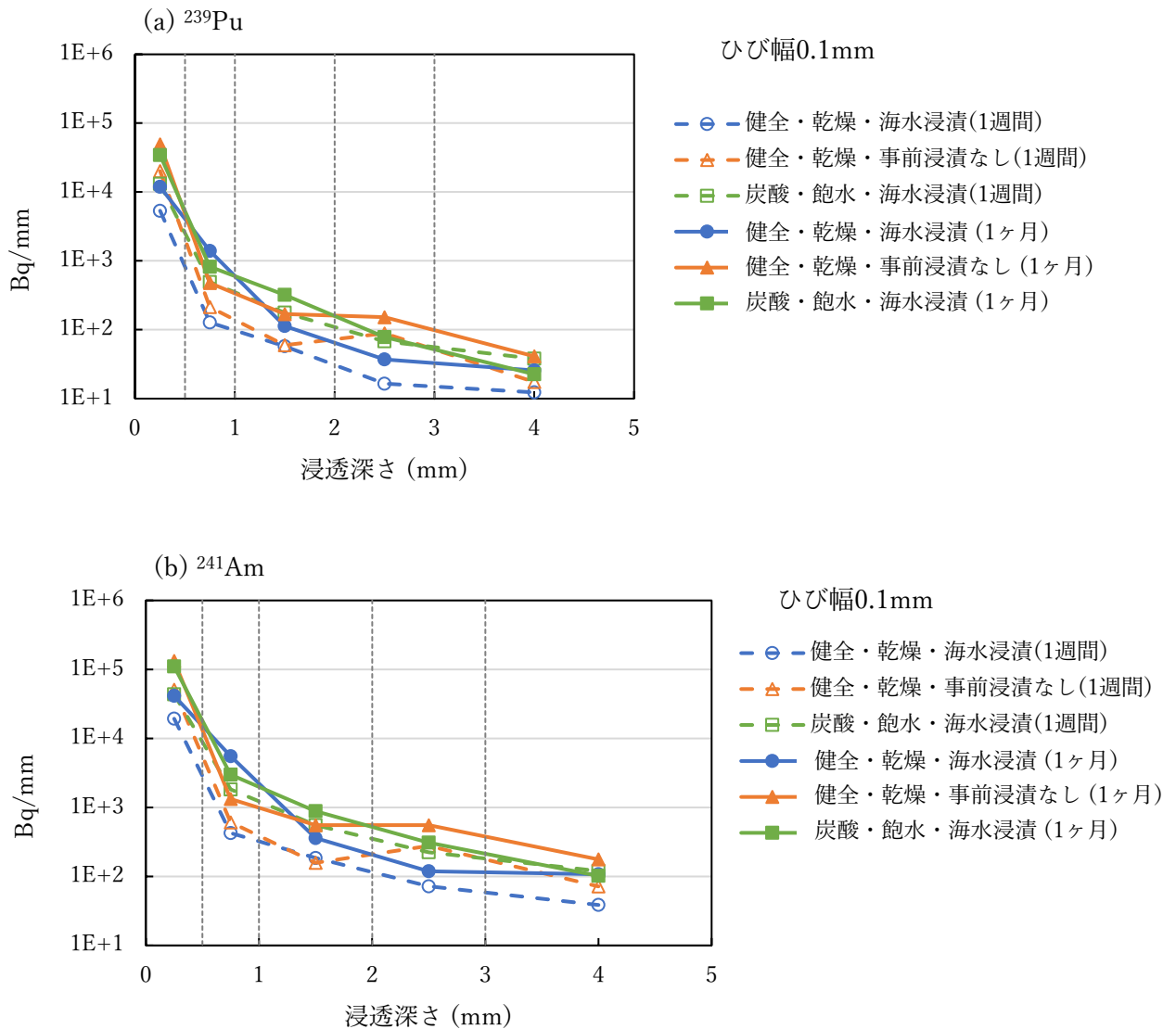


図 3-60 変質状態や予備浸漬条件の異なる試験片の ^{239}Pu および ^{241}Am 濃度の深さ依存性
 (a) ^{239}Pu 、 (b) ^{241}Am

(3) まとめ

汚染水とセメントペーストが長期に接触した場合に α 核種が浸透する様子を調べるために 1 年間の浸漬を行った。浸漬時間が長くなると浸漬液と接触している表層において Pu および Am の収着量は増加する。その一方で、セメントペースト内部へはおおよそ 1 mm までの浸透に留まり、浸漬時間が長くなることにより浸透が深くなる影響は見られなかった。また、セメントペーストの変質状態や海水の予備浸漬は浸透に有意な変化を与えなかった。

建屋コンクリートに生じたひびに水が浸入して浸透が進む場合を想定して、ひび幅の影響に着目して Pu および Am の浸透の影響を調べた。ひび幅 0.1 mm ではひびがない場合と同様に 1 mm 程度までしか浸透しなかったが、0.5 mm 以上のひびが存在する場合、浸漬時間が長くなることでより深くセメントペースト内に Pu および Am が浸透した。事故時にコンクリートに大きなひびが生成している場合に、 α 核種が深く浸透している可能性が示唆された。

3.4 処理・処分を見据えたコンクリート廃棄物の状態検討（令和4年度）

太平洋コンサルタントは、廃棄物処理処分において想定されるコンクリートの状態を具体的に提示することを目的に、シミュレーションによる状態設定、浸透挙動解析および浸透試験の結果と、1F 建屋コンクリートの汚染状況に関する既往報告を収集/整理し、想定される廃棄物の状態について検討した。

国立環境研究所は、廃棄物の想定される状況について提案し、必要な情報を設定する支援を行った。ひび割れシミュレーション、浸透挙動解析、浸透実験の結果を総合し、コンクリート廃棄物の長期的挙動に関する検討の方向性設定、実際の汚染コンクリートの除染・廃棄に関する提言をまとめる支援を行った。

1F 建屋コンクリートの汚染状況に関する既往の報告内容を踏まえ、汚染コンクリートの試算方法について検討し、想定される廃棄物の状態について取りまとめた。なお、ここでは、汚染が表層に限定される α 核種については考慮せず、Cs と Sr の浸透に関して取り扱う。

(1) 数値モデルによるひび割れの状態設定

3.1.2 項「メソスケールひび割れ解析の実施とひび割れ量の評価」において開発した RBSM 数値モデルにより、ひび割れの状態設定を試みた。

地震荷重の影響を受ける前のコンクリート壁面のひび割れ状況を図 3-61 に、地震荷重後のひび割れ状況を図 3-62 に示す。壁面には 75 mm ピッチでひび割れに生じ、ひび割れ深さは 15～30 cm 程度になるとの試算結果が得られた。この計算結果は OPC コンクリートに関するものであるが、FAC コンクリートでも同等と仮定して解析を進めた。いずれの場合も、幅が 0.1 mm を超える大きなひび割れは表層から 15 cm よりも深い部位にのみ存在し、表層部には 0.1 mm 以下のひび割れが卓越する。

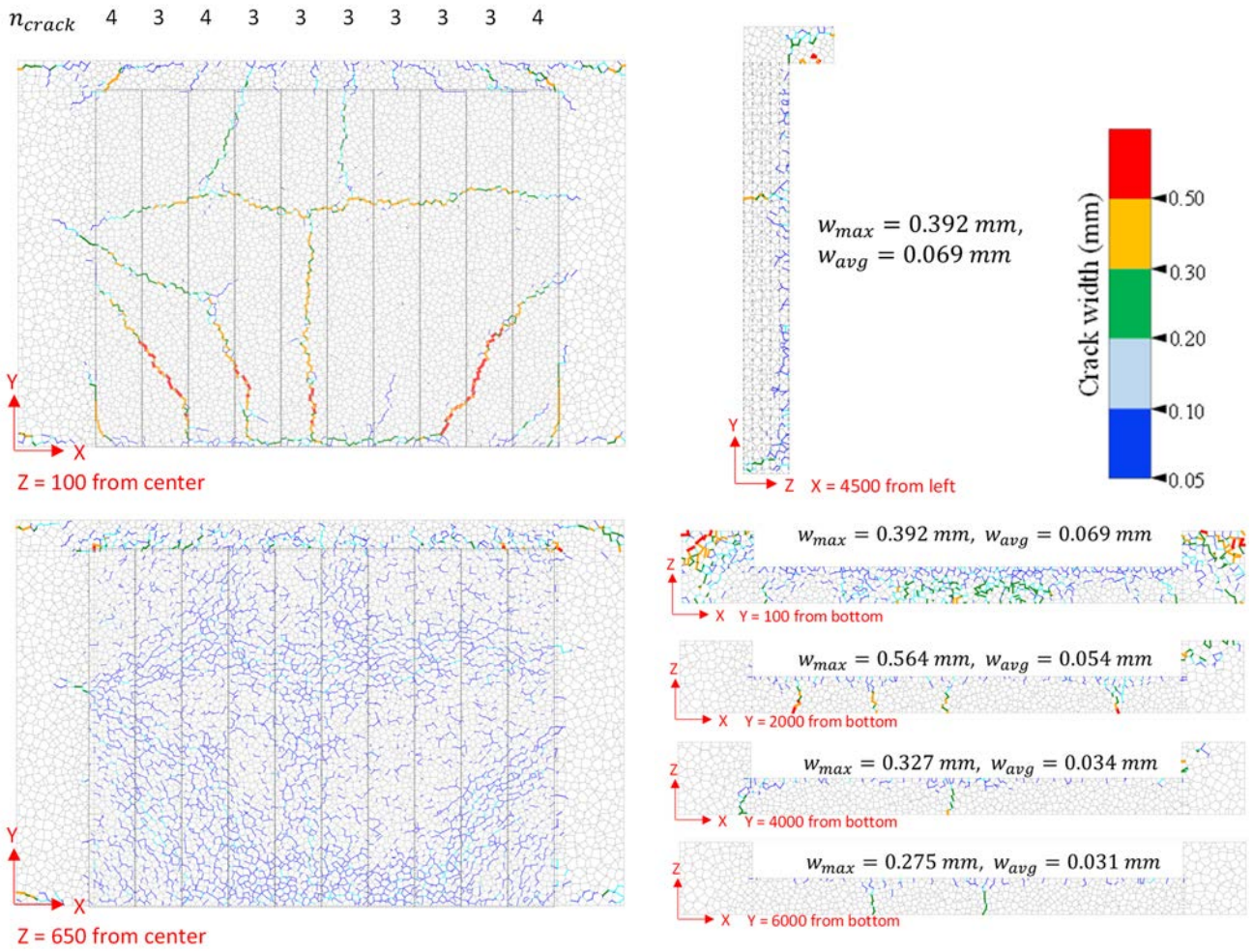


図 3-61 地震前のひび割れ状況

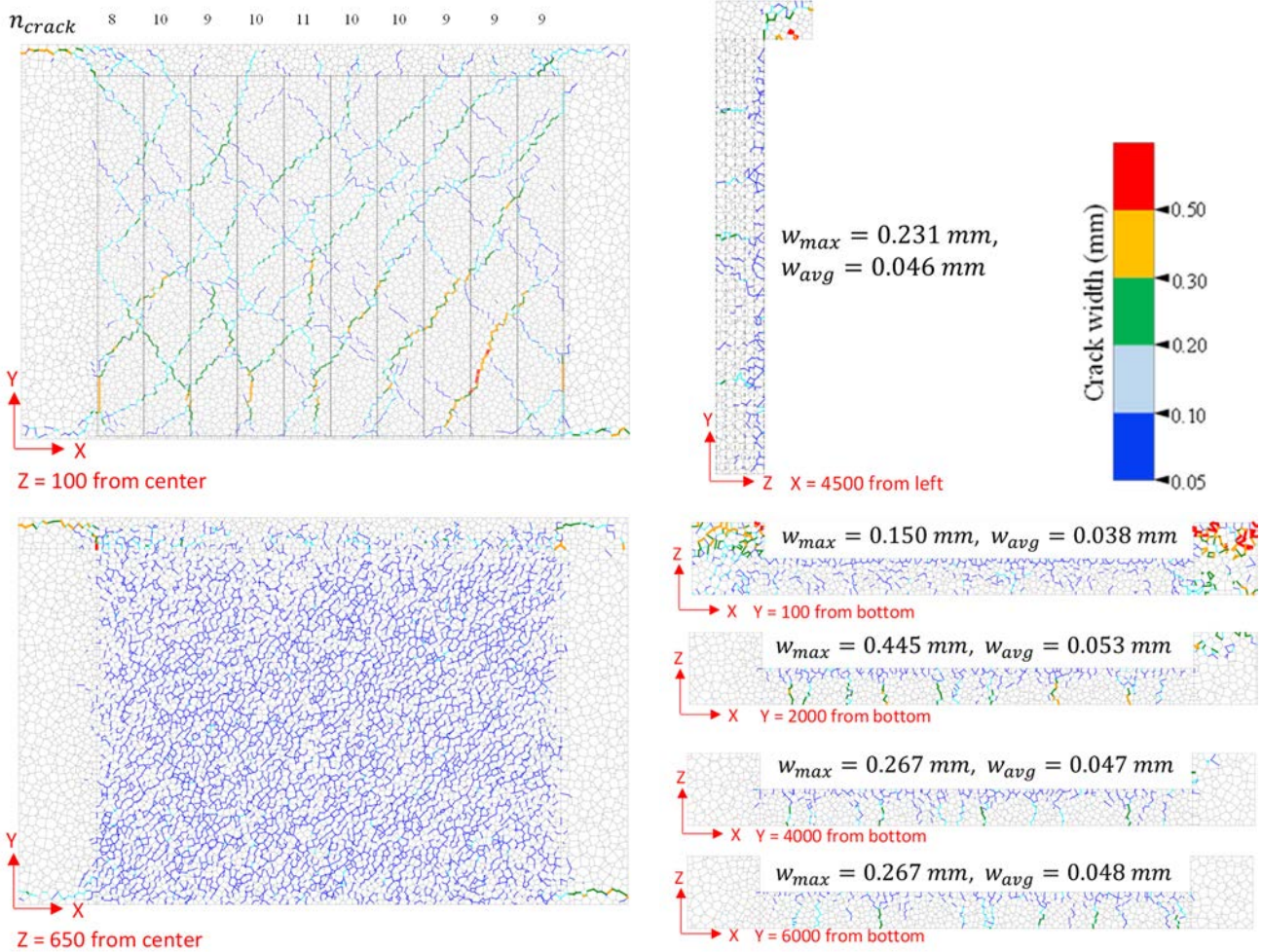


図 3-62 地震荷重後のひび割れ状況（横変位の 1/800）

(2) 地下構造物を想定した汚染物質浸透の長期挙動評価

3.3.1 項「低濃度領域での ^{137}Cs と ^{90}Sr の競合浸透の評価」において、Cs と Sr の浸透プロファイルからフィッティングにより求めた見かけの拡散係数の結果を基に、1F 建屋の地下構造物（タービンピット）を想定した、汚染物質浸透の長期挙動評価を行った。評価に用いた拡散係数を表 3-23 に示す。

表 3-23 評価に用いた拡散係数

	平均拡散係数 (m^2/s)	
	ひび無し部	ひび割れ部
Cs	3.6E-13	8.8E-13
Sr	4.3E-13	3.3E-12

タービンピットでは、事故発生時から汚染水（滞留水）に満たされており、滞留水と接触している間はコンクリート壁面より汚染物質が内部に浸透するが、事故発生から 7 年後に滞留水がドライアップされたことにより物質の移動は起こらなくなった、というシナリオを想

定した。ここでの表面濃度は、浸漬試験初期においては表面濃度が徐々に増加するものの、60日時点の表面濃度はすでにほぼ飽和に達していると考え、長期計算での表面濃度もIPの60日の表面濃度 (mol/kg) と同等と仮定した。ただし、前述のように汚染水の浄化によりSrに関しては、競合するCaとの濃度差が拡大することもあり、表層濃度も浸透深さも減少する可能性がある。Csに関しては濃度自体は低下しているが、イオン交換体への吸着という観点では、Kとの比率は大きくは変動していないため、大きな違いは生じないと予想される。

物質移行はフィックの法則に則って元素ごとに相互に干渉することなく起こるものとし、不均質なコンクリートを健全部とひび割れ部の2相に分けて評価することとした。また放射性壊変による元素の濃度変化は、各元素の物質移行挙動へ影響を与えないものとした。

以上の仮定の元で、コンクリート壁面のひび無し部、ひび割れ部それぞれにおけるCsおよびSrの濃度プロファイルを計算すると、図3-63に示すようになった。原子炉等規制法に基づくクリアランス基準 (Csは100 Bq/kg、Srは1000 Bq/kg) を超える放射性核種濃度になる領域は、健全部で深さ70 mm程度、ひび割れ部では放射性核種によって異なり、Csは浸透面から110 mm、Srは190 mm程度の位置まで到達すると試算された。

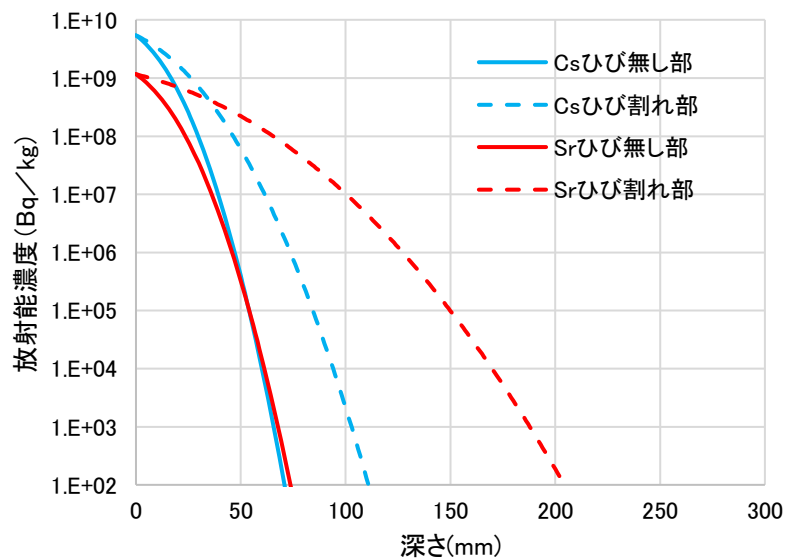


図 3-63 Cs と Sr の材齢 7 年の濃度プロファイル予測計算結果

この放射能濃度の試算結果を基に、線量の予測計算を行い、計算で用いた表面濃度を実測値と比較した。線量計算には米国ロスアラモス国立研究所で開発された点減衰各積分法の計算コード QAD (Quick And Dirty) の実効線量率計算や空気カーマ率係数が内蔵された CGGP2R バージョンを用いた。放射線源は 10 m 四方のコンクリート壁の表面 1 mm に放射能濃度 10^{10} Bq/kg の ^{137}Cs が均一に存在すると設定した。QAD-CGGP2R により壁面から 1 m 離れた地点の空間線量率は壁の高さ 1 m から中央の 5 m 位置において、6.8~13.3 mSv/h と試算された。2017 年に東京電力が公表している「建屋内の空間線量率について」^[41]によると、1号機タービン建屋地下1階の線量率は0.55~60 mSv/hであり、試算された空間線量率と概ね近い値であることが確認できた。

(3) 汚染コンクリート量の試算

ひび割れ解析で試算された地震荷重後のひび割れ発生量（図 3-62）と、浸透量予測の結果（図 3-63）に基づき、廃棄物発生量（汚染物量）を試算した。試算は次の要領で行った。

- ・ 図 3-62 で示した地震動後の壁面の表面ひび割れ分布から、図 3-64 のように 1 m² を代表として抽出する。拡大し、この範囲のひび割れ延長を求める。
- ・ ひび割れ（青線）に沿って幅 5 mm 以内の領域をひび割れが影響するエリア（ひび割れ部）、それ以外をひび割れの影響を受けないエリア（ひび無し部）とし、壁面を 2 つのエリアに振り分ける。
- ・ 各エリアにおいて、表面から壁奥に向かって浸透した元素濃度分布は、浸透量予測（図 3-63）に従うとする。
- ・ 汚染濃度がクリアランスレベル（Cs は 100 Bq/kg、Sr は 1000 Bq/kg）以下になる到達深さ、単位面積あたりの汚染物量を求め、ひび割れ密度（単位面積あたりのひび割れ総延長）（m/m²）と汚染量との関係を求める。（図 3-65）

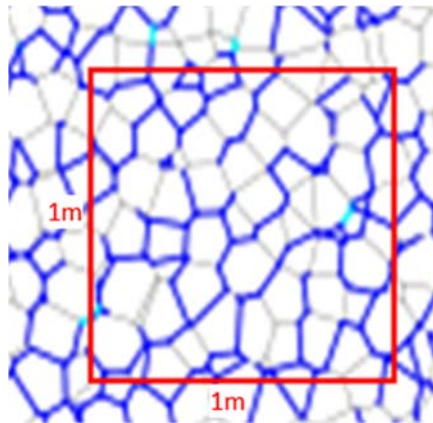


図 3-64 ひび割れ解析で得られたひび割れ分布

画像解析により、図 3-64 におけるひび割れ部の総延長は 10.03 m、1 m² 角の範囲でひび割れ部が占める面積の比率は 6.9 % と算定された。

ひび割れ部/ひび無し部の面積と、浸透量予測計算によって得られたひび無し部/ひび割れ部のクリアランスレベルを超える汚染域の深さととの積から、コンクリート壁面 1 m² あたりの汚染物量は 0.082 m³（コンクリートの単位容積質量を 2,300 kg/m³ とした場合 190 kg）程度であると試算された。この試算結果は、FAC コンクリートを想定したものであり、OPC コンクリートの場合は汚染物量が変わる可能性がある。ただし、実験は中性化深さ 7 mm の FAC コンクリートによるものであり、現実の FAC コンクリートの中性化深さが 35 mm とすると、FAC コンクリートの中性化部分の見かけの拡散係数は OPC コンクリートと同等になっている可能性もあり、正確な深さの推定にはより詳細な検討が必要となる。

ここで、ひび割れ密度（単位面積あたりのひび割れの総延長）を変えた場合の汚染物量の試算結果を図 3-65 に示す。今回の試験結果および汚染物量予測の考え方においては、壁面にひび割れが多いほど発生する汚染物量は多くなるものの、現時点で想定されるひび割れ量の範囲では、汚染物の発生量に及ぼすひび割れの影響は、それほど大きくないと予想された。

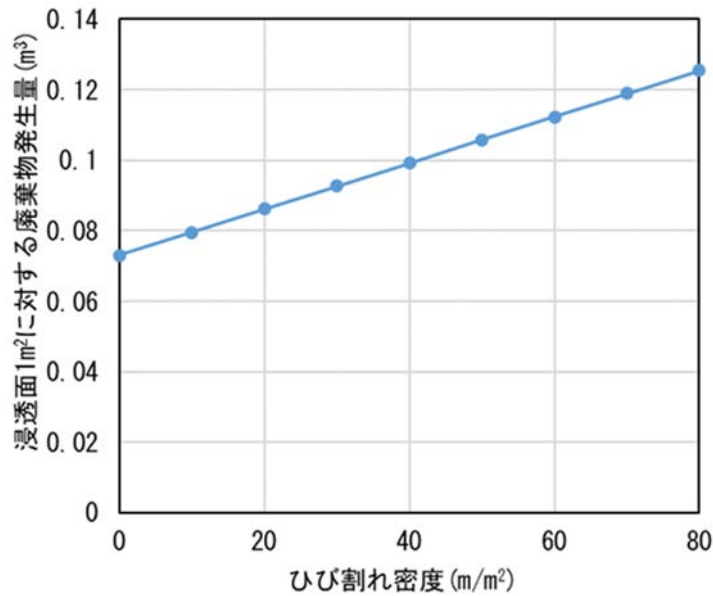


図 3-65 単位面積あたりの汚染物量とひび割れ総延長（ひび割れ密度）との関係

(4) まとめ

本節では、廃棄物処理処分において想定されるコンクリートの状態を具体的に提示することを目的に、3.1～3.3 節までのシミュレーションによるひび割れの状態設定、浸透挙動解析および浸透試験の結果と、1F 建屋コンクリートの汚染状況に関する既往の報告内容を踏まえ、汚染コンクリートの試算方法について検討し、1F 建屋の地下構造物（タービンピット）で想定される廃棄物の状態について取りまとめた。

開発した RBSM 数値モデルに基づき、地震荷重後に発生するひび割れ状況を試算した結果、1 m² 角の範囲におけるひび割れ総延長は 10.03 m となった。また、試算されたひび割れ発生量と浸透予測の計算より、原子炉等規制法に基づくクリアランス基準（Cs は 100 Bq/kg、Sr は 1000 Bq/kg）を超える放射性核種濃度になる領域の物量（汚染物量）を試算した結果、コンクリート壁面 1 m² あたりの汚染物の総量は 0.082 m³（コンクリートの単位容積質量を 2,300 kg/m³ とした場合 190 kg）程度となった。

3.5 研究推進

(1) 令和3年度までの実施内容および成果（概要）

第1回英知事業WS、英知事業の廃棄物関連課題に係る情報交換会に参加し、CLADSを紹介したニーズ側との情報交換を実施した。

また、研究実施計画の策定、全体の結果の取りまとめ等を協議するための全体会合を、令和2年度はオンラインで計3回、令和3年度はオンラインおよび対面で計4回開催し、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして、研究を進めた。

この他、英知事業の廃棄物関連課題に係る研究課題間の情報交換として、北海道大学小崎完教授の研究チームとの会合も、令和2年度および3年度に各1回開催した。

(2) 令和4年度実施内容および成果

令和4年度は、第6回1F廃炉国際フォーラム、NDF主催の技術戦略WSに参加し、意見交換・情報収集を行った他、研究成果について論文投稿、学会発表も行った。

また、本研究を推進するにあたり、研究実施計画の策定、全体の結果の取りまとめ等を協議するための全体会合をオンラインおよび対面で計3回開催し、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして、研究を進めた。令和4年度の全体会合の開催実績を表3-24に示す。

この他、英知事業の廃棄物関連課題に係る研究課題間の情報交換として、北海道大学小崎完教授の研究チームとの会合も開催した。また、線量率計算による汚染密度の妥当性検証では、小崎完教授の研究チームの北海道大学渡辺准教授と連携して進めた。

所期の全体計画は概ね順調に進んだ。

表 3-24 令和4年度の全体会合の開催実績

回数	開催日	議事概要
第1回	令和4年7月20日(水)	<p><キックオフミーティング></p> <ul style="list-style-type: none"> ① 令和4年度の到達目標の確認 ② 各機関の進捗、今後の予定の確認 <ul style="list-style-type: none"> ➤ RBSM用データ取得/解析手法検討 (東京大学/名古屋大学) ➤ 浸透挙動解析の手法検討 (太平洋コンサルタント/太平洋セメント) ➤ ¹³⁷Csと⁹⁰Srの浸透試験 (国立環境研究所/北海道大学) ➤ α核種試験 (JAEA) ③ 機関を跨る内容の調整 (試験材料、試験体受渡等) ④ 令和4年度のスケジュール確認
第2回	令和4年10月3日(月)	<p><進捗確認に関する打合せ></p> <ul style="list-style-type: none"> ① 各機関の進捗確認 <ul style="list-style-type: none"> ➤ RBSM用データ取得/解析手法検討 (東京大学/名古屋大学) ➤ 浸透挙動解析の手法検討 (太平洋コンサルタント/太平洋セメント) ➤ ¹³⁷Csと⁹⁰Srの浸透試験 (国立環境研究所/北海道大学) ➤ α核種試験 (JAEA) ② 今後のスケジュール確認
第3回	令和4年12月23日(金)	<p><進捗確認に関する打合せ></p> <ul style="list-style-type: none"> ① 各機関からの進捗確認 <ul style="list-style-type: none"> ➤ RBSM用データ取得/解析手法検討 (東京大学/名古屋大学) ➤ 浸透挙動解析の手法検討 (太平洋コンサルタント/太平洋セメント) ➤ ¹³⁷Csと⁹⁰Srの浸透試験 (国立環境研究所/北海道大学) ➤ α核種試験 (JAEA) ② 最終成果取りまとめに向けた総合討論 ③ 報告書作成/報告会等のスケジュール確認

4. 結言

本章では、令和4年度までに得られた成果の概要と、残された課題について述べる。

(1) 核種の長期挙動シミュレーションに向けた部材のひび割れ幅・深さと密度を含む状態設定の検討

① メソスケールひび割れ解析に必要な各種物性値の取得

コンクリート試験体について、乾燥後、また、再吸水後の物性値を取得するとともに、画像相関法を用いて吸水過程中のひずみの変化を取得した。また、X線ラジオグラフィにより水分の移動状態についても測定した。

その結果、乾燥に伴う乾燥収縮、質量減少、剛性低下が、再吸水に伴い回復する傾向を確認した。再吸水過程において、画像相関法を用いてひずみの分布が変化すること、X線ラジオグラフィにより水分の分布が変化すること、ひずみ分布と水分分布の比較により、再吸水のフロントが対応する傾向を確認した。

② メソスケールひび割れ解析の実施とひび割れ量の評価

コンクリートの打ち込みから、供用期間ならびに地震時の応答を考慮したひび割れ性状について数値解析により示した。地震時には、場合によっては貫通ひび割れが生じる可能性が示された。ただし、この荷重は相当に大きくなってからなので、地震時の応答変異などとの関係から、ひび割れの程度を推定することが重要となる。

また、ひび割れから水分の吸水挙動について、ひび割れの開閉を考慮した数値モデルの提案を行い、解析を行った。定性的には実験データをよく表現し、モルタル部の膨張によるひび割れの閉塞や、それに伴う吸水速度の変化（吸水高さと同時間の平方根の関係において線形関係から逸脱する様子）が表現できることを確認した。

(2) コンクリート部材の状態を考慮した浸透挙動解析の手法検討

① モデルによる核種浸透シミュレーション

令和4年度は、令和3年度までに課題として挙げられた粗骨材による収着やC-A-S-H等の炭酸化によって生成するアルミノシリケートゲルによる収着をモデルに反映した。また、様々な条件（OPC/FAC、健全/炭酸化、飽水/乾燥、ひび割れの有/無、液相濃度の高/低）の浸透試験について計算し、特にCsの浸透について計算によって実験結果が再現できていることが確認できた。また、改良したプログラムによって1FのコンクリートのCs、Sr浸透を計算し、骨材量や炭酸化程度、ひび割れの有無が浸透に大きく影響することがわかった。

今後の課題として、Srの表面濃度の増加が再現できなかったため、コンクリート中へのSrの収着についてより詳細に検討する必要がある。また、1FのCs、Sr浸透を予測するためには実験室で作製した試料だけでなく、実構造物の評価を行い、条件設定に組み込む必要がある。

② ダメージを受けたコンクリートの核種移行評価

令和3年度までに成形したコンクリート試験体を加工してひび割れを導入した試験片を複数個作製し、CsClとSrCl₂の混合溶液に浸漬して、断面のEPMA面分析を実施した。面分析の結果に基づき、ひび割れ部における浸透挙動の評価手法を検討し、検討した手法により、浸透挙動を計算した。

(3) 実際の核種の種類・濃度を考慮した収着/浸透挙動評価

① 低濃度領域での¹³⁷Csと⁹⁰Srの競合浸透の評価

モルタルを用いた検討では、種々の状態が異なる条件、すなわち溶液側としてはCs、Srの競合イオン（それぞれK、Ca）の存在、実汚染履歴の再現（1日海水浸漬+初期汚染水）、試料側としては乾燥炭酸化、骨材種類（実使用された川砂利）を考慮し、材齢約1年の浸透状況を調べた。

- ・ 競合イオンの存在で、Cs、Srともに浸透が増加した。
- ・ 汚染履歴の再現（1日海水へ浸漬）によって、Srは浸透が増加した。
- ・ 骨材へのCs吸着によって、Csの浸透は抑制され、濃度依存性（低濃度で抑制大）があった。
- ・ 実験結果からフィックの拡散則で見かけの拡散係数を算出し、実汚染に近い乾燥炭酸化試料を汚染履歴再現条件で1年間浸漬した場合について、クリアランスレベル（Csは100 Bq/kg、Srは1000 Bq/kg）となる浸透深さは、Csで19 mm、Srで15 mmであった。

ひび割れを導入した乾燥炭酸化コンクリート（Cs、Srそれぞれ4個）を実汚染履歴条件で浸透を行い、材齢7日と材齢60日で浸透プロファイルを測定し、ひび割れが浸透に及ぼす影響を検討した。

- ・ Csの浸透において、ひび割れ開口部が0.04 mm以下のひび割れは浸透に大きな影響を与えなかった。0.2 mm以上の場合は明確に深部まで浸透した。
- ・ Srは炭酸化コンクリートのひび割れ部において、ひび割れが0.04 mmであっても健全部より深く浸透した。ひび割れが大きい方がより浸透は早い可能性はあるが、不明確であり今後の検討が必要である。
- ・ Cs/Srともにひび割れの影響を見かけの拡散係数 D_a として、健全部とともに比較評価した。 D_a は材齢の経過に従い、Cs、Srともにひび割れの有無によらず大きく低下し、ばらつきも小さくなった。
- ・ ひび無し部の D_a はCsとSrでほぼ同じ $4 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ であったが、ひび割れ部での D_a はCsでは $9 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 、Srでは $33 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ とSrで大きくなった。
- ・ 上記の D_a を用い、タービンピットから汚染水が除去された7年材齢での浸透深さを推定した。ひび無し部では、Cs、Srともに72 mm、ひび割れ部ではCsは110 mm、Srでは180 mmとなった。ただし、見かけの拡散係数は、2ヶ月材齢よりも1年材齢では小さくなると見込まれ、さらに汚染水中のCsとSr濃度は経時的に低下しているため、この数値は安全側である可能性が考えられる。

② α 核種のコンクリート部材への収着挙動評価

汚染水とセメントペーストが長期に接触した場合に α 核種が浸透する様子調べるために1年間の浸漬を行った。浸漬時間が長くなると浸漬液と接触している表層においてPuおよびAmの収着量は増加する。その一方で、セメントペースト内部へはおおよそ1 mmまでの浸透に留まり、浸漬時間が長くなることにより浸透が深くなる影響は見られなかった。また、セメントペーストの変質状態や海水の予備浸漬は浸透に有意な変化を与えなかった。

建屋コンクリートに生じたひびに水が浸入して浸透が進む場合を想定して、ひび幅の影響に着目してPuおよびAmの浸透の影響を調べた。ひび幅0.1 mmではひびがない場合と同様に1 mm程度までしか浸透しなかったが、0.5 mm以上のひびが存在する場合、浸漬時間が長くなることでより深くセメントペースト内にPuおよびAmが浸透した。事故時にコンクリー

トに大きなひびが生成している場合に、 α 核種が深く浸透している可能性が示唆された。

(4) 処理・処分を見据えたコンクリート廃棄物の状態検討

(1)～(3)項の検討結果と、1F 建屋コンクリートの汚染状況に関する既往の報告内容を踏まえ、汚染コンクリートの試算方法について検討し、想定される廃棄物の状態について取りまとめた。

(5) 研究推進

第6回 1F 廃炉国際フォーラム、NDF 主催の技術戦略 WS に参加し、意見交換・情報収集を行った他、研究成果について論文投稿、学会発表も行った。また、研究の進捗確認および今後の方針を協議するための会合を適宜開催するとともに、研究課題間の情報共有として、北大小崎教授の研究チームとの会合も開催した。

参考文献

- [1] 北海道大学, 平成 30 年度文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 汚染コンクリートの解体およびそこから生じる廃棄物の合理的処理・処分の検討 成果報告書, 2020, 111p.
- [2] 名古屋大学, 平成 31 年度文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究 成果報告書, 2020, 128p.
- [3] Japan Concrete Institute. Thermal Crack Control Tests of Reinforced Concrete Wall Structure Subjected to Continuous Restraint from its Bottom. The Guideline for Control of Cracking of Mass Concrete 2008. 2008.
- [4] Azenha, M., Kanavaris, F., Schlicke, D., Jędrzejewska, A., et al. Recommendations of RILEM TC 287-CCS: thermo-chemo-mechanical modelling of massive concrete structures towards cracking risk assessment. *Materials and Structures*, vol.54, 2021, 135.
- [5] Architectural Institute of Japan. Recommendation for the Practice of Thermal Cracking Control of Massive Concrete in Buildings, 2023.
- [6] Srimook, P., Maruyama, I., Shibuya, K., Tomita, S., Igarashi, G., Hibino, Y., Yamada, K. Evaluation of thermal crack width and crack spacing in massive reinforced concrete structures subject to external restraints using RBSM, *Engineering Fracture Mechanics*, vol.274, 2022, 108800.
- [7] Sasano, H., Ippei, M., Nakamura, A., Yamamoto, Y., Teshigawara, M. Impact of Drying on Structural Performance of Reinforced Concrete Shear Walls, *Journal of Advanced Concrete Technology*, vol.16, 2018, pp.210-232.
- [8] Rymes, J., Maruyama, I., Shimamoto, R. et al. Long-term Material Properties of a Thick Concrete Wall Exposed to Ordinary Environmental Conditions in a Nuclear Reactor Building: the Contribution of Cement Hydrates and Feldspar Interaction, *J. Adv. Concr. Technol*, vol.17, 2019, pp.195-215.
- [9] McDonald, P. J., Istok, O., Janota, M., Gajewicz-Jaromin, A. M., & Faux, D. A., Sorption, anomalous water transport and dynamic porosity in cement paste: A spatially localised ¹H NMR relaxation study and a proposed mechanism, *Cement and Concrete Research*, vol.133, 2020, 106045.
- [10] Janota, M., Istok, O., Faux, David A., McDonald, Peter J., Factors influencing the time dependence of porosity relaxation in cement during sorption: Experimental results from spatially resolved NMR, *Cement and Concrete Research*, vol.120, 2019, pp.256-266.
- [11] Kiran, R., Samouh, H., Matsuda, A., Igarashi, G., et al, Water Uptake in OPC and FAC Mortars under Different Temperature Conditions, *Journal of Advanced Concrete Technology*, vol.19, 2021, pp.168-180.

- [12] Nakamura, H. et al., Time-dependent Structural Analysis Considering Mass Transfer to Evaluate Deterioration Process of RC Structures, *Journal of Advanced Concrete Technology*, vol.4, 2006, pp.147-158.
- [13] Singla, A. et al., Modelling of Capillary Water Absorption in Sound and Cracked Concrete Using a Dual-lattice Approach: Computational aspects, *Construction and Building Material*, vol.320, 2022, 125826.
- [14] Ogawa, K., Development of 2D strain distribution on surfaces of concrete during water uptake by using DICM, Bachelor thesis, The University of Tokyo. (Dec. 6th 2022).
- [15] Sasano, H. and Maruyama, I., Mechanism of drying-induced change in the physical properties of concrete: A mesoscale simulation study, *Cement and Concrete Research*, vol.143, 2021, 106401.
- [16] Wu, Z., Wong, H., Chen, C., Buenfeld, N., Anomalous water absorption in cement-based materials caused by drying shrinkage induced microcracks, *Cement and Concrete Research*, vol.115, 2019, pp.90-104.
- [17] Schulte Holthausen, R. and Raupach, M., Monitoring the internal swelling in cementitious mortars with single-sided 1H nuclear magnetic resonance, *Cement and Concrete Research*, vol.111, 2018, pp.138-146.
- [18] Alderete, N., Villagrán Zaccardi, Y., De Belie, N., Physical evidence of swelling as the cause of anomalous capillary water uptake by cementitious materials, *Cement and Concrete Research*, vol.120, 2019, pp.256-266.
- [19] Haas, J. et al., From C-S-H to C-A-S-H: Experimental Study and Thermodynamic Modeling, *Cem. Concr. Res.*, vol.68, 2015, pp.124-138.
- [20] Hosokawa, et al., Numerical Modelling of the Alkali Penetration into Cementitious Materials Using the Coupled Thermodynamic Phase Equilibrium Mass Transfer System, *Proceedings of the 15th International Congress on the Chemistry of Cement*, Prague, 2019.
- [21] 富田さゆり, 芳賀和子他, 放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究 (13)C-A-S-H に対する Cs、Sr の収着挙動のモデル化, 日本原子力学会 2022 年春の年会, オンライン, 2022, 2K01.
- [22] Hosokawa, Y. et al., Development of A Multi-species Mass Transport Model for Concrete with Account to Thermodynamic Phase Equilibriums, *Mater. Struct.*, vol.44, no.9, 2011, pp.1577-1592.
- [23] 土木学会, 2018 年制定コンクリート標準示方書[規準編]土木学会基準および関連規準, 2018, pp.402-406.
- [24] 山田一夫, 檜森恵大他, コンクリート構成物へのイオン吸着とイオン浸透の関係, *コンクリート工学年次論文集*, vol.45, no.1, 2023, pp.484-489.
- [25] 日本原子力研究開発機構, 東京大学, 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 (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 2022-057*, 2023, 98p.

- [26] 日本原子力研究開発機構, 東京大学, 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 (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 2021-047, 2022, 127p.
- [27] USGS, WATEQ4F, https://wwwbrrr.cr.usgs.gov/projects/GWC_chemtherm/software.htm (参照日: 2022年3月31日).
- [28] Lothenbach, B. et al., Thermodynamic Modelling of The Hydration of Portland Cement, *Cem. Concr. Res.*, vol.36, no.2, 2006, pp.209-226.
- [29] Loser, R. et al., Chloride Resistance of Concrete and Its Binding Capacity - Comparison Between Experimental Results and Thermodynamic Modeling, *Cem. Concr. Res.*, vol.32, 2010, pp.34-42.
- [30] Bénard, A. et al., Modelling of Pb Release During Portland Cement Alteration, *Adv. Cem. Res.*, vol.21, 2009, pp.1-10.
- [31] Lothenbach, B. et al., Cemdata18: A Chemical Thermodynamic Database for Hydrated Portland Cements and Alkali-activated Materials, *Cem. Concr. Res.*, vol.115, 2019, pp.472-506.
- [32] THERMODDEM, <https://thermoddem.brgm.fr> (参照日: 2023年3月31日).
- [33] Haga, K., et al., Quantification of Interaction Between Alkali Metalions and C-(A-)S-H/cement Paste for A Wide Range of Ion Concentrations, 15th International Congress on the Chemistry of Cement, 2019.
- [34] 秋田宏, 藤原忠司 他, 乾燥を受けるコンクリート中の水分移動を解析する手法, 土木学会論文集, vol.23, no.490, 1994, pp.101-110.
- [35] 野村顕雄, 田中宏志他, 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.
- [36] 原子力安全・保安院, 東京電力(株)福島第一原子力発電所1号炉高経年化技術評価書等に係る審査結果について, 2011.
- [37] Gajda, J., Absorption of Atmospheric Carbon Dioxide by Portland Cement Concrete, PCA R&D Serial no.2255a, 2011, 20p.
- [38] 東北電力株式会社, 女川原子力発電所2号炉 鉄筋コンクリート躯体の乾燥収縮および地震影響を踏まえた各条文の要求機能に対する機能維持の方針の整理 (第680回審査会合[平成31年2月14日]指摘事項に対する回答), 平成31年4月2日.
- [39] 野崎義行, 最新の海水の元素組成表(1996年版)とその解説, 日本海水学会誌, vol.51, no.5, 1997, pp.302-308.
- [40] 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.
- [41] 東京電力ホールディングス株式会社, 建屋内の空間線量率について, 1号機: 2017年1月1日~2017年1月31日.
<https://www.tepco.co.jp/decommission/data/surveymap/pdf/2017/sv-u1-20170331-j.pdf> (参照日: 2023年3月31日).

This is a blank page.

