

放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した  
合理的処理・処分方法の検討  
(委託研究)

－令和5年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業－

A Study on the Methodology for Rational Treatment/Disposal of  
Contaminated Concrete Waste Considering Volume Reduction of Waste  
(Contract Research)

－ FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource  
Development Project –

福島廃炉安全工学研究所 廃炉環境国際共同研究センター  
北海道大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,  
Fukushima Research and Engineering Institute  
Hokkaido University

December 2025

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](mailto: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](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討  
(委託研究)

ー令和 5 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー

日本原子力研究開発機構 福島廃炉安全工学研究所  
廃炉環境国際共同研究センター

北海道大学

(2025 年 7 月 7 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 5 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・基盤的研究およ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 5 年度に採択された研究課題のうち、「放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討」の令和 5 年度分の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、解体に伴い大量の発生が見込まれる放射性コンクリート廃棄物に着目し、減容・減量化策の現場適用について、コンクリート廃棄物の特性評価に基づき、典型的な再資源化処理工程を想定したうえでその課題を検討し、再資源化を含む合理的な処理・処分方法を検討・評価する。令和 5 年度には、放射性核種およびイオンの移行挙動への遷移帯の寄与を解明することを目的とし、セメント系試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の拡散試験、遷移帯を有する試料中のイオンの移動、Ca の溶脱試験を実施した。また、遷移帯を含む核種移行モデルを構築するため、界面を挟む 2 つの媒体の拡散特性を考慮した確率分布をモデル化し、このサンプリング手法をランダムウォーク粒子追跡法の濃度計算に実装した。再資源化・再利用に向けた処理方法の検討として、非放射性 Cs 水溶液に浸漬した模擬汚染コンクリートを調製し、その特性を評価した他、骨材分離試験および熱分析試験の環境整備を行った。再資源化物の性状評価としては、模擬汚染骨材およびそれを利用した模擬再生コンクリートを調製し、模擬汚染骨材からイオン交換水や被覆したセメントペースト、再生コンクリートへのイオンの移行挙動を確認した。さらに、骨材分離の際に発生する模擬セメント微粉を用いて異なる配合の模擬廃棄体を調製し、力学あるいは化学特性を取得するとともに放射性核種の浸出挙動に関する試験を開始した。これらの結果を基に、再利用・再資源化を含む放射性コンクリート廃棄物管理シナリオを評価するため、コンクリート汚染状況に関する知見を収集、整理するとともに再利用・再資源化に伴う物量を推計するためのツールを整備した。

---

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

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

A Study on the Methodology for Rational Treatment/Disposal of Contaminated Concrete Waste  
Considering Volume Reduction of Waste  
(Contract Research)

— FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

Hokkaido University

(Received July 7, 2025)

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 FY2023.

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 FY2023, this report summarizes the research results of the “A study on the methodology for rational treatment/disposal of contaminated concrete waste considering volume reduction of waste” conducted in FY2023.

The present study aims to evaluate rational waste management strategies incorporating reuse and recycling focusing on radioactive concrete waste, which will be massively generated from dismantling. Feasibility and challenges of aggregate recycling are considered assuming a typical recycled aggregate production technique, based on the characteristics of the concrete. In 2023, the migration behaviors of radionuclides and ions in cementitious materials having interfacial transition zones (ITZ) were investigated through diffusion and leaching experiments using radioactive and non-radioactive tracers and modeled by random walk particle tracking method with a sampling technique using a probabilistic distribution model for two media with an interface. Properties of surrogate contaminated concrete samples prepared by immersing in Cs solution were examined. Migration of ions was studied for surrogate contaminated aggregates and recycled concrete using the surrogate. In addition, surrogate waste package was prepared using by-product powder to study mechanical and chemical properties as well as leaching behavior of radionuclides. Information on properties of the contaminated concrete and tools to estimate the amount of concrete were organized in order to evaluate different waste management scenarios incorporating reuse/recycling.

Keywords: Radioactive Concrete Waste, Radionuclide Migration, Interfacial Transition Zone, Random Walk Particle Tracking, Recycled Aggregate Production Technique, Recycled Aggregate Concrete, By-Product Powder, Radioactive Waste Management

---

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

## 目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 .....	1
2. 平成 30 年度 採択課題 .....	2
3. 令和元年度 採択課題 .....	5
4. 令和 2 年度 採択課題 .....	8
5. 令和 3 年度 採択課題 .....	10
6. 令和 4 年度 採択課題 .....	12
7. 令和 5 年度 採択課題 .....	14
付録 成果報告書 .....	17

## 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
7. Accepted Proposal in FY2023.....	14
Appendix Result Report .....	17

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）

## 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 2 課題、日露 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 康一郎	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DESTAL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・ エネルギー
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	慶應義塾大学

## 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ックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (～R2. 3. 31) 竹下 健二 (～R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1～)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

## 4. 令和2年度 採択課題

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

公募期間：令和2年3月17日～令和2年5月14日（課題解決型）

令和2年5月13日～令和2年7月15日（国際協力型）

課題数：10 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題（若手研究 2 課題、一般研究 6 課題）

国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英）

## 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
$\alpha/\beta/\gamma$ 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
$\beta$ 、 $\gamma$ 、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）

## 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
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



課題名	研究代表者	所属機関
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）

## 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 $\gamma$ 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
$\alpha$ 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 (～R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1～)
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
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

## 7. 令和 5 年度 採択課題

令和 5 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 5 年 3 月 1 日～令和 5 年 4 月 14 日（課題解決型）

令和 5 年 4 月 12 日～令和 5 年 6 月 15 日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：9 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7 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 5 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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学
簡易非破壊測定に向けた革新的な $n \cdot \gamma$ シンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペデスタル部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研究	五十嵐 豪	名古屋大学
動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速 3 次元炉内環境モデリング	中村 啓太	札幌大学
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

課題名	研究代表者	所属機関
高バックグラウンド放射線環境における配管内探査技術の開発	鳥居 建男	福井大学
PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔光計測技術の研究開発	椎名 達雄	千葉大学

## 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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学
燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカオリンベースのジオポリマーの設計と特性評価	Yogarajah Elakneswaran	北海道大学

本報告書は、以下の課題の令和 5 年度分の研究成果について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
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

# 付録

## 成果報告書

This is a blank page.



令和 5 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

放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した  
合理的処理・処分方法の検討

(契約番号 R05I107)

成果報告書

令和 6 年 3 月

国立大学法人北海道大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人北海道大学が実施した「放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討」の令和5年度分の研究成果を取りまとめたものである。

## 目次

概略 .....	vii
1. はじめに .....	1-1
2. 業務計画 .....	2-1
2.1 全体計画 .....	2-1
2.2 実施体制 .....	2-3
2.3 令和5年度の成果の目標および業務の実施方法 .....	2-5
3. 実施内容および成果 .....	3-1
3.1 解体時の汚染コンクリートの特性把握 .....	3-1
3.1.1 コンクリート中の放射性核種移行実験 .....	3-1
3.1.2 遷移帯における移行挙動の解明ならびに電気泳動法による移行促進試験 .....	3-8
3.1.3 内部微細構造評価（再委託先：電力中央研究所） .....	3-11
3.1.4 核種移行モデル計算（再委託先：福井大学） .....	3-14
3.2 再資源化・再利用に向けた処理方法の検討 .....	3-18
3.2.1 汚染コンクリートからの骨材分離法の検討 .....	3-18
3.3 再資源化物の性状評価 .....	3-27
3.3.1 再生コンクリートの作製 .....	3-27
3.3.2 再生コンクリートからの核種移行評価 .....	3-29
3.4 廃棄体の性状評価 .....	3-33
3.4.1 模擬廃棄体（セメント微粉）調製・特性評価（再委託先：電力中央研究所） .....	3-33
3.4.2 セメント固化体からのU浸出実験（連携先：JAEA） .....	3-40
3.4.3 セメント固化体からのFP核種の浸出実験 .....	3-46
3.5 再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価 .....	3-49
3.5.1 廃棄物管理シナリオの構築・評価 .....	3-49
3.5.2 再利用・再資源化量、廃棄物量の推計手法の構築（再委託先：福井大学） .....	3-57
3.5.3 骨材クリアランスならびにセメント廃棄体化の要件の検討（連携先：JAEA） .....	3-59
3.6 研究推進 .....	3-61
3.6.1 人材育成 .....	3-61
3.6.2 研究推進 .....	3-61
4. 結言 .....	4-1
参考文献 .....	5-1

## 執筆者リスト

## 研究代表者

国立大学法人北海道大学

教授

小崎 完（研究代表者）

教授

杉山 隆文

教授

渡辺 直子

准教授

橋本 勝文

准教授

河口 宗道

助教

植松 慎一郎

## 再委託先

国立大学法人福井大学

講師

川崎 大介

特命教授

井口 幸弘

客員教授

柳原 敏

一般財団法人電力中央研究所

主任研究員

湊 大輔

主任研究員

森永 祐加

## 連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

廃炉環境国際共同研究センター ディビジョン長

駒 義和

研究副主幹

北垣 徹

研究主席

香西 直文

## 表一覧

表 3.1-1	$^{137}\text{Cs}$ の移行実験に供した試料の調製条件および拡散温度条件	.....	3-2
表 3.1-2	HCP ならびにモルタル試料中の $^{137}\text{Cs}$ の見かけの拡散係数 ( $D_a$ 、 $D_{a1}$ 、 $D_{a2}$ ) および移行した $^{137}\text{Cs}$ の総量 ( $M_1$ 、 $M_2$ )	.....	3-7
表 3.1-3	人工海水中のイオン濃度	.....	3-9
表 3.1-4	コンクリート供試体の力学特性	.....	3-13
表 3.2-1	模擬汚染コンクリートの XRF 分析の結果	.....	3-20
表 3.2-2	模擬汚染コンクリート中の Cs 濃度	.....	3-20
表 3.2-3	骨材分離中／後の粉塵の Cs 濃度	.....	3-25
表 3.3-1	浸漬条件と再生骨材の吸水率	.....	3-27
表 3.3-2	使用材料の配合表（模擬再生コンクリート）	.....	3-28
表 3.3-3	$10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の核種イオン濃度に対する再生骨材中の拡散評価	.....	3-32
表 3.4-1	コンクリートの作製に用いた材料	.....	3-34
表 3.4-2	コンクリートの配合	.....	3-34
表 3.4-3	モルタルの配合	.....	3-34
表 3.4-4	模擬廃棄体の材料	.....	3-36
表 3.4-5	模擬廃棄体の配合	.....	3-36
表 3.5-1	コンクリート構造物量の推定	.....	3-50
表 3.5-2	1F3 号機建屋の線量率	.....	3-52
表 3.5-3	コンクリート（鉄筋を除く）の放射化放射能濃度と核種ごとの D/C への寄与	.....	3-54
表 3.5-4	原子炉建屋コンクリート瓦礫中の放射性核種濃度	.....	3-56
表 3.5-5	建屋内のコンクリートの汚染にかかわる D/C の試算	.....	3-60

## 図一覧

図 1. 1-1	1F における放射性廃棄物管理の枠組み	.....	1-1
図 1. 1-2	本研究の枠組み	.....	1-2
図 2. 1-1	全体工程表	.....	2-2
図 2. 1-2	実施体制図	.....	2-4
図 3. 1-1	HCP 試料中の 2 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能分布	.....	3-5
図 3. 1-2	HCP 試料中の 1 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能濃度プロファイル	.....	3-5
図 3. 1-3	モルタル試料（未溶脱）中の 2 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能分布	.....	3-5
図 3. 1-4	モルタル試料（未溶脱）中の 1 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能濃度プロファイル	.....	3-5
図 3. 1-5	模擬溶脱モルタル試料中の 2 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能分布	.....	3-6
図 3. 1-6	模擬溶脱モルタル試料中の 1 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能濃度プロファイル	.....	3-6
図 3. 1-7	模擬汚染コンクリート試料中の 2 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能分布	.....	3-6
図 3. 1-8	模擬汚染コンクリート試料中の 1 次元 $^{137}\text{Cs}$ 放射能濃度プロファイル	.....	3-6
図 3. 1-9	HCP ならびにモルタル試料中の $^{137}\text{Cs}$ の $D_a$ の温度依存性	.....	3-8
図 3. 1-10	Ca の溶出挙動（浸漬試験）	.....	3-10
図 3. 1-11	Mg の溶出挙動（浸漬試験）	.....	3-10
図 3. 1-12	CT-XRD 連成法による内部構造評価	.....	3-10
図 3. 1-13	電気泳動試験による塩化物イオンの移動度	.....	3-11
図 3. 1-14	ナノインデンテーション法によるモルタルの微小領域のヤング率の分布	.....	3-12
図 3. 1-15	細孔の分類および測定方法と関連するコンクリートの物性	.....	3-13
図 3. 1-16	モルタルの積算細孔容積	.....	3-14
図 3. 1-17	モルタルの細孔径分布	.....	3-14
図 3. 1-18	2 領域の境界近傍における移動幅分布に関する体系	.....	3-15
図 3. 1-19	2 領域の境界近傍における移動幅の確率分布の理論解	.....	3-17
図 3. 1-20	理論解に基づいた境界付近での移動幅のサンプリング結果	.....	3-17
図 3. 1-21	従来のサンプリング方法との比較	.....	3-18
図 3. 2-1	1F 模擬コンクリートの塊の外観	.....	3-19
図 3. 2-2	硬質砂岩コンクリートの塊の外観	.....	3-19
図 3. 2-3	模擬汚染コンクリートの塊の外観（1F 模擬コンクリート）	.....	3-19
図 3. 2-4	模擬汚染コンクリートの塊の外観（硬質砂岩コンクリート）	.....	3-19
図 3. 2-5	骨材分離試験の試験装置の概要	.....	3-22
図 3. 2-6	骨材分離試験の試験装置の外観	.....	3-23
図 3. 2-7	骨材分離中の粉塵の濃度の時間変化（汚染 1F 模擬コンクリート）	.....	3-23
図 3. 2-8	骨材分離中の粉塵の濃度の時間変化（汚染硬質砂岩コンクリート）	.....	3-24
図 3. 2-9	骨材分離後の気中の粉塵濃度	.....	3-24
図 3. 2-10	骨材分離中の気中の粉塵濃度	.....	3-25
図 3. 2-11	熱重量測定の結果	.....	3-26
図 3. 2-12	示差熱測定の結果	.....	3-26
図 3. 2-13	XRD スペクトル	.....	3-26

図 3.3-1	再生骨材浸漬の様子	.....	3-28
図 3.3-2	供試体の断面図（外観写真）	.....	3-28
図 3.3-3	供試体概略図（単位は mm）	.....	3-28
図 3.3-4	Sr イオン濃度（模擬汚染再生骨材からの溶出量）	.....	3-30
図 3.3-5	Cs イオン濃度（模擬汚染再生骨材からの溶出量）	.....	3-30
図 3.3-6	Sr $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 浸漬期間：1 週間 吸水率：6.6%	.....	3-31
図 3.3-7	Cs $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 浸漬期間：1 週間 吸水率：7.0%	.....	3-31
図 3.3-8	LIBS 測定結果（3 元素の質量パーセント濃度）	.....	3-32
図 3.3-9	LIBS 測定位置	.....	3-33
図 3.4-1	模擬微粉の $^{29}\text{Si}$ MAS NMR スペクトル	.....	3-37
図 3.4-2	模擬微粉の $^{29}\text{Si}$ MAS NMR スペクトルのデコンボリューション結果	.....	3-37
図 3.4-3	模擬微粉の XRD/Rietveld 解析結果	.....	3-38
図 3.4-4	模擬微粉の XRD/Rietveld から得られた化合物の比率	.....	3-38
図 3.4-5	模擬廃棄体の一軸圧縮強度	.....	3-39
図 3.4-6	模擬廃棄体の微粉の含有率と一軸圧縮強度の関係	.....	3-39
図 3.4-7	$^{29}\text{Si}$ MAS NMR、XRD/Rietveld 解析による模擬廃棄体の水和率と微粉含有率の関係	.....	3-39
図 3.4-8	模擬廃棄体断面の反射電子像、元素マッピング、空隙マッピング	.....	3-40
図 3.4-9	模擬廃棄体断面の空隙率と微粉の含有率の関係	.....	3-40
図 3.4-10	模擬廃棄体断面の空隙率と一軸圧縮強度の関係	.....	3-40
図 3.4-11	ウランの炭酸錯体を用いたクロマトグラム	.....	3-42
図 3.4-12	6 価ウラン水溶液を添加した C-S-H (Ca/Si=1.0) 平衡水と脱離液のクロマトグラム	.....	3-43
図 3.4-13	C-S-H (Ca/Si=1.0) 平衡水と脱離液のクロマトグラム（ウラン添加無し）	.....	3-43
図 3.4-14	6 価ウラン水溶液を添加した C-S-H (Ca/Si=1.4) 平衡水と脱離液のクロマトグラム	.....	3-44
図 3.4-15	C-S-H (Ca/Si=1.4) 平衡水と脱離液のクロマトグラム（ウラン添加無し）	.....	3-44
図 3.4-16	6 価ウラン水溶液を添加したセメント平衡水と脱離液のクロマトグラム	.....	3-45
図 3.4-17	セメント平衡水と脱離液のクロマトグラム（ウラン添加無し）	.....	3-45
図 3.4-18	模擬微粉および模擬セメント固化体の SEM 画像	.....	3-47
図 3.4-19	模擬セメント固化体の切断面と IP 画像	.....	3-48
図 3.4-20	HCP 試料からの $^{137}\text{Cs}$ の浸出挙動	.....	3-48
図 3.5-1	廃棄物管理シナリオ評価の基本的な考え方	.....	3-49
図 3.5-2	汚染特性に基づく領域区分	.....	3-50
図 3.5-3	原子炉建屋 1 階の空間線量率測定値分布	.....	3-52
図 3.5-4	QAD-CGGP2 による線量率の計算体系	.....	3-52
図 3.5-5	空間線量率の計算結果（汚染密度： $100 \text{ Bq} \cdot \text{cm}^{-2}$ ）	.....	3-53
図 3.5-6	異なる親元素組成に基づく D/C 値計算結果の内訳	.....	3-56
図 3.5-7	汚染コンクリートに施す種々の処理の流れ	.....	3-57
図 3.5-8	一つの処理の前後における物量と放射能インベントリの収支モデルの概要	.....	3-58

## 略語一覧

北海道大学	:	国立大学法人北海道大学
電力中央研究所	:	一般財団法人電力中央研究所
JAEA	:	Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
福井大学	:	国立大学法人福井大学
原子力学会	:	一般社団法人日本原子力学会
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
HCP	:	Hardening Cement Paste (硬化セメントペースト)
w/c	:	水セメント比
$D_a$	:	見かけの拡散係数
$D_e$	:	実効拡散係数
$E_a$	:	活性化エネルギー
ICP-AES	:	Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy (誘導結合プラズマ発光分光分析装置)
XRF	:	X-ray Fluorescence (蛍光 X 線分析)
AAS	:	Atomic Absorption Spectrometry (原子吸光分光分析)
XRD	:	X-Ray Diffraction (X 線回折)
CT-XRD	:	Computed Tomography X-Ray Diffraction (計算機トモグラフィ X 線回折)
LIBS	:	Laser Induced Breakdown Spectroscopy (レーザー誘起ブレークダウン分光法)
EPMA	:	Electron Probe Micro Analyzer (電子プローブマイクロアナライザー)
NMR	:	Nuclear Magnetic Resonance (核磁気共鳴分光法)
C-S-H	:	Calcium Silicate Hydrate (カルシウムシリケート水和物)
模擬微粉	:	微粉模擬試料
SEM	:	Scanning Electron Microscope (走査電子顕微鏡)
EDS	:	Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (エネルギー分散 X 線分光測定)
ICP-MS	:	Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (誘導結合プラズマ質量分析装置)
英知事業	:	英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業



## 概略

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下、「1F」と略す。）では、建屋構造物の解体により大量の放射性コンクリート廃棄物が発生することが見込まれる。合理的に廃炉を進めるためには、放射性コンクリート廃棄物の減容・減量化が重要である。放射性コンクリートを骨材とセメントに分離・分別し（限定）再利用することは、放射性コンクリート廃棄物を大幅に減容するうえで有効な方法の一つと考えられる。しかし、このような方法の現場適用には、骨材／セメントのマスバランス、骨材とセメントに分離・分別する際の放射性核種の再分配挙動、骨材の用途、汚染セメントを廃棄体化した際の長期安定性、クリアランス制度の1Fでの運用条件など検討すべき課題がある。そこで、本研究では、コンクリート中の放射性核種濃度分布の経時変化を含む1Fコンクリート廃棄物の特性評価に基づいて、典型的な処理工程を想定したうえで上記の課題を検討するとともに、クリアランスの運用や廃棄体の制約など放射性コンクリート廃棄物の合理的な処理・処分方法を検討する。

放射性コンクリートにおけるセメントー骨材界面の放射性核種濃度、セメントー骨材間の放射性核種の分配特性については、非破壊計算機トモグラフィ X 線回折（以下、「CT-XRD」と略す。）連成法による、セメントー骨材界面の遷移帯の微細構造観察および変質特性評価に加えて、放射性トレーサーを用いた移行実験ならびに電気泳動法による移行促進実験によって現象理解を図る。また、ランダムウォーク粒子追跡法による3次元核種濃度分布の計算モデルにセメントー骨材間の放射性核種の移行挙動を組み込み、時間経過、浸透深さ等のパラメータ変化に伴う放射性核種のセメントー骨材間の分配状態変化の予測を可能とする。コンクリート廃棄物からの骨材分離・分別は、2次廃棄物の発生量を低減する処理方法として破碎のみで骨材の分離を行わず、原骨材に付着したモルタル分を含めたコンクリート塊として再利用する対応策に加えて、高品質の骨材回収が期待できる加熱条件下でのすりもみ法を想定し、温度およびすりもみの適用条件の最適化を図る他、分離・分別時に発生する放射性ダスト量の評価ならびにその対応策の検討を行う。一方、骨材再利用については、汚染コンクリートの解体および破碎後の安全な利用方法、放射性核種の分配、再生骨材の品質および環境負荷の評価を行う。さらに、骨材再利用によって生じる、汚染したセメント粒子・粉末については、セメント固化を想定して、固化条件を検討する他、水和あるいは変質程度の異なるセメント廃棄物粒子・粉末をセメントで固化した不均一な固化体試料の特性を多重核磁気共鳴法などの種々の分析法により把握する。また、処分環境下での固化体からの放射性核種の浸出挙動に関して、放射性トレーサーを用いた浸出実験から理解を図る。なお、骨材再利用ならびにセメントの廃棄体化については、1Fからの廃棄物の特性を考慮して、クリアランス制度の運用条件や廃棄体の制約などの要件を検討する。また、以上の結果を総合して、解体から最終処分までの全工程を俯瞰した放射性廃棄物管理シナリオ評価に減容処理として骨材再利用のシナリオを組み込み、その利点・課題点の抽出を行う。

令和5年度には、解体時の汚染コンクリートの特性把握として、放射性核種およびイオンの移行挙動への遷移帯の寄与を解明することを目的にコンクリート、モルタル試料中の $^{137}\text{Cs}$ の拡散試験、遷移帯を有する試料中のイオンの移動試験、Caの溶脱試験を実施した。モルタル試料中の $^{137}\text{Cs}$ 拡散試験結果からは、遷移帯での移行である可能性のある拡散プロセスを確認し、また、イオンの移動試験からは、セメントペーストー骨材境界層の比表面積と物質移行性に関係性があることを確認した。ランダムウォーク粒子追跡法を改良し、遷移帯を含む核種移行モデルを構築するため、界面を挟む二つの媒体の拡散特性を考慮した確率分布をモデル化し、このサンプリング手法をランダムウォーク粒子追跡法の濃度計算に実装した。再資源化・再利用に向けた処理方法の検討としては、1 wt%前後のCs濃度をもつ模擬汚染コンクリートを調製し、その特性を評価した他、骨材分離試験および熱分析試験の環境整備を行い、粉塵の発生量、サイズ、Cs濃度などの分析を

開始した。なお、解体時の汚染コンクリートの特性把握、再資源化・再利用に向けた処理方法の検討では、一般財団法人電力中央研究所（以下、「電力中央研究所」と略す。）が調製した共通のコンクリート試料を使用した。

再資源化物の性状評価として、CsCl あるいは SrCl<sub>2</sub> 水溶液に浸漬して模擬汚染骨材を調製し、セメントペーストで模擬汚染骨材を被覆した模擬再生コンクリートおよび実構造物と同じ配合で模擬汚染骨材を使用した模擬再生コンクリートを調製した。模擬汚染骨材からイオン交換水への核種イオンの溶出挙動および被覆したセメントペーストへの核種イオンの移行挙動を確認した。

また、廃棄体の性状評価のため、コンクリート供試体を骨材分離してセメント微粉模擬試料（以下、「模擬微粉」と略す。）を調製し、その微粉を用いて模擬廃棄体を調製した。模擬廃棄体は、微粉模擬試料、セメントなどの配合および材料種と力学あるいは化学特性を関連づけるため、強度、水和率、微細構造および元素マッピングを取得した。模擬廃棄体の一軸圧縮強度試験では、微粉の含有率が高いほど強度が低下したが、これは微粉の含有率の上昇に伴い空隙量が増加しているためであると考えられた。セメント固化体からの U 浸出実験のための基礎データとして、U の炭酸錯体の分析を実施した。また、U を添加したカルシウムシリケート水和物（以下、「C-S-H」と略す。）平衡水、セメント平衡水および U 添加前の平衡水を分析した。さらに、模擬セメント固化体からの <sup>137</sup>Cs の浸出実験に着手した。

再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価のため、コンクリート汚染状況に関する知見を収集、整理し、汚染特性に基づいて原子炉施設を領域に区分した。また、建屋内の空間線量率から汚染密度を概算した。放射化による核種濃度は、1F 事故（以下、「事故」と略す。）による汚染に由来する <sup>137</sup>Cs 濃度と比較すると数桁から 8 桁小さく、クリアランスの際に重要となる放射化核種は、コンクリートの場合には親元素の濃度にかかわらず、<sup>60</sup>Co、<sup>152</sup>Eu、<sup>154</sup>Eu であり、これら 3 核種で ΣD/C の 9 割以上を占めた。再利用・再資源化量、廃棄物量を推計するため、単一の汚染コンクリートを対象にその核種濃度分布を考慮したうえで、想定される処理（表面研り、骨材／セメント分離）を施した際に発生する放射性廃棄物や再利用対象物の物量や核種濃度を算出するモデルを構築した。事故による汚染のみを考慮した場合、コンクリート中の放射性核種としては、<sup>137</sup>Cs が 9 割程を占め支配的であり、次いで、<sup>60</sup>Co、<sup>134</sup>Cs、<sup>125</sup>Sb、<sup>90</sup>Sr と続き、これらの核種で 99% を占めることがわかった。さらに、処分に影響しうる重要な核種として、Pu 等のアクチノイド核種その他、<sup>99</sup>Tc、<sup>63</sup>Ni、<sup>14</sup>C が挙げられた。

令和 5 年度には、五つのサブテーマそれぞれで手法確立や環境整備を図った。令和 6 年度には、令和 5 年度の成果をもとにデータを取得するとともに、サブテーマ間の連携を図りつつ研究を推進する計画である。

## 1. はじめに

原子力発電所で用いられるコンクリートは膨大であり、その総量は 110 万 kW 級の BWR 原子炉で約 50 万トン、1F では 1 号機で約 12 万トン、2～3 号機で約 22 万トンと推定される[1][2][3]。通常の商用炉においては、放射化したコンクリートは炉心近傍に限定され、また、放射性核種による汚染コンクリートも表面に留まっていることから、廃止措置時に放射性廃棄物として処理・処分が求められるコンクリートは限られている。これに対し 1F では、多様な放射性核種による高いレベルの汚染が広範囲で発生したばかりでなく、その汚染が長期にわたって残存した状態にあることから、これらの放射性核種が他所へ移行することによって、あるいはその場でコンクリート深部へ浸透することによって汚染範囲が拡大しつつあり、大量の放射性コンクリート廃棄物が発生すると考えられる。

そこで、研究代表者を中心とし、1F の廃炉で発生する放射性コンクリート廃棄物の問題に着目した研究を実施してきた。平成 28～30 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、「英知事業」と略す。）「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」において、事故直後の高温環境により変質したコンクリート中の放射性核種の移行挙動に関する基礎的実験データを得るとともに、放射性コン

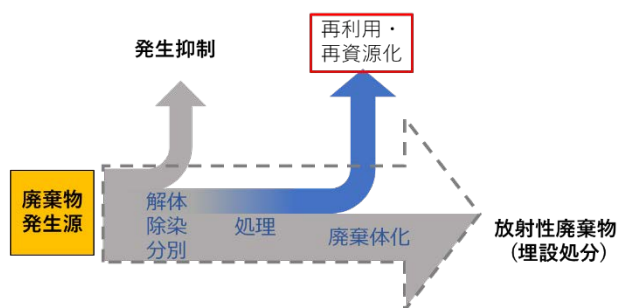


図 1.1-1 1F における放射性廃棄物管理の枠組み

クリート廃棄物量の経時変化を推計するツールの構築、1F の廃炉のエンドステートをパラメータとした廃棄物管理シナリオ評価を行い、原子炉建屋、タービン建屋の地下構造物の解体戦略が放射性廃棄物量に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。また、令和 2～4 年度英知事業「溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討」においては、溶脱変質コンクリートの特性評価を行うとともに、そこでの種々の放射性核種の移行挙動を実験的に明らかにした他、ランダムウォーク粒子追跡法による 3 次元核種濃度分布の計算モデルを構築した。さらに、コンクリート廃棄物量を推定するとともに、放射性廃棄物管理シナリオ評価において、潜在的放射線危険性（Radiological Hazard Potential：RHP）、安全性・環境の損失（Safety and Environmental Detriment Score：SED）を指標として算出する手法を構築する等の成果を得た。この結果、どのような解体シナリオであっても、放射性コンクリート処理・処分が 1F の廃炉作業に大きな影響を及ぼす課題であることを確認した。

これまでの成果を受け、本研究では、放射性コンクリート廃棄物の減容・減量に着目する（図 1.1-1）。原子力施設のコンクリート中の骨材の割合は  $73.4 \pm 9.6\%$  との報告がある[4]。一方、例えば、コンクリート中の放射性 Cs は、極一部は骨材表面に存在する粘土鉱物等に収着・固定化されるものの、大部分はセメント側に存在するとされることから、例えば放射性コンクリートを骨材とセメントに分離・分別し（限定）再利用することは、放射性コンクリート廃棄物を大幅に減容するうえで有効な方法の一つと考えられる。しかし、このような方法の現場適用には、骨材／セメントのマスバランス、骨材とセメントに分離・分別する際の放射性核種の再分配挙動、骨材の用途、汚染セメントを廃棄体化した際の長期安定性、クリアランス制度の 1F での運用条件など、検討すべき課題がある。そこで、本研究では、1F コンクリート廃棄物の特性評価に基づいて、典型的な処理工程を想定したうえで上記の課題を検討するとともに、クリアランスの運用や廃棄体の制約など放射性コンクリート廃棄物の合理的な処理・処分方法を検討する。



放射性コンクリートにおけるセメントー骨材界面の放射性核種濃度、セメントー骨材間の放射性核種の分配特性については、これまでの英知事業で行ってきた、非破壊 CT-XRD 連成法による、セメントー骨材界面の遷移帯の微細構造観察および変質特性評価に加えて、放射性トレーサーを用いた移行実験ならびに電気泳動法による移行促進実験によって現象理解を図る。また、ランダムウォーク粒子追跡法による 3 次元核種濃度分布の計算モデルにセメントー骨材間の放射性核種の移行挙動を組み込み、時間経過、浸透深さ等のパラメータ変化に伴う放射性核種のセメントー骨材間の分配状態変化の予測を可能とする。コンクリート廃棄物からの骨材分離・分別は、2 次廃棄物の発生量を低減する処理方法として破碎のみで骨材の分離を行わず、原骨材に付着したモルタル分を含めたコンクリート塊として再利用する対応策に加えて、高品質の骨材回収が期待できる加熱条件下でのすりもみ法を想定し、温度およびすりもみの適用条件の最適化を図る他、分離・分別時に発生する放射性ダスト量の評価ならびにその対応策の検討を行う。一方、骨材再利用については、汚染コンクリートの解体および破碎後の安全な利用方法、放射性核種の分配、再生骨材の品質および環境負荷の評価を行う。さらに、骨材再利用によって生じる、汚染したセメント粒子・粉末については、セメント固化を想定して、固化条件を検討する他、水和あるいは変質程度の異なるセメント廃棄物粒子・粉末をセメント固化した不均一な固化体試料の特性を多重核磁気共鳴法などの種々の分析法により把握する。また、処分環境下での固化体からの放射性核種の浸出挙動に関して、放射性トレーサーを用いた浸出実験による浸出促進実験から理解を図る。なお、骨材再利用ならびにセメントの廃棄体化については、1F からの廃棄物の特性を考慮して、クリアランス制度の運用条件や廃棄体の制約などの要件を検討する。また、以上の結果を総合して、これまでに行ってきた解体から最終処分までの全工程を俯瞰した放射性廃棄物管理シナリオ評価に、減容処理として骨材再利用のシナリオを組み込み、その利点・課題点の抽出を行う。図 1.1-2 に本研究の枠組みを示す。

令和 5 年度には、解体時の汚染コンク

リートの特性把握として、放射性核種およびイオンの移行挙動への遷移帯の寄与を解明することを目的に、コンクリート、モルタル試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の拡散試験、遷移帯を有する試料中のイオンの移動試験、Ca の溶脱試験を実施した。また、ランダムウォーク粒子追跡法による核種濃度計算手法を改良し、遷移帯を含む核種移行モデルを構築するため、界面を挟む二つの媒体の拡散特性を考慮した確率分布をモデル化し、このサンプリング手法をランダムウォーク粒子追跡法の濃度計算に実装した。

再資源化・再利用に向けた処理方法の検討としては、コンクリート供試体を非放射性の Cs 溶液に浸漬し、模擬汚染コンクリートを調製し、その特性を蛍光 X 線分析、原子吸光分光分析、X 線回折により評価した。また、骨材分離試験および熱分析試験の環境整備を行い、粉塵の発生量、サイズ、Cs 濃度などの分析を開始した。なお、解体時の汚染コンクリートの特性把握、再資源化・再利用に向けた処理方法の検討では、電力中央研究所が調製した共通のコンクリート試料を使用した。

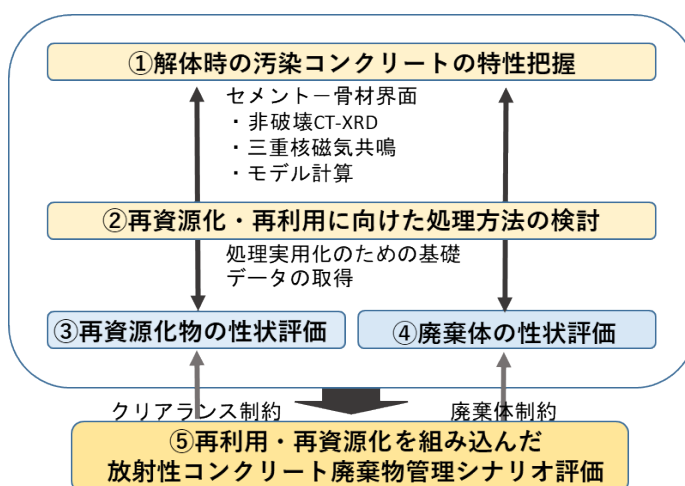


図 1.1-2 本研究の枠組み

再資源化物の性状評価として、CsCl あるいは  $\text{SrCl}_2$  水溶液にコンクリート試料を浸漬して模擬汚染骨材を調製して、セメントペーストで模擬汚染骨材を被覆して模擬再生コンクリートを調製し、さらに実構造物と同じ配合で模擬汚染骨材を使用して模擬再生コンクリートを調製した。これらの試料をイオン交換水に浸漬してイオンの溶出挙動を模擬汚染骨材内部の元素分析により被覆したセメントペーストへのイオンの移行挙動を確認した。

廃棄体の性状評価のため、コンクリート供試体を骨材分離してセメント微粉模擬試料を調製し、その微粉を用いて模擬廃棄体を調製した。模擬廃棄体は、模擬微粉、セメントなどの配合および材料種と力学あるいは化学特性を関連づけるため、強度、水和率、微細構造および元素マッピングデータを取得した。セメント固化体からの U 浸出実験のための基礎データとして、U の炭酸錯体の分析を実施した。また、U を添加した C-S-H 平衡水、セメント平衡水および U 添加前の平衡水を分析した。さらに、模擬セメント固化体からの  $^{137}\text{Cs}$  の浸出実験に着手した。

再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価のため、コンクリート汚染状況に関する知見を収集、整理し、汚染特性に基づいて原子炉施設を領域に区分した。また、建屋内の空間線量率から汚染密度を概算した。放射化による核種濃度を整理し、事故による汚染に由来する核種濃度と比較・評価するとともに、放射化核種のうち重要なものを抽出した。再利用・再資源化量、廃棄物量を推計するため、単一の汚染コンクリートを対象に、その核種濃度分布を考慮したうえで、想定される処理（表面研り、骨材／セメント分離）を施した際に発生する放射性廃棄物や再利用対象物の物量や核種濃度を算出するモデルを構築した。事故による汚染のみを考慮した場合の重要核種を抽出して、従来のクリアランスの基準を参照し、1F での実施を念頭に置いた運用条件を検討した。

上記は、研究を分担した 2 名の若手研究者が中心となり、試料の提供や分析、結果に関する議論などが精力的に実施され、成果の取りまとめにも中心的な役割を果たした。

以上のように、3 カ年計画の初年度である令和 5 年度の研究項目を実施し、所期の目標を達成した。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本研究では、研究期間の3年間に1Fの廃炉で大量に生じる放射性コンクリート廃棄物に対して、再利用・再資源化を含む合理的な処理・処分を検討するため、放射性核種のセメントー骨材間の移行・分配挙動などを実験的に明らかにするとともに、それらの現象を組み込んだランダムウォーク粒子追跡法による3次元核種濃度分布の計算モデルを構築する。また、コンクリート廃棄物再利用・再資源化のための処理方法を調査するとともに、加熱条件下での骨材分別実験を行い、条件の最適化ならびに発生する放射性ダスト量の評価を行う。さらに、処理物の品質に応じた再利用法を検討し、廃棄体化した放射性廃セメントの固相分析ならびに放射性核種の浸出試験を行い、その特性を評価する。一方、再利用ならびにセメントの廃棄体化におけるクリアランスの運用条件や廃棄体の制約などの1F固有の要件を検討する。以上の結果を総合し、解体から最終処分までの全工程を俯瞰して、コンクリートの再利用・再資源化を行う利点・課題を抽出し、放射性廃棄物管理シナリオを評価することを目的とする。

本計画は、五つのプロジェクトより構成され、それぞれ以下を目標としている。

#### (1) 解体時の汚染コンクリートの特性把握

変質コンクリート試料中におけるセメントペーストと骨材の界面の遷移帯の形成メカニズムを様々な条件下で検討するとともに、遷移帯が核種の移行挙動に及ぼす影響を明らかにする。また、コンクリート試料中の核種の移行メカニズムおよびセメントペーストー骨材間の放射性核種の分配特性を電気泳動法および放射性トレーサーを用いた移行実験および収着実験から明らかにする。さらに、ランダムウォーク粒子追跡法による核種濃度計算手法を改良し、セメントー骨材界面の遷移帯のモデルを構築する。

#### (2) 再資源化・再利用に向けた処理方法の検討

Csで汚染されたコンクリートの骨材分離を想定して、実験スケールでの加熱条件下の骨材分離試験を行い、加熱温度に対する骨材分離の程度、気中に放出される粉塵の量、また、粉塵中に含まれるCs等の成分を定量化する。さらに、加熱によって放出される蒸気中に含まれるCs等の成分も定量化する。これらの結果から、コンクリートから骨材を分離する際のCs等の再分配に関する基礎データを取得する。

#### (3) 再資源化物の性状評価

再生骨材を用いて作製した再生コンクリート材料の性状評価を行い、その適用可能性を検討する。

#### (4) 廃棄体の性状評価

汚染コンクリートの骨材分離・分別から発生するセメントペースト粒子のセメント固化を模擬した不均一セメント固化体試料を調製し、その物性評価を行う。あわせて、微粉の物性に応じたセメント系材料の仕様・配合を決定する。また、セメント固化体からの放射性核種( $^{137}\text{Cs}$ 、U等)の溶出挙動を、放射性トレーサーを用いた実験から解明する。Uの浸出試験においては、浸出するUの化学状態を明らかにする。

## (5) 再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価

廃棄物量を最小化する計算ツールを構築するとともに、廃棄物管理にかかわる SED や物量、コスト等を考慮して、再利用・再資源化を組み込んだ廃棄物管理シナリオを評価する。さらに、1F からの廃棄物の特性を考慮して、クリアランスの運用条件や廃棄体の制約などの要件を検討する。

本研究の全体工程を図 2.1-1 に示す。

項目	年度	令和5年度	令和6年度	令和7年度
(1) 解体時の汚染コンクリートの特性把握 ① コンクリート中の放射性核種移行実験 (北海道大学) ② 遷移帯における移行挙動の解明ならびに 電気泳動法による移行促進試験 (北海道大学)		試料作製、 核種移行試験、収着試験 遷移帯試料の作製	核種の支配的な拡散機構の解明 浸漬試験 電気泳動試験	核種移行に及ぼす 遷移帯の影響検討 特性評価・ イオン移行促進試験 実汚染コンクリート を用いた実験の検討
		コンクリートの基礎物性評価	内部微細構造を含む特性評価	移行挙動に及ぼす 変質・遷移帯の影響検討 内部微細構造を含む特性評価(継続)
		骨材-セメント界面の核種移行モデルの検討・構築		コンクリート中の 放射能濃度分布推定 取りまとめ
(2) 再資源化・再利用に向けた処理方法の検討 ① 汚染コンクリートからの骨材分離法の検討 (北海道大学)		模擬汚染コンクリートの作製 骨材分離試験・熱分析試験 環境の整備	骨材分離試験 熱分析試験	骨材分離試験、 温度等の影響把握 骨材分離時の Cs移行評価
		汚染模擬供試体の作製 研磨・切削環境 圧縮試験・凍結融解試験、 の整備 浸漬試験	内部組織の観察 実再資源化物の 調製と性状評価 再生コンクリートからの核種移行試験	圧縮試験 凍結融解試験 汚染再生コンクリート 環境影響評価
(3) 再資源化物の性状評価 ① 再生コンクリートの作製 (北海道大学) ② 再生コンクリートからの核種移行評価 (北海道大学)		微粉・廃棄体作製及び 特性評価 U化学状態分析法の検討 模擬セメント固化体作製、 核種浸出試験開始	微粉・廃棄体作製及び特性評価 セメント浸出液中のU化学状態の分析 脱着試験、核種浸出機構の解明	廃棄物の特性評価 配合検討 模擬セメント固化体からの U浸出液の分析 核種浸出挙動に及ぼす セメント変質の影響検討
(4) 廃棄体の性状評価 ① 模擬廃棄体(セメント微粉)調整・特性評価 (電力中央研究所) ② セメント固化体からのU浸出実験 (JAEA) ③ セメント固化体からのFP核種の浸出実験 (北海道大学)		1Fのコンクリート汚染の 情報整理 単一コンクリート計算モデルの構築	シナリオの構築、評価手法の検討 シナリオの廃棄物最小化モデル構築	廃棄物管理シナリオの評価 各シナリオの廃棄物量の計算 1Fからの廃棄物の特性を考慮した 要件の検討
(5) 再利用・再資源化を組み込んだ 放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価 ① 廃棄物管理シナリオの構築・評価 (北海道大学) ② 再利用・再資源化量、廃棄物量の 推計手法の構築 (福井大学) ③ 骨材クリアランスならびにセメント 廃棄体化の要件の検討 (JAEA)		研究計画の協議・進捗確認 △ まとめ・評価	研究計画の協議・進捗確認 △ まとめ・評価	研究計画の協議・進捗確認 △ まとめ・評価
(6) 研究推進				

図 2.1-1 全体工程表



## 2.2 実施体制

解体時の汚染コンクリートの特性把握および再資源化・再利用に向けた処理方法の検討は、国立大学法人北海道大学（以下、「北海道大学」と略す。）および電力中央研究所において行う。この際、電力中央研究所が提供する共通のコンクリート供試体を用いる。また、ランダムウォーク粒子追跡法による放射性核種の移行挙動のモデル化は、国立大学法人福井大学（以下、「福井大学」と略す。）において行う。再資源化物の性状評価は北海道大学において、廃棄体の性状評価は電力中央研究所が提供する共通のコンクリート供試体および骨材分離時に生じるセメント微粉模擬試料を用いて電力中央研究所、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」と略す。）、北海道大学において実施する。再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価は、北海道大学、福井大学、JAEA の専門家が 1F に関する最新のデータならびに廃棄物管理に関する最新の知見をもとに協力して実施する。

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



実施体制を図 2. 1-2 に示す。

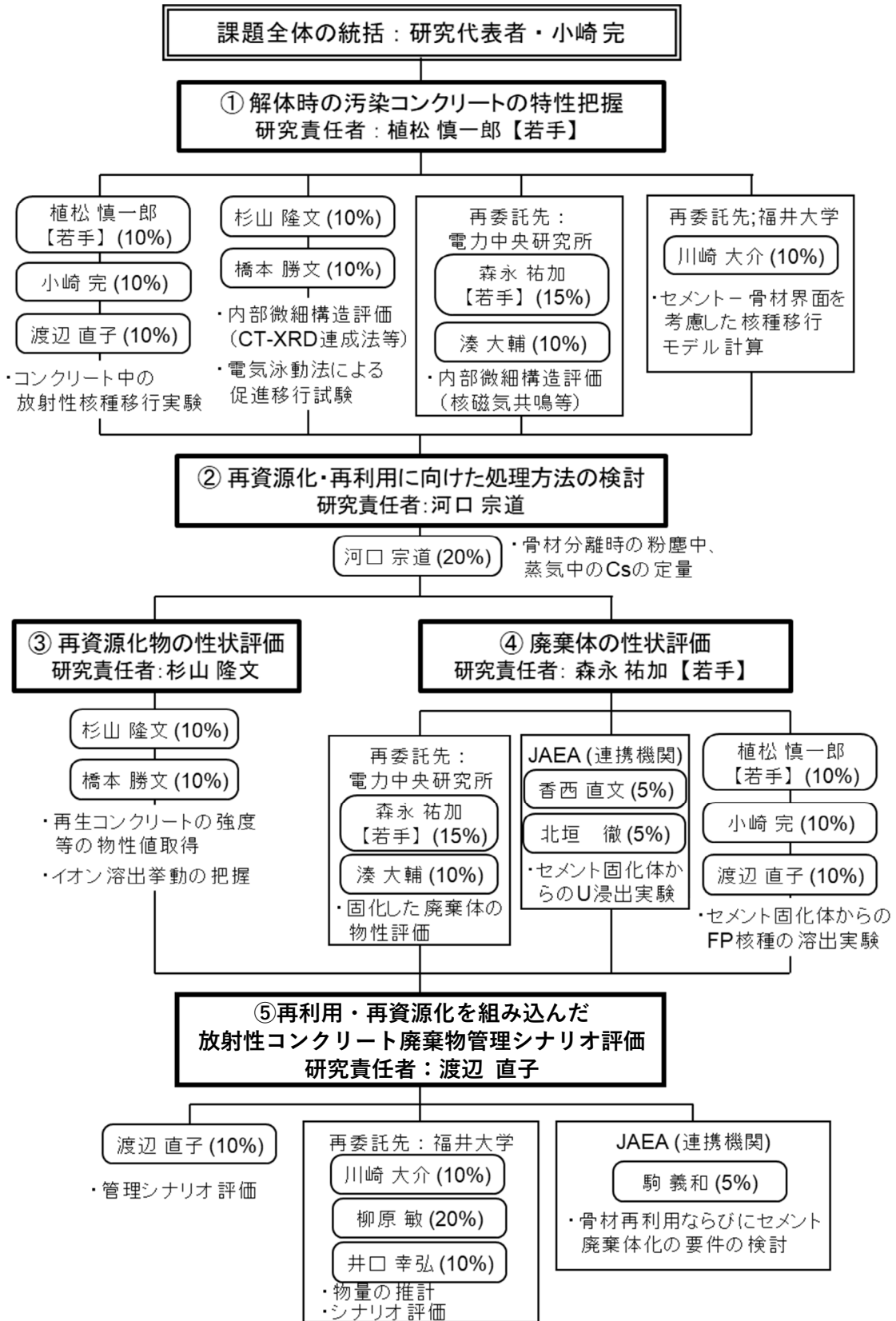


図 2. 1-2 実施体制図

### 2.3 令和5年度の成果の目標および業務の実施方法

#### (1) 解体時の汚染コンクリートの特性把握（北海道大学、再委託先：電力中央研究所、福井大学）

##### ① コンクリート中の放射性核種移行実験（北海道大学）

電力中央研究所から提供されたコンクリート供試体を用いて模擬汚染コンクリート試料および 1F における溶脱変質を模擬したコンクリート試料を調製する。トレーサーは  $^{137}\text{Cs}$  または  $^{125}\text{I}$  とする。試料へのトレーサー移行試験を実施し、拡散係数を決定する。試料中の核種の濃度分布を取得することにより、セメント-骨材間の核種の分配特性を明らかにする。コンクリート試料への核種の収着試験に着手する。

##### ② 遷移帯における移行挙動の解明ならびに電気泳動法による移行促進試験（北海道大学）

セメントペースト-骨材界面（遷移帯）を有する微小試験片を作製して浸漬試験を行うことで、遷移帯におけるイオン移動および Ca 溶脱挙動を調べる。特に、外部溶液を純水あるいは人工海水とすることで、海水成分が遷移帯における移行挙動に及ぼす影響を調べる。薄片供試体を用いた電気泳動試験を実施し、高電圧および高電流を付与する試験方法の妥当性を調べる。海水成分の浸透を受けたモルタル、コンクリート試料を対象に浸漬試験における溶出挙動と比較することで、環境影響評価を目的とした促進手法の適用性を調べる。

##### ③ 内部微細構造評価（再委託先：電力中央研究所）

遷移帯の形成メカニズムの検討を行うためのコンクリート試料の基礎的物性として、(4) ①で作製するコンクリート供試体を用いてインデンテーション法による微小領域のヤング率、一軸圧縮試験による弾性係数、水銀圧入法による空隙構造を取得する。

##### ④ 核種移行モデル計算（再委託先：福井大学）

ランダムウォーク粒子追跡法による核種濃度計算手法の改良の一部として、遷移帯を骨材/セメント界面の一部としてモデル化する手法について検討し、その実装方法を整理する。

#### (2) 再資源化・再利用に向けた処理方法の検討

##### ① 汚染コンクリートからの骨材分離法の検討（北海道大学）

電力中央研究所から提供されたコンクリート供試体を用いて、非放射性の Cs 溶液に浸漬することで、模擬汚染コンクリートを準備する。化学分析により模擬汚染コンクリートに含まれる Cs 成分の量を評価する。また、骨材分離試験および熱分析試験の環境整備を行う。

#### (3) 再資源化物の性状評価

##### ① 再生コンクリートの作製（北海道大学）

建設後 40 年以上経過したコンクリート廃材を破碎して作製した再生骨材に対し、非放射性の Cs 溶液あるいは Sr 溶液に浸漬することで、模擬汚染再生骨材を作製する。また、模擬汚染再生骨材を用いた再生コンクリート供試体を作製する。

##### ② 再生コンクリートからの核種移行評価（北海道大学）

①で作製した模擬汚染再生骨材を用いた再生コンクリート供試体に対し浸漬試験を行うことで、Cs および Sr の外部環境への移行挙動を調べる。このとき、ひび割れが生じた場合の再生コンクリート供試体に対して、ひび割れが核種移行特性に及ぼす影響を調べる。

## (4) 廃棄体の性状評価

## ① 模擬廃棄体（セメント微粉）調製・特性評価（再委託先：電力中央研究所）

コンクリート供試体を作製し、北海道大学に送付する。また、作製したコンクリート供試体を用いて骨材分離時に生じるセメント微粉模擬試料を調製する。あわせて X 線回析および核磁気共鳴分光法等を用いて、セメント微粉模擬試料の微細構造を把握する。また、セメント微粉模擬試料を用いて、セメント種や配合を変化させたセメント系材料と固化することで模擬廃棄体を作製する。X 線回折や核磁気共鳴法等を用いて廃棄体の強度、水和率、C-S-H 微細構造および元素マッピングを取得し、配合および材料種と力学あるいは化学特性を関連づける。

## ② セメント固化体からの U 浸出実験（連携先：JAEA）

強アルカリ性溶離液を用いたクロマトグラフィーによるウラン分析の有効性を検討する。また、単純な化学形態のウラン化合物を調製し、基礎データとしてクロマトグラムを取得する。

## ③ セメント固化体からの FP 核種の浸出実験（北海道大学）

電力中央研究所から提供されたコンクリート供試体の骨材分離により得た、セメントペースト粒子・粉末試料に微量の放射性トレーサーを添加し、混練直後のフレッシュなセメントを用いて固化することで模擬セメント固化体試料を作製する。放射性核種には、 $^{137}\text{Cs}$  または  $^{125}\text{I}$  を用いる。また、核種の浸出試験に着手する。浸出試験は、作製したセメント固化体試料を所定の組成の溶液に浸漬することで行い、溶液への核種の溶出挙動を調べる他、浸漬後の試料中の核種濃度分布を求めることで、核種の再分配挙動を明らかにする。

## (5) 再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価

## ① 廃棄物管理シナリオの構築・評価（北海道大学）

1F および事故炉におけるコンクリート汚染状況に関する知見を収集、整理する。それらの情報に基づく汚染状況および解体コンクリート廃棄物管理の観点から、1F コンクリートを建屋ごと、格納容器内、地下部、地上部、放射化を考慮する必要がある領域などに分割する。また、放射化については事故による汚染核種とインベントリを比較・評価し、考慮する必要のある核種を抽出する。

## ② 再利用・再資源化量、廃棄物量の推計手法の構築（再委託先：福井大学）

単一の汚染コンクリートにおける 3 次元核種濃度分布に基づき、想定される処理（表面研り、骨材／セメント分離）を施した際に発生する放射性廃棄物や再利用対象物の物量や核種濃度を算出するモデルを構築する。

## ③ 骨材クリアランスならびにセメント廃棄体化の要件の検討（連携先：JAEA）

骨材の再利用を念頭に置き、コンクリート中の放射性核種のインベントリおよびその不確かさについて既往の報告例を整理する。従来のクリアランスの基準を参照し、1F での実施を念頭に置いた運用条件を検討する。

## (6) 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。特に、汚染を模擬したコンクリートの作製においては、実際の瓦礫や解体により生じているコンクリートの汚染条件の設定に応じた検討を進める。

### 3. 実施内容および成果

#### 3.1 解体時の汚染コンクリートの特性把握

##### 3.1.1 コンクリート中の放射性核種移行実験

###### (1) 概要

令和5年度は、 $^{137}\text{Cs}$ の拡散に及ぼす骨材の影響を明らかにするため、電力中央研究所から提供されたコンクリート供試体に $^{137}\text{Cs}$ を塗布した模擬汚染コンクリート試料を調製し、そこでの $^{137}\text{Cs}$ の移行挙動を調べた。また、硬化セメントペースト（以下、「HCP」と略す。）試料およびHCPに細骨材としてケイ砂を加えたモルタル試料を調製するとともに、モルタル試料に対して硝酸アンモニウム溶液による溶脱処理および $^{137}\text{Cs}$ の塗布を行うことで模擬溶脱モルタル試料を得ることで、これらの試料中の $^{137}\text{Cs}$ の移行挙動を調べた。一方、モルタル試料への核種収着実験に着手した。

###### (2) 試料および方法

###### ① 模擬汚染コンクリート試料および模擬溶脱モルタル試料の調製

模擬汚染コンクリート試料は、3.4.1項(2)にて述べる手順で電力中央研究所において調製されたコンクリート供試体から薄片（18 mm×30 mm×5 mm）を切り出し、その1面（18 mm×5 mm）に $^{137}\text{CsCl}$ 溶液 10  $\mu\text{L}$ を含むろ紙を密着させることで調製した。

HCP試料は、普通ポルトランドセメント（一般社団法人セメント協会製、研究用セメント）とイオン交換水とを水セメント比（以下、「 $w/c$ 」と略す。）が0.55となるように秤量・混練し、直径27 mm、高さ53 mmの円柱状に成型し、セメント平衡水に浸漬させて、50  $^{\circ}\text{C}$ で28日間水中養生した。次に、模擬汚染コンクリート試料の調製と同様に、この試料から薄片を切り出し、 $^{137}\text{CsCl}$ 溶液を含むろ紙を密着させることで調製した。

モルタル試料は、普通ポルトランドセメントおよびイオン交換水に対して、細骨材としてケイ砂（小宗化学薬品株式会社製）をセメント：細骨材：水の質量比が1：2：0.55（ $w/c$ ：0.55）となるように加え、混練し、HCP試料と同じ条件で養生した。次に、模擬汚染コンクリート試料の調製と同様に、この試料から薄片を切り出し、 $^{137}\text{CsCl}$ 溶液を含むろ紙を密着させることで調製した。

模擬溶脱モルタル試料は、真空乾燥したモルタル試料から切り出した薄片（18 mm×30 mm×5 mm）を濃度6 mol $\cdot\text{L}^{-1}$ の $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 溶液に7日間浸漬し、次に、過剰の $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 溶液を除去するためにセメント平衡水に浸漬した後、模擬汚染コンクリート試料の調製と同様に、その1面（18 mm×5 mm）に $^{137}\text{CsCl}$ 溶液 10  $\mu\text{L}$ を含むろ紙を密着させることで調製した。

なお、以上の実験に用いた放射性 $^{137}\text{Cs}$ トレーサーは、公益社団法人日本アイソトープ協会から購入した $^{137}\text{CsCl}$ （Eckert & Ziegler製、製品コード6137）を所定量のイオン交換水を用いて希釈したものである。HCP試料に対しては、10 kBq（ $^{137}\text{Cs}$ 濃度1 MBq $\cdot\text{mL}^{-1}$ ）、模擬汚染コンクリート試料とモルタル試料および模擬溶脱モルタル試料に対しては、60 kBq（ $^{137}\text{Cs}$ 濃度6 MBq $\cdot\text{mL}^{-1}$ ）とした。

収着試験用の粉末試料には、真空乾燥後のHCP試料およびモルタル試料を粉碎し、目開き250  $\mu\text{m}$ のふるいを通過したものをを用いた。

###### ② $^{137}\text{Cs}$ の移行実験

模擬汚染コンクリート試料および模擬溶脱モルタル試料に対して、試料調製から所定時間経過後の試料中の $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度分布を求めることで、そこでの $^{137}\text{Cs}$ の拡散係数を決定した。両試料は、試料調製後直ちにパラフィルムで包み、所定の拡散温度条件下で静置した。次に、試料をラップ1枚を介してイメージングプレート（IP:BAS IP MS 2025E、

富士フイルム株式会社製）上に固定し、試料からの放射線量を測定した。所定時間経過後、試料を取り除いた IP をイメージングプレート読み取り装置（FLA-7000、GE Healthcare 製）にかけ、 $^{137}\text{Cs}$  の 2 次元分布情報を取得した。なお、比較検討のために、同様の実験を溶脱処理を行っていない HCP 試料およびモルタル試料に対しても実施した。

表 3.1-1 に試料の調製条件および拡散温度条件を示す。

表 3.1-1 $^{137}\text{Cs}$ の移行実験に供した試料の調製条件および拡散温度条件		
試料種類	溶脱処理の有無	拡散温度 (K)
模擬汚染コンクリート	未溶脱	298
HCP	未溶脱	288, 298, 313, 323
モルタル	未溶脱	288, 298, 313, 323
模擬溶脱モルタル	溶脱 (6 mol・L <sup>-1</sup> NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> 溶液浸漬)	298

### ③ $^{137}\text{Cs}$ の収着実験

HCP 試料およびモルタル試料への  $^{137}\text{Cs}$  の収着実験に着手した。収着実験はバッチ式により行った。固相には、①に述べた方法で調製した HCP およびモルタルの粉末状試料を用い、液相には  $^{137}\text{CsCl}$  トレーサーを添加したセメント平衡水を用いた。液相の初期の  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度は 100 kBq・L<sup>-1</sup> とした。収着実験は、固液比 1:100、収着温度 298 K とした。収着期間中は、試料をハンドシェイクにより 1 日当たり数回振とうした。

## (3) 結果と考察

### ① $^{137}\text{Cs}$ の移行挙動

HCP 試料（未溶脱）中の  $^{137}\text{Cs}$  の移行実験において、試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の 2 次元放射能濃度分布を示す IP 画像を得た。その一例を図 3.1-1 に示す。図中の黒枠は、IP 上に置いた試料の位置を示し、黒枠の左辺は、 $^{137}\text{Cs}$  トレーサーを含むろ紙と接触した面の位置を示す。また、画像中の黒の濃淡（輝度）は、計測された放射線量の相対値をそれぞれ示す。画像の濃淡は、左辺で濃く、図の右側に向けて薄くなっていることから、試料表面を汚染した  $^{137}\text{Cs}$  が試料内部に移行していることがわかる。また、汚染位置（図中の高さ方向の違い）にかかわらず、ろ紙との接触面から同じ距離の位置の  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度は、ほぼ一定であることがわかる。そこで、ろ紙接触面からの距離ごとに輝度を平均し、その距離での  $^{137}\text{Cs}$  の相対濃度と仮定し、1 次元の放射能濃度プロファイルを得た。

薄膜拡散源からの拡散、すなわち極めて微量のトレーサーが 1 次元の無限媒体中を拡散する場合、媒体中のトレーサー濃度分布は以下の式に従う。

$$C(x, t) = \frac{M}{2\sqrt{\pi D_a t}} \exp\left(\frac{-x^2}{4D_a t}\right) \quad \cdots \text{式(3.1-1)}$$

ここで、 $C(x, t)$  は拡散時間  $t$  (s) における拡散源からの位置  $x$  (m) での  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度 (Bq・m<sup>-3</sup>)、 $M$  は試料中に移行した  $^{137}\text{Cs}$  の総量 (Bq・m<sup>-2</sup>)、 $D_a$  は  $^{137}\text{Cs}$  の見かけの拡散係数 (m<sup>2</sup>・s<sup>-1</sup>) (以下、「 $D_a$ 」と略す。) である。

本実験では、トレーサーとして用いた  $^{137}\text{Cs}$  が極微量であり、試料が無限長であると仮定できるように拡散時間を調整したことから、得られた  $^{137}\text{Cs}$  の濃度分布は、式(3.1-1)に従う可能性が高い。図 3.1-2 に、IP 画像から得た放射能濃度の自然対数値を拡散距離



の自乗に対してプロットした図を示す。図から明らかなように、プロットはよい直線性を示し、 $^{137}\text{Cs}$  は薄膜拡散源から無限媒体と見なされる HCP 試料中を拡散したことが確認された。濃度プロファイルに対して、式(3.1-1)を最適化して得られた直線(図 3.1-2 中、緑線)の傾きから  $^{137}\text{Cs}$  の  $D_a$  を求めた。拡散温度 298 K にて得られた  $D_a$  は  $5\sim 6\times 10^{-11} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  となった。各拡散温度にて得られた  $D_a$  を表 3.1-2 に示す。

モルタル試料(未溶脱)中の  $^{137}\text{Cs}$  の移行実験において得られた IP 画像の一例を図 3.1-3 に示す。また、この IP 画像から求めた 1 次元の放射能濃度プロファイルを図 3.1-4 に示す。HCP(未溶脱)試料の放射能濃度プロファイルとは異なり、拡散距離の自乗に対する放射能濃度の自然対数値のプロットは直線性を示さず、拡散源から拡散距離 3 mm(距離の自乗:  $0.9\times 10^{-5} \text{ m}^2$ ) 付近までの領域では急な勾配が認められ、拡散距離が 3 mm 以上の領域では緩やかな勾配が認められた。このことは、モルタル試料(未溶脱)中の  $^{137}\text{Cs}$  は、単一の拡散プロセスではなく、拡散距離 3 mm 付近を境に支配的な拡散プロセスが異なっている可能性を示唆している。そこで、モルタル試料(未溶脱)中の  $^{137}\text{Cs}$  は、薄膜拡散源から二つの異なるプロセスで拡散していると仮定した次式を用いて、濃度プロファイルの再現を試みた。

$$C(x,t) = \frac{M_1}{2\sqrt{\pi D_{a1}t}} \exp\left(\frac{-x^2}{4D_{a1}t}\right) + \frac{M_2}{2\sqrt{\pi D_{a2}t}} \exp\left(\frac{-x^2}{4D_{a2}t}\right) \quad \cdots \text{式(3.1-2)}$$

ここで、 $M_1$  および  $M_2$  は、それぞれ拡散プロセス 1 および拡散プロセス 2 により拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ )、 $D_{a1}$  および  $D_{a2}$  は、それぞれ拡散プロセス 1 および拡散プロセス 2 の  $^{137}\text{Cs}$  の  $D_a$  ( $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ) を示す。

図 3.1-4 中に、式(3.1-2)を用いた最適化の結果を示す。実験で得られた濃度プロファイルは、拡散距離が 3 mm 以下の領域と拡散距離が 3 mm 以上の領域で、それぞれ支配的となる二つの拡散(図中の青色および赤色の線)の和(図中の緑色の線)で再現できた。各拡散温度にて得られた濃度プロファイルに対して、式(3.1-2)を最適化することで得られた、それぞれの領域における見かけの拡散係数( $D_{a1}$  および  $D_{a2}$ )ならびに拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量( $M_1$  および  $M_2$ )を表 3.1-2 に示す。なお、ここでは、拡散距離が 3 mm 以下の領域では拡散プロセス 1 が支配的であり、拡散距離が 3 mm 以上の領域では拡散プロセス 2 が支配的であるとした。拡散温度 298 K において得られた  $D_{a1}$  は  $5\sim 7\times 10^{-11} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  であり、前述の HCP 試料中の値 ( $5\sim 6\times 10^{-11} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ) とほぼ一致した。一方、 $D_{a2}$  は  $30\sim 40\times 10^{-11} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  となり、 $D_{a1}$  より 1 桁近く大きな値となった。また、拡散プロセス 1 により拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量  $M_1$  ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ ) の寄与度( $M_1/(M_1+M_2)$ )は、0.7~0.9 程度と大部分を占めた。

模擬溶脱モルタル試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の移行実験において得られた IP 画像の一例を図 3.1-5 に示す。モルタル試料(未溶脱)と同様に、拡散距離の自乗に対する放射能濃度の自然対数値のプロットは直線性を示さず、拡散距離の自乗に対して、放射能濃度の自然対数値が急に減少する領域と緩やかに減少する領域が認められたことから、式(3.1-2)を用いた最適化を行った。最適化の結果を図 3.1-6 に示す。また、最適化することで得られた見かけの拡散係数( $D_{a1}$  および  $D_{a2}$ )ならびに拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量( $M_1$  および  $M_2$ )を表 3.1-2 に示す。拡散温度 298 K において得られた  $D_{a1}$  および  $D_{a2}$  はそれぞれ、 $0.4\times 10^{-11} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  および  $7.0\times 10^{-11} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  となり、モルタル試料(未溶脱)中の  $^{137}\text{Cs}$  の拡散係数より大幅に低い値となった。また、拡散プロセス 1 により拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量  $M_1$  ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ ) の寄与度( $M_1/(M_1+M_2)$ )は、0.8 程度となりモルタル(未溶脱)試料とほぼ一致した。

模擬汚染コンクリート試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の移行実験において得られた IP 画像の一例を図 3.1-7 に示す。画像中の輝度は、左辺で濃く、図の右側に向けて薄くなっていることから、表面を汚染した  $^{137}\text{Cs}$  がコンクリート内部に移行していることがわかる。一方、HCP 試料およびモルタル試料とは異なり、画像の随所に  $^{137}\text{Cs}$  の濃集に起因する輝度の高い領域が認められた。この原因の一つとして、モルタル試料ではケイ砂を細骨材として用いたのに対して、模擬汚染コンクリート試料では山砂を用いたことから、Cs に対して高い収着能を有する粘土鉱物が混入した可能性が考えられる。しかし、ここでは、 $^{137}\text{Cs}$  の濃集部分を含めて、拡散距離ごとの  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度を汚染位置で（図中の高さ方向で）平均化して、1 次元の放射能濃度プロファイルを求めた。得られた濃度プロファイルを図 3.1-8 に示す。得られた濃度プロファイルは、モルタル試料（未溶脱）および模擬溶脱モルタル試料と同様に、拡散距離の自乗に対する放射能濃度の自然対数値のプロットは直線性を示さず、二つの領域が認められた。そこで、式(3.1-2)を用いた最適化を行い、見かけの拡散係数( $D_{a1}$ および $D_{a2}$ )ならびに拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量( $M_1$ および $M_2$ )をそれぞれ決定した。得られた結果を表 3.1-2 に示す。

拡散温度 298 K における  $D_{a1}$  および  $D_{a2}$  はそれぞれ、 $0.7 \sim 2 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  および  $1 \sim 3 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  となり、模擬溶脱モルタル試料よりさらに低い値となった。これは、 $^{137}\text{Cs}$  が局所的に強く収着・濃集したことによる移行遅延の影響が、 $D_a$  の中に平均化して組み込まれた結果と解釈することもできる。また、拡散プロセス 1 により拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量  $M_1(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2})$  の寄与度( $M_1/(M_1+M_2)$ )は、0.4 程度となり、モルタル（未溶脱）試料や模擬溶脱モルタル試料よりも小さい値となった。一方、IP 画像の汚染面には、拡散せずに汚染面に残留した  $^{137}\text{Cs}$  に起因すると思われる高い輝度が認められることから、薄膜拡散源からの拡散と仮定した式(3.1-2)が適用できない可能性がある。これらの問題点は今後詳細に検討を進める必要がある。

図 3.1-9 に、それぞれの試料において得られた  $D_a$ 、 $D_{a1}$  および  $D_{a2}$  の拡散温度依存性を示す。HCP 試料（未溶脱）の  $D_a$  は、拡散温度の逆数に対して、比較的よい直線性を示しており、アレニウスの式を用いて求めた Cs の拡散の活性化エネルギー（以下、「 $E_a$ 」と略す。）は、 $25.5 \pm 4.2 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$  となった。この値は、自由水中の  $\text{Cs}^+$  イオンの拡散の  $E_a$  ( $16.4 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$  [5]) より高いことから、 $^{137}\text{Cs}$  の支配的な拡散プロセスは毛細管空隙等の比較的大きな空隙中の自由水の拡散とは異なることが示唆された。

モルタル試料（未溶脱）の  $D_{a1}$  および模擬溶脱モルタル試料の  $D_{a2}$  は、HCP 試料の  $D_a$  値とほぼ一致した。特に、モルタル試料（未溶脱）の  $D_{a1}$  はその温度依存性も類似しており、同等の拡散の  $E_a$ 、すなわち両者の支配的な拡散プロセスが同じである可能性を示唆している。これは、モルタル試料中のセメントペースト部分を拡散するプロセスに対応していると考えられる。一方、モルタル試料（未溶脱）の  $D_{a2}$  は、 $D_{a1}$  および HCP 試料の  $D_a$  値より大幅に高い値であった。一般に、モルタル試料は、骨材とセメントペーストの界面に、遷移帯と呼ばれるセメントペースト部分よりも空隙径の大きい、比較的粗大な空隙を有するとされている[6]。また、既往の研究では、コンクリート中の遷移帯部分の  $\text{Ca}^{2+}$  イオンの実効拡散係数（以下、「 $D_e$ 」と略す。）は、（未溶脱）セメントペースト部分の  $D_e$  に比べて約 8 倍高いとの報告がある[7]。このことから、モルタル試料（未溶脱）の高い値の  $D_{a2}$  は、モルタル試料中の細骨材表面に存在する遷移帯部分を介した拡散の可能性はある。しかし、拡散プロセス 2 により拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量  $M_2(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2})$  の寄与度( $M_2/(M_1+M_2)$ )は低かったことから、Cs の大部分はセメント部分を移行し、骨材表面の遷移帯への分配は低い可能性が示唆された。

HCP 試料（未溶脱）の  $D_a$  と比べて低い値となった模擬溶脱モルタル試料および模擬汚染コンクリート試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の  $D_{a1}$  は、模擬溶脱モルタル試料では溶脱処理に伴って生じた 2 次鉱物等による Cs の収着による遅延、模擬汚染コンクリート試料では前述した、粘土鉱物等の混入による収着・移行遅延に起因した可能性があるものの、試料の表面数 mm 程度の領域の現象であることから実験上の誤差も大きく、その有無を含めて慎重に検討する必要がある。なお、その際、式(3.1-2)を最適化させた際のパラメータである、拡散した  $^{137}\text{Cs}$  の総量( $M_1$ および $M_2$ )から算出する拡散プロセス 1 の寄与度 ( $M_1/(M_1+M_2)$ ) にも留意することが必要と思われる。

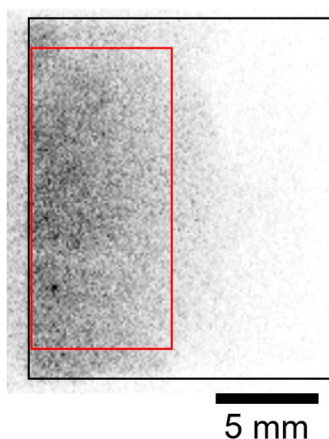


図 3.1-1 HCP 試料中の 2 次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能分布

(拡散温度 298 K、拡散時間 43 h)

黒枠は試料を置いた位置、赤枠は放射能濃度プロファイルの算出に用いた領域を示す。

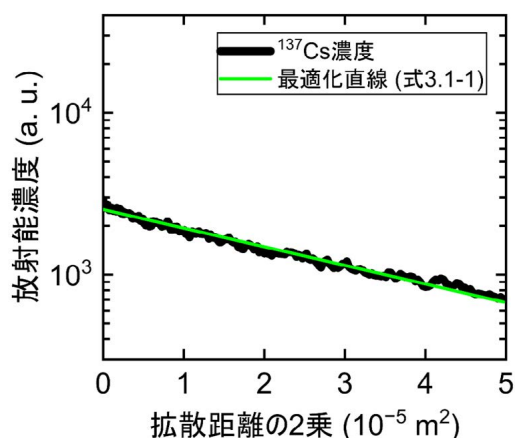


図 3.1-2 HCP 試料中の 1 次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度プロファイル

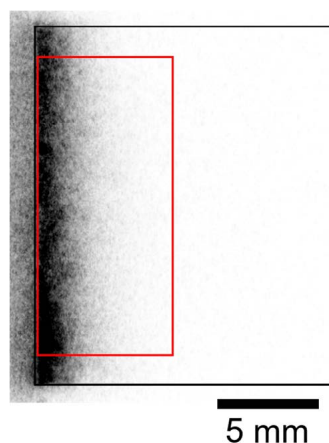


図 3.1-3 モルタル試料（未溶脱）中の 2 次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能分布

(拡散温度 298 K、拡散時間 4.8 h)

黒枠は試料を置いた位置、赤枠は放射能濃度プロファイルの算出に用いた領域を示す。

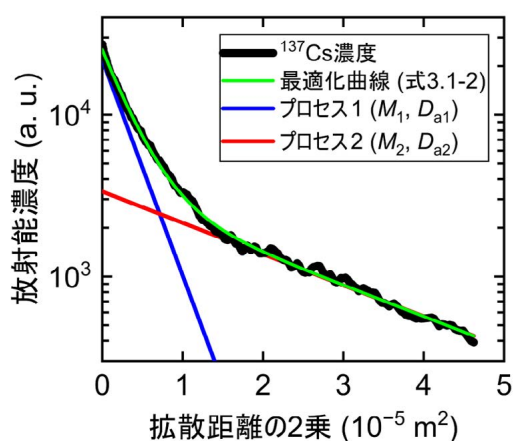


図 3.1-4 モルタル試料（未溶脱）中の 1 次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度プロファイル



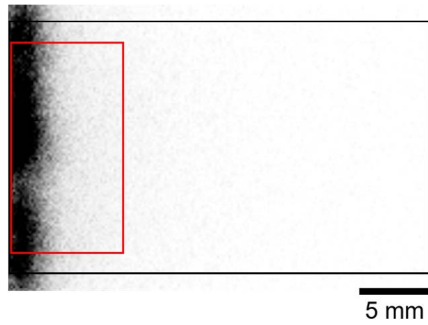


図 3.1-5 模擬溶脱モルタル試料中の  
2次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能分布  
(拡散温度 298 K、拡散時間 32 h)

黒枠は試料を置いた位置、赤枠は放射能  
濃度プロファイルの算出に用いた領域を  
示す。

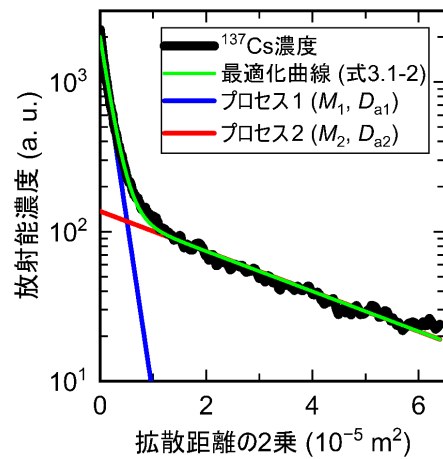


図 3.1-6 模擬溶脱モルタル試料中の  
1次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度プロファイル

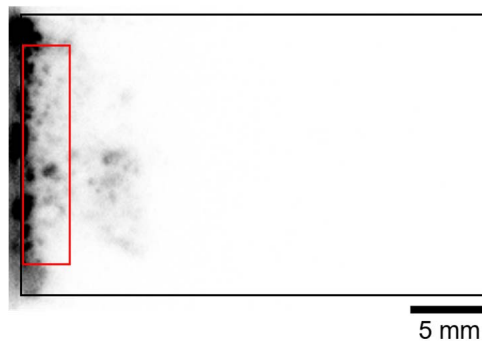


図 3.1-7 模擬汚染コンクリート試料中  
の 2次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能分布  
(拡散温度 298 K、拡散時間 32 h)

黒枠は試料を置いた位置、赤枠は放射能  
濃度プロファイルの算出に用いた領域を  
示す。

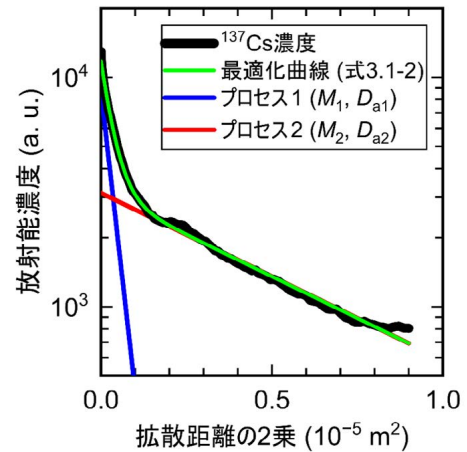
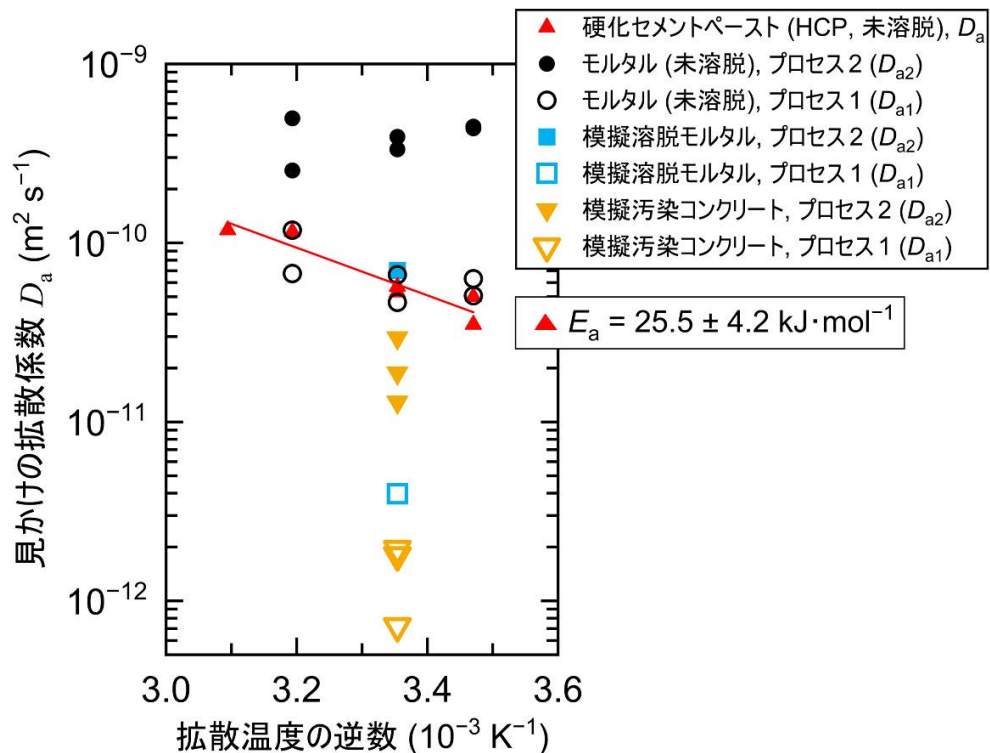


図 3.1-8 模擬汚染コンクリート試料中の  
1次元  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度プロファイル

表 3.1-2 HCP ならびにモルタル試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の見かけの拡散係数  
( $D_a$ 、 $D_{a1}$ 、 $D_{a2}$ ) および移行した  $^{137}\text{Cs}$  の総量 ( $M_1$ 、 $M_2$ )

試料		拡散温度 (K)			
		288	298	313	323
HCP (未溶脱)	$D_a$	3. 5	5. 3	12	12
		5. 0	5. 7		
モルタル (未溶脱)	$D_{a1}$	5. 1	4. 6	6. 7	
		6. 3	6. 6	12	
	$D_{a2}$	44	33	25	
		45	39	50	
	$M_I$	65	83	47	
		60	68	38	
	$M_2$	72	12	46	
		103	27	66	
	$M_I/(M_I+M_2)$	0. 47	0. 87	0. 50	
		0. 43	0. 71	0. 37	
模擬溶脱モルタル	$D_{a1}$		0. 40		
	$D_{a2}$		7. 0		
	$M_I$		4. 5		
	$M_2$		1. 4		
	$M_I/(M_I+M_2)$		0. 76		
模擬汚染コンクリート (未溶脱)	$D_{a1}$		0. 072		
			0. 19		
			0. 18		
	$D_{a2}$		1. 3		
			1. 9		
			3. 0		
	$M_I$		8. 8		
			8. 0		
			18. 2		
	$M_2$		14		
			13		
			32		
	$M_I/(M_I+M_2)$		0. 39		
			0. 38		
			0. 36		

※  $D_a$ 、 $D_{a1}$  および  $D_{a2}$  の単位は、( $10^{-11} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )。



(赤色実線は HCP の  $D_a$  の最適化直線、 $E_a$  はアレニウスの式から決定した拡散の活性化エネルギーを示す。)

図 3.1-9 HCP ならびにモルタル試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の  $D_a$  の温度依存性

### 3.1.2 遷移帯における移行挙動の解明ならびに電気泳動法による移行促進試験

#### (1) 概要

遷移帯を有する微小試験片を作製して浸漬試験を行い、遷移帯におけるイオン移動および Ca 溶脱挙動を調べた。また、外部溶液を人工海水とすることで、海水成分が上記の移行挙動に及ぼす影響を調べた。薄片供試体を用いた電気泳動試験を実施した。海水成分の浸透を受けたモルタル、コンクリート試料を対象に、浸漬試験における溶出挙動と比較した。特に、海水への曝露期間に伴う移動度の評価に対して促進手法の適用性を調べた。

#### (2) 方法

w/c を 0.5 および 0.6 としたセメントペーストを作製した。また、最大骨材寸法を 1 mm あるいは 5 mm とするモルタルおよび 20 mm とするコンクリートを作製した。イオン移動を伴う溶脱挙動を把握する際に、炭酸イオン等の海水成分の影響を考慮するために、浸漬試験ならびに電気泳動試験において人工海水を外部溶液として使用した。模擬海水中のイオン濃度[8]を表 3.1-3 に示す。

表 3.1-3 人工海水中のイオン濃度

Ion Type	Calculated concentration (g・L <sup>-1</sup> )	Chemicals Type	Mass (g・L <sup>-1</sup> )
Cl <sup>-</sup>	19.7	NaCl	27.9
Na <sup>+</sup>	10.98	CaCl <sub>2</sub>	0.795
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.755	MgSO <sub>4</sub>	3.44
Mg <sup>2+</sup>	1.314	KOH	0.593
K <sup>+</sup>	0.405	MgCl <sub>2</sub>	1.20
Ca <sup>2+</sup>	0.421	HCl	0.248

浸漬試験においては、高さ 6 mm、直径 3 mm の微小円柱試験片を使用した (w/c : 0.6)。骨材の有無によりセメントペーストとの境界層 (ITZ) の存在がイオン移動および溶脱挙動に及ぼす影響を把握するために平均粒径 1 mm の石灰石を骨材として上述のセメントペースト円柱試験片の内部に埋設した。以下においては、骨材を含む試験片は AN グループとして、骨材を含まない試験片は PN グループとして記述する。なお、28 日間の養生期間終了後に模擬人工海水中に 2、5、10、15、30、60、128 日間浸漬した後、誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (以下、「ICP-AES」と略す。) により外部溶液中のイオン濃度を測定した。

電気泳動試験[9]においては、縦 40 mm、横 40 mm、長さ 160 mm のモルタルおよびコンクリート供試体を作製した (w/c : 0.5)。このとき、骨材の最大寸法は 5 mm および 20 mm とした。28 日間の養生期間終了後に上記の供試体を縦 40 mm、横 40 mm、厚さ 5 mm に切り出し、陽極側の外部溶液を 0.3 mol・L<sup>-1</sup> の NaOH 溶液、陰極側の外部溶液を 0.5 mol・L<sup>-1</sup> の NaCl 溶液として通電を行った。なお、印加電圧を 30 V の定電位による評価加速試験とした。

### (3) 結果

浸漬試験の結果について、図 3.1-10 および図 3.1-11 に Ca および Mg の浸漬期間中の溶出量を示す。これより、セメントペースト中に骨材が含まれる場合 (AN) と骨材が含まれない場合 (PN) と比較すると、Ca および Mg の外部溶液への溶出挙動 (外部溶液 (人工海水) 中のイオン濃度の増減) が異なることがわかる。骨材を含む場合、浸漬期間の進行とともに、Ca の溶出量は概ね単調増加を示して浸漬期間とともに緩やかに増加していく。一方で、骨材を含まない場合、Ca の溶出量は浸漬試験開始直後には顕著に増加するものの、その後に浸漬期間が 30 日から 60 日経過する時点で減少に転じている。このとき、Mg の浸漬期間中の溶出量は、上記の時点で増加していることがわかる (図 3.1-11)。なお、浸漬期間が 60 日を超えると Mg の溶出量は減少に転じていることから、浸漬期間が 30 日から 60 日経過する間で Ca および Mg の遷移帯における移行挙動が相互作用しているものと推察できる。

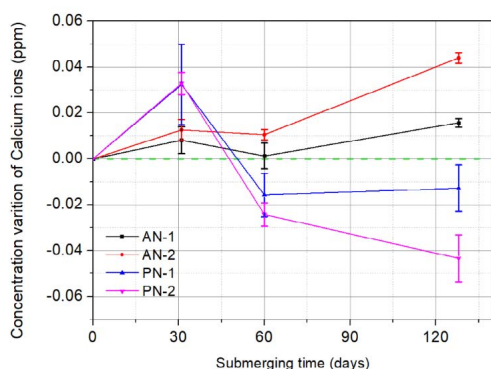


図 3.1-10 Ca の溶出挙動（浸漬試験）

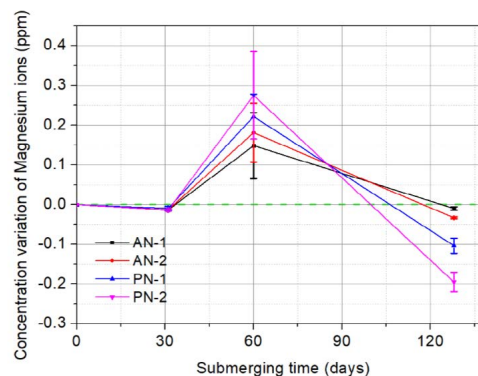


図 3.1-11 Mg の溶出挙動（浸漬試験）

骨材を含む場合、セメントペーストと骨材の界面には空隙構造を粗とする境界層が形成され、イオン移動を伴う物質移行性を示す拡散係数が大きくなる[10]。そのため、骨材を含む場合には、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$  の溶脱フロントが内部に埋設された骨材表層に到達することで、Ca の溶出量が浸漬期間の経過とともに増加していくと考えられる。しかしながら、上述の結果は、Ca 溶脱フロントのセメント硬化体内部への進行に加えて、Ca と Mg の移行が相互に作用することでイオン移動を伴う変質に影響を与えていると考えられる。SPRING-8 において CT-XRD 連成法を用いた内部構造の同定を行った結果を図 3.1-12 に示す。これより、円柱供試体の表層部において、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$  が析出していることが確認できる。一般に、Ca が溶脱した領域では、人工海水から供給された多量の  $\text{MgO}$  の存在が確認され、ハイドロタルサイトとブルーサイト（水酸化マグネシウム）が確認できることは報告されている。以上の結果からセメントペーストと骨材界面の境界層（ITZ）における移行挙動と海水成分の相互作用を伴う複雑なイオン移動および溶出挙動について詳細な検証を継続する必要がある。

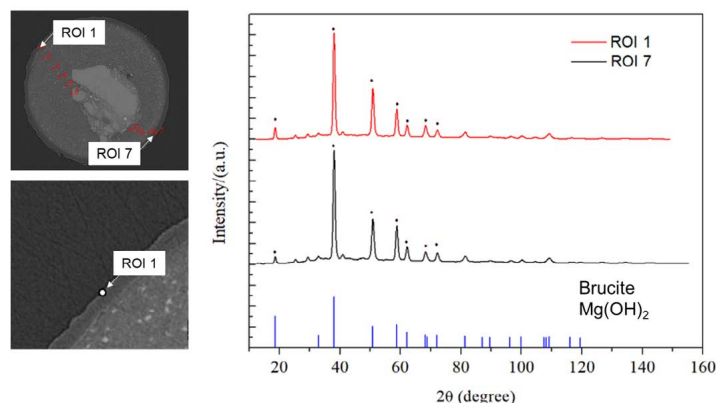


図 3.1-12 CT-XRD 連成法による内部構造評価

人工海水に 1 か月あるいは 3 か月の予備浸漬を行った後に、海水成分の浸透の影響を受けたモルタル、コンクリート試料を対象にした溶出挙動と比較することで、環境影響評価を目的とした電気泳動試験による結果を図 3.1-13 に示す。ここでは、内部に浸透した塩化物イオンの移動量を測定した結果を示している。これより、モルタルあるいはコンクリートのいずれの場合でも、海水成分の影響を受けた期間が短いほど塩化物イオンの移動量が高いことがわかる。この結果は、海水成分の浸透により上述の Ca および Mg 以外の主たる

海水中に含まれるイオンの移動度が小さくなる可能性を示している。また、モルタルとコンクリートを比較すると、いずれの人工海水への予備浸漬期間にかかわらず、モルタルの場合に塩化物イオンの移動度が高いことがわかる。これは、モルタルからコンクリートとすることで骨材寸法が大きくなり、モルタルあるいはコンクリート中の骨材の単位体積量が等しい場合でも、比表面積が大きくなることで、内部で形成される骨材とセメントペースト間の界面の表面積が大きくなることが影響していると考えられる。

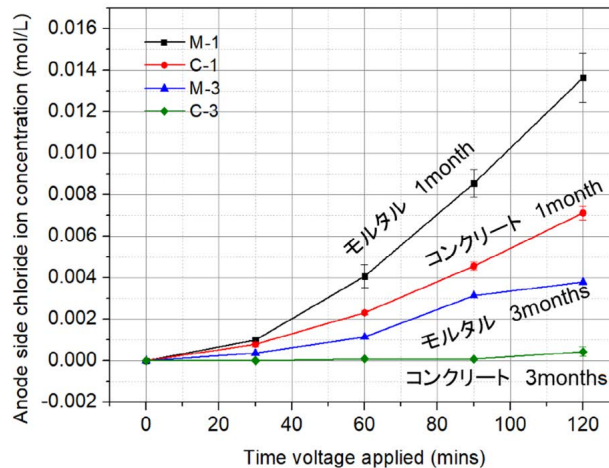


図 3.1-13 電気泳動試験による塩化物イオンの移動度

#### (4) まとめ

骨材を含む場合にセメントペーストとの境界層の Ca イオンの拡散係数が大きくなることから、骨材の有無により Ca イオンおよび Mg イオンの移行挙動に差異が生じることを確認した。また、電気泳動試験の結果から、海水成分の浸透により移動度が小さくなること、および骨材寸法が小さく（境界層の比表面積が大きく）なるほど、物質移行性が高くなることを確認した。

### 3.1.3 内部微細構造評価（再委託先：電力中央研究所）

#### (1) 概要

遷移帯の形成メカニズムの検討を行うためのコンクリート試料の基礎的物性として、(4)①で作製するコンクリート供試体を用いてインデンテーション法による微小領域のヤング率、一軸圧縮試験による弾性係数、水銀圧入法による空隙構造を取得した。微小領域のヤング率および一軸圧縮強度および水銀圧入法の結果より、作製した試料の諸物性は標準的なコンクリートの範囲であることを確認した。

#### (2) 方法

以下に試験法について示す。試験体は 3.4.1 にて作製したコンクリート試験体のうちで 40 mm×40 mm×160 mm 角柱型モルタル試験体をナノインデンテーション法および水銀圧入法に、φ100 mm×200 mm 円筒形コンクリート試験体を一軸圧縮強度、弾性係数、ポアソン比測定に用いた。



### ① ナノインデンテーション法による微小領域のヤング率測定

ナノインデンテーション法による硬度・ヤング率の測定は、国際規格 ISO14577 に準拠し、株式会社エリオニクス製の超微小押し込み硬さ試験機 ENT-1000a を用いて行った。20 mm×20 mm×80 mm 角柱型モルタル試験体を精密カッターで 1 mm 角に切断し、エポキシ樹脂に含浸[11]した後にダイヤモンドペーストを用いて鏡面研磨し測定に供した。開始荷重 10 mN、終了荷重 0 mN とし、骨材部分を 80 点、ペースト部分を 80 点に対して負荷除荷試験を実施した。得られた負荷除荷曲線からヤング率を算定した。圧子の先端補正には田中方式を用いた。

### ② 一軸圧縮強度、弾性係数、ポアソン比

一軸圧縮試験は JISA1108:2018/コンクリートの圧縮強度試験方法に準拠し、弾性係数は JIS A 1149/コンクリートの静弾性係数試験方法に準拠して実施した。圧縮試験機はアムスラー社製 MS-100-BS を用い、データロガーは株式会社東京測器研究所製 TDS-530、歪みゲージは株式会社東京測器研究所製 PL-60 を用いた。φ100 mm×200 mm 円筒形試験体は端面を研磨し平滑化し、測定時にはアンボンドキャッピングを用いた。試験材齢は 28 日であり、試行回数は 3 回とした。

### ③ 水銀圧入法による空隙構造測定

水銀圧入法による空隙構造測定は、日本コンクリート工学協会「コンクリートの試験・分析マニュアル」s5.3.7 微細構造／組織の分析、(3)空隙率、細孔径分布の測定方法、F-3 水銀圧入法に準拠して実施した。測定には、micromeritics 製水銀圧入式ポロシメーター AutoPore V9620 を用いた。20 mm×20 mm×80 mm 角柱型試験体を 2 mm 角程度に破碎し、アセトンに 24 時間浸漬した後に 1 週間 D-Dry 乾燥を行い測定に供した。

## (3) 実験結果

### ① ナノインデンテーション法による微小領域のヤング率測定

図 3.1-14 にナノインデンテーション法による微小領域のヤング率測定を示す。骨材のヤング率はセメントペースト部分よりも高く、骨材のヤング率の分布は二峰性であると示されたため、本件で使用した山砂においては異なる硬度を有する骨材が混在していることが考えられる。また、セメントペーストで得られたヤング率は 0～50 GPa に含まれており、先行研究[11][12]で報告されている値の範囲内であることを確認された。

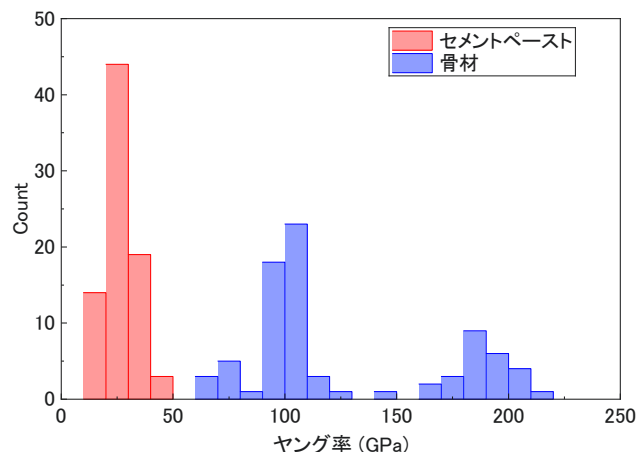


図 3.1-14 ナノインデンテーション法によるモルタルの微小領域のヤング率の分布

## ② 一軸圧縮強度、弾性係数、ポアソン比

表 3.1-4 に本研究で用いたコンクリート供試体の力学特性を示す。一軸圧縮強度、ヤング率、ポアソン比ともに材齢 28 日におけるコンクリートとしては標準的な値[13][14]を示しており、力学的な観点において試験体が適切に作製されたことを確認した。

表 3.1-4 コンクリート供試体の力学特性

一軸圧縮強度 (MPa)	ヤング率 (GPa)	ポアソン比
31.8	32.5	0.22

## ③ 水銀圧入法による空隙構造測定

コンクリート材料は、数 nm～数 mm までの範囲の細孔を有し、その量および比率は諸物性に影響を及ぼすと考えられている[15]。図 3.1-15 に、細孔の分類および測定方法と関連するコンクリートの物性を示す[16]。サイズが数 nm 以下の空隙はゲル空隙と呼ばれ収縮やクリープに、数 nm～10 μm までの空隙は毛細管空隙と呼ばれ収縮・透過性・強度に、それ以上の空隙は主に強度に影響を及ぼすと考えられている[13]。本研究で用いた水銀圧入法は 3 nm～300 μm までの測定が可能であり、他の測定手法と比較してもその測定範囲は広い。コンクリートに代表されるセメント系材料はセメントの水和に起因し、材齢の経過とともに細孔径が小さく、総細孔量も減少する傾向にある。コンクリート供試体の微細構造のうちで、図 3.1-16 に積算細孔容積を、図 3.1-17 に細孔径分布を示す。細孔径分布は材齢が経過したコンクリート[14]に比べるとやや粗大であるが、これは材齢の経過とともに緻密になると考えられる。この細孔径分布のデータは拡散の検討を実施するうえでの基礎的な知見であり、今後異なった配合のコンクリート等を作製した際に物性を比較するために活用する計画である。

以上、微小領域のヤング率および一軸圧縮強度および水銀圧入法の結果より、作製した試料の諸物性は標準的なコンクリートの範囲であることを確認した。

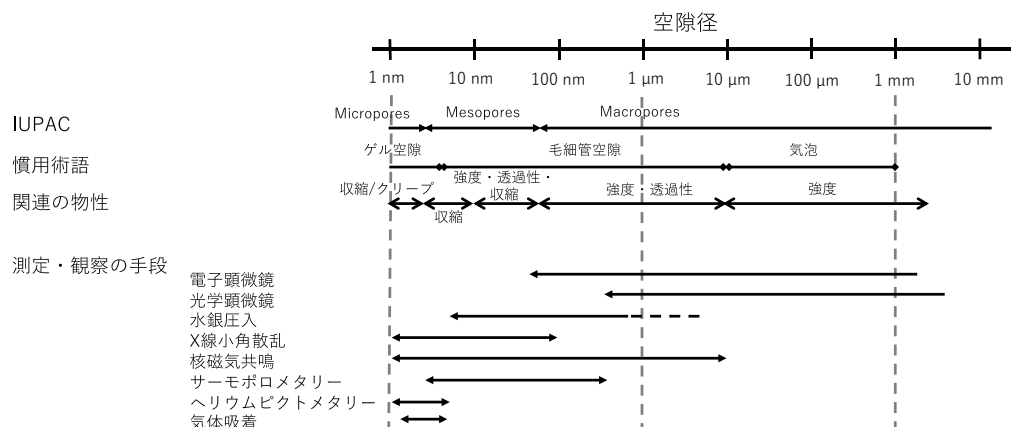


図 3.1-15 細孔の分類および測定方法と関連するコンクリートの物性  
([16]より引用)



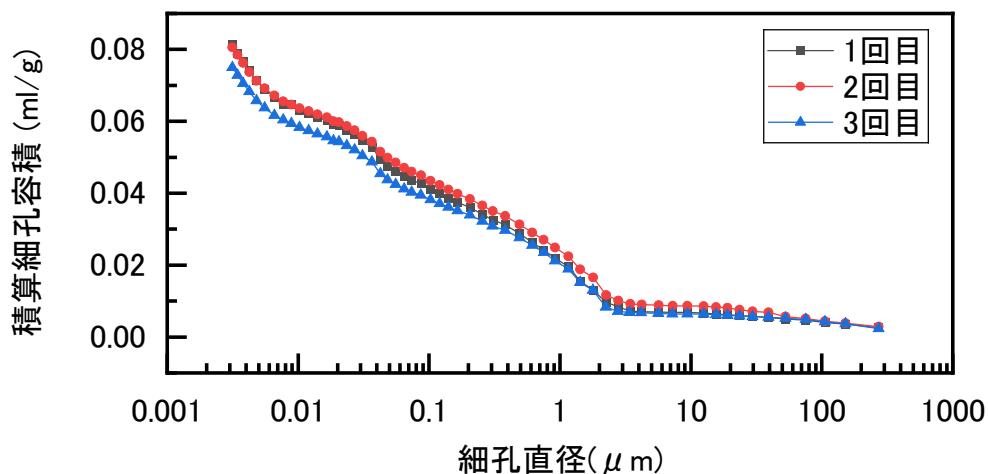


図 3.1-16 モルタルの積算細孔容積

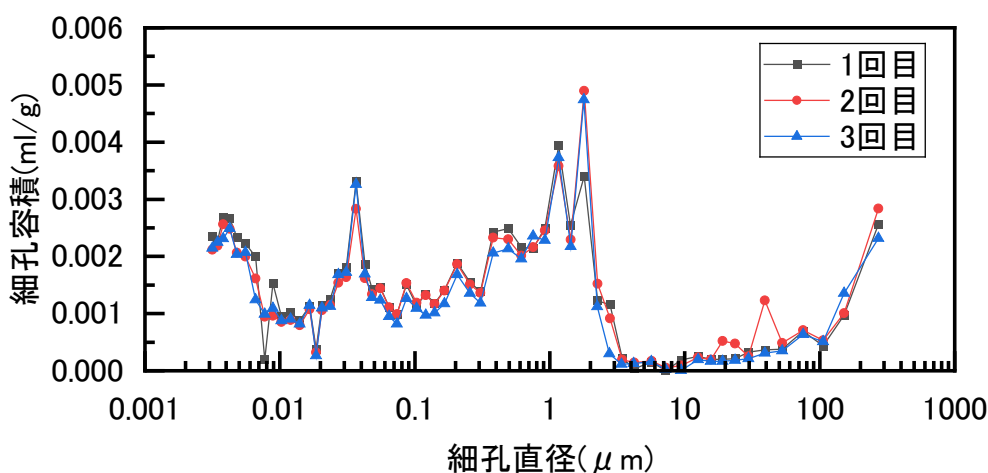


図 3.1-17 モルタルの細孔径分布

### 3.1.4 核種移行モデル計算（再委託先：福井大学）

#### (1) 遷移帯を含む核種濃度計算手法の開発に関する背景と課題

ランダムウォーク粒子追跡法による核種濃度計算手法の改良の一部として、遷移帯を骨材／セメント界面の一部としてモデル化する手法を検討し、その実装方法を整理した。

有限要素法などのメッシュ法に対してランダムウォーク粒子追跡法では、多面体メッシュで形状を模擬する必要がないため、必要に応じて正確な形状を表現することが可能である。このため、媒体の幾何形状をモデル化する際の誤差を、メッシュ法よりも小さくすることが可能である。ただし、粒子追跡法は3次元不均一構造を比較的自由に扱えるメリットがある一方で、多数の粒子をランダムウォークさせるモンテカルロ計算を行うため、粒子数に起因する統計誤差が発生するという特徴ももつ。粒子数の少ない領域、すなわち低濃度の領域では、統計誤差が相対的に大きくなってしまふ。本検討のように放射性廃棄物のレベル区分を目的とした核種移行解析では、低濃度における計算精度も高濃度の

場合と同様に求められる。これまでの成果として、低濃度領域における相対誤差低減のためのアルゴリズムなどを開発・実装してきた。本検討においては、コンクリート中の骨材表面付近の遷移帯における核種移行を含む計算手法を開発することを目的として検討を行った。ランダムウォーク粒子追跡法を用いて、遷移帯中の核種移行計算手法の開発における課題2点を以下に示す。

- ① 移行特性の異なる二つの媒体の境界面におけるランダムウォークの誤差の発生
- ② 遷移帯が数十  $\mu\text{m}$  オーダーと非常に薄いこと

前者①は、ランダムウォークする粒子の単位ステップ時間 $\Delta t_i$ の移動 $\Delta \vec{x}_i$ において、二つの媒体の境界を跨ぐ際に生じる誤差である。従来のランダムウォークにおいては、移動前の粒子位置における媒体の特性に基づき、移動ベクトルの分布を決定するため、媒体の境界等の存在はその単位ステップには考慮されない。大きな単位ステップ幅 $\Delta t_i$ によって境界面を大きく超えて跨いで移動すると、第2の媒体の特性が反映されず、結果的に媒体の境界位置が正確に反映されない状況となる。この誤差を低減するための方法としては、単位ステップ幅 $\Delta t_i$ を小さくしていく対策が考えられる。

課題二つのうちの後者②は、遷移帯が薄いために遷移帯内部の粒子は媒体境界面との距離が近く、前述の課題①が常に露呈することを表す。これについても、単位ステップ幅 $\Delta t_i$ を小さくしていく対策が解決方法の一つといえる。

このように不均一媒体中でのランダムウォーク粒子追跡法による拡散シミュレーションは、境界面付近や遷移帯における単位ステップ幅を小さくすることで、前述のような誤差を低減することが可能である。しかし、計算負荷の増大につながるとも考えられ、本検討では単位ステップ幅を小さくせずに境界付近での移動の誤差を低減する手法について検討した。具体的には、ランダムウォークする粒子の界面付近における単位ステップの移動ベクトルの計算において、界面を挟む二つの媒体の拡散特性を考慮した確率分布をモデル化した。これによって界面付近で単位ステップ時間幅を大きく設定した場合の精度が向上した。

## (2) 2領域の境界近傍における移動幅 $\Delta t_i$ の確率分布の理論解

二つの媒体の境界面におけるランダムウォークの誤差の低減について、ここでは二つの媒体を考慮した拡散方程式の理論解を移動幅 $\Delta t_i$ の確率分布として用いる方法を検討した。粒子から境界面に下ろした垂線方向を  $x$  軸方向として、1次元拡散方程式の解を導出し、移動幅の確率分布を得た。1次元拡散方程式の体系を図 3.1-18 に示す。

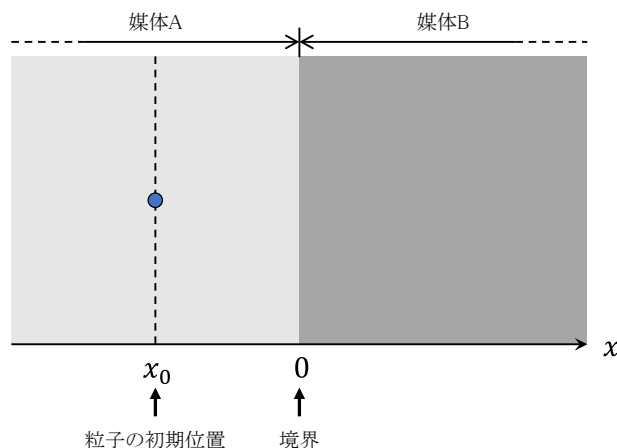


図 3.1-18 2領域の境界近傍における移動幅分布に関する体系

各領域における拡散方程式と初期条件、境界条件は以下のとおりである。

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial C}{\partial t} &= \frac{D}{R_A} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}, & x < 0, & \quad t > 0 \\
 \frac{\partial C}{\partial t} &= \frac{D}{R_B} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}, & x < 0, & \quad t > 0 \\
 C(x, 0) &= \delta(x - x_0), & -\infty < x < \infty \\
 \lim_{x \rightarrow \pm\infty} C(x, t) &= 0, & t > 0 \\
 -\frac{D}{R_A} \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=-0} &= -\frac{D}{R_B} \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=+0}, & t > 0 \\
 \frac{C(-0, t)}{R_A \varepsilon_A} &= \frac{C(+0, t)}{R_B \varepsilon_B}, & t > 0
 \end{aligned}$$

ここで、

$D$	:	間隙水中の拡散係数
$C$	:	$t$ 時間後の粒子の移動幅の確率密度分布（濃度分布）
$R_A, R_B$	:	媒体 A、B における吸着の遅延係数
$\varepsilon_A, \varepsilon_B$	:	媒体 A、B における間隙率
$x_0$	:	粒子の初期の座標

であり、この拡散方程式の解は、以下のとおりである。

$x_0 \leq 0$  について：

$$\begin{aligned}
 C(x, t) &= \frac{\sqrt{R_A}}{2\sqrt{\pi Dt}} \left\{ \exp\left(-\frac{R_A(x - x_0)^2}{4Dt}\right) + \frac{\sqrt{R_A}\varepsilon_A - \sqrt{R_B}\varepsilon_B}{\sqrt{R_A}\varepsilon_A + \sqrt{R_B}\varepsilon_B} \exp\left(-\frac{R_A(x + x_0)^2}{4Dt}\right) \right\}, & x \leq 0 \\
 C(x, t) &= \frac{\sqrt{R_B}}{2\sqrt{\pi Dt}} \cdot \frac{2\sqrt{R_B}\varepsilon_B}{\sqrt{R_A}\varepsilon_A + \sqrt{R_B}\varepsilon_B} \exp\left(-\frac{R_B\left(x - \sqrt{\frac{R_A}{R_B}}x_0\right)^2}{4Dt}\right), & x \geq 0
 \end{aligned}$$

$x_0 \geq 0$  について：

$$\begin{aligned}
 C(x, t) &= \frac{\sqrt{R_A}}{2\sqrt{\pi Dt}} \cdot \frac{2\sqrt{R_A}\varepsilon_A}{\sqrt{R_A}\varepsilon_A + \sqrt{R_B}\varepsilon_B} \exp\left(-\frac{R_A\left(x - \sqrt{\frac{R_B}{R_A}}x_0\right)^2}{4Dt}\right), & x \leq 0 \\
 C(x, t) &= \frac{\sqrt{R_B}}{2\sqrt{\pi Dt}} \left\{ \exp\left(-\frac{R_B(x - x_0)^2}{4Dt}\right) + \frac{-\sqrt{R_A}\varepsilon_A + \sqrt{R_B}\varepsilon_B}{\sqrt{R_A}\varepsilon_A + \sqrt{R_B}\varepsilon_B} \exp\left(-\frac{R_B(x + x_0)^2}{4Dt}\right) \right\}, & x \geq 0
 \end{aligned}$$

### (3) 開発したサンプリング手法の実装と比較

この理論解による単位ステップの移動幅の確率分布を図 3. 1-19 に例示する。この確率分布を利用してランダムウォークの単位ステップの移動幅をサンプリングすることにより、境界面に垂直な方向の誤差は消滅する。このサンプリング手法をランダムウォーク粒子追跡法の濃度計算に実装した。ランダムサンプリングが適切に行われていることを理論解の累積分布関数と比較することにより確認した（図 3. 1-20）。

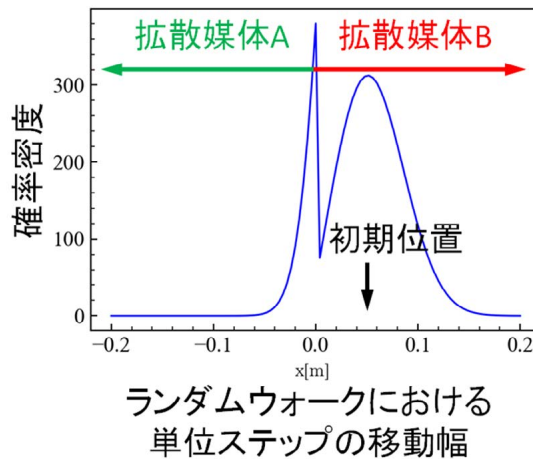


図 3.1-19 2 領域の境界近傍における移動幅の確率分布の理論解

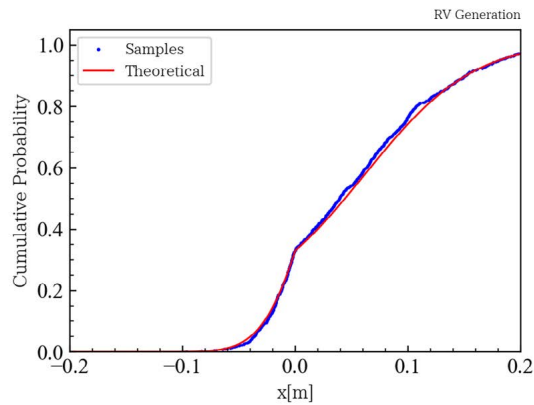


図 3.1-20 理論解に基づいた境界付近での移動幅のサンプリング結果

(赤線が理論解として得た移動幅の累積分布関数を表し、青点がランダムサンプリングされた 1,000 個のサンプル値を表す。両者が一致していることでサンプリングが適切に実装されていることが確認された。)

従来のランダムウォーク手法との比較を図 3.1-21 に示す。初期位置が  $X=-0.5$  mm の粒子の 20 日後の濃度分布を表している。縦軸の濃度は、 $X$  軸方向に累積させた量である（累積確率分布に相当する）。従来手法においては、移動前の粒子位置における媒体の特性に基づき、移動ベクトルの分布を決定するため、媒体の境界 ( $X=0$ ) を大きく跨いでしまう場合が出現し（赤点）、理論解に基づく新たな手法（黒点）からずれてしまう。従来法でこの誤差を低減するためには、単位ステップ幅を小さくする必要があった。図中の青点は、ランダムウォークのステップ時間幅を 1 分とし、約  $1.7 \times 10^5$  ステップに刻むことで得た結果である。本検討で開発した手法では、1 ステップで境界面を跨いだ移動を計算でき、界面付近で単位ステップ時間幅を大きく設定した場合の精度が向上した。

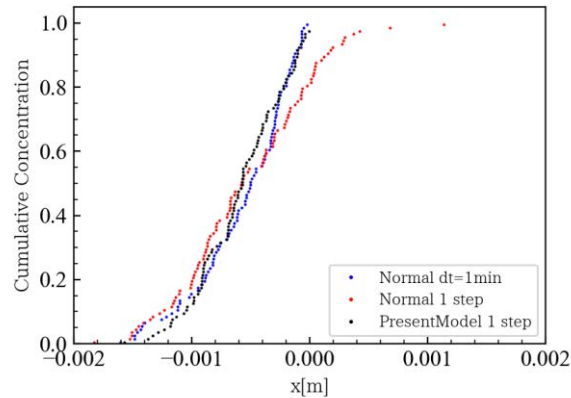


図 3.1-21 従来のサンプリング方法との比較

(黒点が理論解に基づくサンプリングを表す。青点は、従来のランダムウォーク手法で単位ステップ幅を短く取った結果。赤点は、従来のランダムウォーク手法で単位ステップ幅を短くしなかった結果。)

### 3.2 再資源化・再利用に向けた処理方法の検討

#### 3.2.1 汚染コンクリートからの骨材分離法の検討

##### (1) 実験概要

汚染コンクリート廃棄体の骨材分離法の検討のために、本項目では骨材分離試験および熱分析試験を実施し、骨材分離に伴って環境へ放出される放射性物質の基礎データを採取する計画である。令和5年度は、コンクリート供試体を非放射性のCs溶液に浸漬し、模擬汚染コンクリートを準備した。模擬汚染コンクリート中のCs成分を蛍光X線分析、原子吸光分光分析、X線回折の化学分析により評価した。また、骨材分離試験、熱分析試験の環境整備を行うとともに模擬汚染コンクリートを用いた試験を開始した。

##### (2) 実験結果

###### ① 模擬汚染コンクリートの準備

2種類のコンクリートを約30 mmに粗粉碎し、非放射性CsCl溶液に浸漬することで、骨材分離試験および熱分析試験に使用する模擬汚染コンクリートを準備した。1種類目のコンクリートは、1Fのコンクリートを想定して、電力中央研究所が作製したコンクリートである。(以下、「1F 模擬コンクリート」と略す。) 図3.2-1に、約30 mmに粗粉碎された1F 模擬コンクリートの塊の写真を示す。コンクリートは石灰岩骨材を用いて、 $\phi 100 \text{ mm} \times H200 \text{ mm}$ の円柱供試体に成型し、約30 mmに粗粉碎した。粗粉碎後の1F 模擬コンクリートの塊の重量は $30.8 \pm 8.2 \text{ g/個}$ であった。8.2 g/個は標準偏差である。2種類目のコンクリートは、硬質砂岩骨材を用いたコンクリートとした。(以下、「硬質砂岩コンクリート」と略す。) 図3.2-2に、約30 mmに粗粉碎された硬質砂岩コンクリートの塊を示す。硬質砂岩コンクリートは、JIS A 1132:2020[17]に従って、 $\phi 100 \text{ mm} \times H200 \text{ mm}$ の円柱供試体に成型し、材齢28日まで標準養生、材齢56日まで温度20℃、湿度60%の高温高湿室内で気中養生し、材齢56日以降に約30 mmに粗粉碎した。粗粉碎後の硬質砂岩コンクリートの塊の重量は、 $29.8 \pm 8.5 \text{ g/個}$ であった。8.5 g/個は標準偏差である。その後、2種類のコンクリートの塊は、60℃の真空乾燥器で2日間真空乾燥した。60℃、



2 日間の真空乾燥による重量減少から蒸発した自由水量は、1F 模擬コンクリートで 3～6 wt%/個、硬質砂岩コンクリートで 2～4 wt%/個であった。ここで、コンクリートの塊に対する重量減少のばらつきは、コンクリートの塊中に含まれる粗骨材の割合のばらつきが主な原因と考えられる。真空乾燥後のコンクリートの塊は、Cs 濃度  $0.79 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の CsCl 水溶液に 1 週間浸漬し、気中で数日間乾燥させて模擬汚染コンクリートとした。図 3.2-3～図 3.2-4 は、それぞれ 1F 模擬コンクリートおよび硬質砂岩コンクリートの模擬汚染コンクリートの塊の外観である。図 3.2-1～図 3.2-4 を比較しても、CsCl 水溶液の浸漬前後でコンクリートの外観に大きな変化は見られなかった。



図 3.2-1 1F 模擬コンクリートの塊の外観



図 3.2-2 硬質砂岩コンクリートの塊の外観



図 3.2-3 模擬汚染コンクリートの塊の外観（1F 模擬コンクリート）



図 3.2-4 模擬汚染コンクリートの塊の外観（硬質砂岩コンクリート）

作製した模擬汚染コンクリートに含まれる Cs 成分の量を蛍光 X 線分析（以下、「XRF」と略す。）および原子吸光分光分析（以下、「AAS」と略す。）の化学分析によって評価した。化学分析にあたって、模擬汚染コンクリートの塊は骨材を含めて機械的に粉砕して粉末にした。XRF 分析は、模擬汚染コンクリートの粉末を  $\phi 30 \text{ mm} \times \text{H}10 \text{ mm}$  の円柱形に圧縮成型し、その表面を蛍光 X 線分析装置（ZSX PrimusII、株式会社リガク）で分析した。表 3.2-1 は模擬汚染コンクリートの XRF 分析の結果を示す。1F 模擬コンクリートは、石灰岩骨材であるため  $\text{CO}_2$  と  $\text{CaO}$  が各々 17 wt% と 48 wt% と高い値を示した。一方で、硬質砂岩コンクリートはシリカ系の骨材であるため  $\text{SiO}_2$  が 35 wt% と高い値を示した。AAS 分析は、模擬汚染コンクリートの粉末を溶解[18]した後に水溶液化し、水溶液中の Cs 成分

を原子吸光光度計（VARIAN 製 AA240FS）で測定した。表 3.2-2 に XRF 分析、AAS 分析の結果および重量変化から推定される模擬汚染コンクリート中の Cs 濃度を示す。重量変化により推定されるコンクリート中の Cs 濃度の推定値は、真空乾燥による重量変化分だけコンクリート中の自由水を  $0.79 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の CsCl 水溶液に置換した Cs 濃度である。重量変化からの Cs 濃度の推定値が 0.5～0.9 wt% に対して、化学分析の結果は XRF 分析で 1.2～1.6 wt%、AAS 分析で 0.84～0.97 wt% であった。Cs が移行しにくい粗骨材の含有割合によって Cs 濃度はばらつくが、CsCl 水溶液が浸透し収着等の影響が現れ、CsCl 水溶液の単純な置換が発生しないことが要因と考えられる。しかしながら、1 wt% 前後の Cs 濃度をもつ模擬汚染コンクリートを準備することができた。

表 3.2-1 模擬汚染コンクリートの XRF 分析の結果

No	成分名	成分の量 (wt%)	
		1F 模擬コンクリート	硬質砂岩コンクリート
1	CO <sub>2</sub>	17.47	14.54
2	Na <sub>2</sub> O	0.58	1.06
3	MgO	0.87	0.93
4	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.72	6.73
5	SiO <sub>2</sub>	21.15	35.65
6	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.18	0.15
7	SO <sub>3</sub>	0.91	0.66
8	Cl	0.64	0.68
9	K <sub>2</sub> O	0.45	0.89
10	CaO	48.15	33.24
11	TiO <sub>2</sub>	0.27	0.27
12	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	—*	0.03
13	MnO	0.07	0.08
14	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.55	2.97
15	NiO	0.01	0.01
16	CuO	0.01	0.01
17	ZnO	0.03	0.02
18	Rb <sub>2</sub> O	0.00	0.00
19	SrO	0.03	0.03
20	ZrO <sub>2</sub>	0.01	0.01
21	SnO <sub>2</sub>	—*	0.02
22	Cs <sub>2</sub> O	1.90	2.01

\* 検出下限以下

表 3.2-2 模擬汚染コンクリート中の Cs 濃度

コンクリート	Cs 濃度 (wt%)		
	XRF の分析結果	AAS の分析結果	重量変化による推定値
1F 模擬コンクリート	1.56	0.84	0.89
硬質砂岩コンクリート	1.27	0.97	0.52

## ② 骨材分離試験の環境整備および試験

令和 6 年度以降に実施する骨材分離試験に向けて、試験装置の環境整備および試験を開始した。骨材分離試験の試験装置は過去の骨材分離試験[19]を参考にした。図 3.2-5～図 3.2-6 は整備した試験装置の概要と外観である。令和 5 年度は、骨材分離する模擬汚染コンクリートの塊(約 350 g)を 300 °C で 1 時間加熱し、ポットミル(φ 163 mm×H240 mm:容積 5 L)に φ 10 mm のステンレス球(約 415 g)と一緒に封入した。ポットミルの内壁には 30 mm の邪魔板を 1 枚取り付けた。回転台によりポットミルを 30 rpm で回転させ、側面から 1/4 インチのステンレス配管を差し込み、ポットミル内の浮遊する粉塵をカスケードインパクターで分級/採取した。採取後の粉塵は、分級された粒径ごとに分析天秤で重量測定した。その後、骨材分離中および骨材分離後の粉塵の Cs 濃度を AAS 分析で定量化した。ただし、AAS 分析にはまとまった量の粉塵が必要なため、Cs 濃度は粒径に依存しないと仮定して粉塵をまとめて AAS 分析した。

骨材分離試験は、1F 模擬コンクリートの塊を 342 g (300 °C 加熱後の重量は 334 g)、硬質砂岩コンクリートの塊を 343 g (300 °C 加熱後の重量は 335 g) 用いた。試験は、30 rpm で 3 分間回転させ (90 回転)、カスケードインパクターでポットミル内の粉塵を採取した。採取した粉塵の重量測定後、再び 30 rpm で 3 分間回転させ (90 回転)、カスケードインパクターで粉塵を採取した。同様の操作を 10 回実施し、30 分間 (900 回転) の骨材分離中にポットミル内に浮遊する粉塵の量を測定した。その後、30 rpm で 33 分間回転し (990 回転)、回転を停止した直後からポットミル内に浮遊する粉塵を 20 分間採取した。

図 3.2-7～図 3.2-8 は、骨材分離中のポットミル内の粉塵濃度 (9 μm 以下の粒径) の時間変化を示す。斜線部の粒径は、他の粒径と比較して大量の粉塵がサンプリングされた。これは骨材分離によって発生する粉塵がこの粒径範囲に入ることを示している。またサンプリング量が多いことは、実験後の AAS 分析の実施に有利であった。しかしながら、カスケードインパクターによる 50%カットオフ粒径としての分級精度には、さらなる検証が必要と考えられたので、この粒径範囲のステージから算出した粉塵濃度の最大/最小値を濃度範囲として示すこととした。今後は、サンプリング量と AAS 分析の精度ならびに走査電子顕微鏡 (以下、「SEM」と略す。) による直接観察などを通して実験条件を決定することとした。図の斜線領域は、その粒径範囲での粉塵濃度のエラーバーを示している。横軸は粉塵の粒子径、縦軸は粉塵の重量を骨材分離前のコンクリートの重量で規格化し、ガスの吸引量で除した粉塵濃度である。グラフ中の数字は、粉塵濃度の最大値を意味している。図 3.2-7～図 3.2-8 の縦軸は、ポットミル内の粉塵の量に対応しており、回転数が増えるにつれて粉塵濃度は全体的に大きくなった。300～500 回転以上では粉塵濃度は飽和した。1F 模擬コンクリートでは、 $1.4 \times 10^{-3} \sim 1.6 \times 10^{-3} \text{ g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$ 、硬質砂岩コンクリートでは、 $9.2 \times 10^{-4} \sim 3.8 \times 10^{-3} \text{ g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$  であった。今後、骨材分離の状況と粉塵濃度の関係を総合的に判断する必要がある。また、粉塵の濃度は、粒径が大きくなるにつれて濃度が高くなる傾向があった。作業員の鼻腔や喉等の粘膜に付着しやすい 4～7 μm の粉塵[20]の濃度は、 $\sim 10^{-3} \text{ g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$  と高いことがわかった。一方で、肺胞に付着可能な 1 μm 以下の粉塵[20]の濃度は、 $\sim 10^{-4} \text{ g} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$  と 4～7 μm の粉塵と比べて 1 桁小さいことがわかった。

図 3.2-9 は、63 分間の回転を停止した後におけるポットミル内の粉塵濃度の粒径依存性を示す。赤線が 1F 模擬コンクリート、黒線が硬質砂岩コンクリートである。図の斜線領域はエラーバーを示す。図 3.2-7～図 3.2-8 と同様に、図 3.2-9 においても 4～7 μm の粉塵の濃度が高い傾向であった。これは、回転を停止した直後に測定を開始したため、



沈降しやすい粒径の大きい粉塵が沈降する前に採取された可能性が考えられる。令和 6 年度は、被ばく評価の基礎データという観点から、回転停止後に一定時間待機した後に採取を開始することで、実作業に有用な基礎データを採取することとする。しかしながら、図 3.2-7～図 3.2-8 と比較すると、作業員の被ばく評価上重要となる  $10\ \mu\text{m}$  以下の粉塵濃度は、ポットミル回転中と比べて約 100 分の 1 ( $10^{-6}\sim 10^{-5}\ \text{g}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) に減少した。

図 3.2-10 は、図 3.2-7～図 3.2-8 の骨材分離中の  $10\ \mu\text{m}$  以下の粉塵の濃度の総量、図 3.2-9 の骨材分離後の  $10\ \mu\text{m}$  以下の粉塵の濃度の総量を整理したものを示す。骨材分離中および骨材分離後の粉塵の濃度は、模擬汚染コンクリートの種類によらず、よく似た傾向を示し、200～300 回転までは粉塵の濃度は増大し、それ以上の回転数では飽和した。初期の粉塵の濃度の総量が増大する理由は、骨材分離によってポットミル内の粉塵の量が回転数とともに多くなったためと考えられる。令和 6 年度以降の骨材分離試験によって、ポットミル内の粉塵の量と骨材分離の進行度の関係を確認する。

表 3.2-3 は、骨材分離中および骨材分離後に採取した粉塵の AAS 分析の結果を示す。骨材分離後のサンプリング量は極めて少ないため、硬質砂岩コンクリートでは精度が低くなった。しかしながら表 3.2-2 と比べると、骨材を含むコンクリートから粉塵に分離されたことで Cs 濃度は最大 4 倍まで増加した。これは骨材分離により発生する粉塵は、Cs 濃度の高いモルタルから発生するためと考えられる。粉塵の Cs 濃度はコンクリートと比較して高くなるため、今後も継続して粉塵の Cs の移行挙動を調べる必要がある。

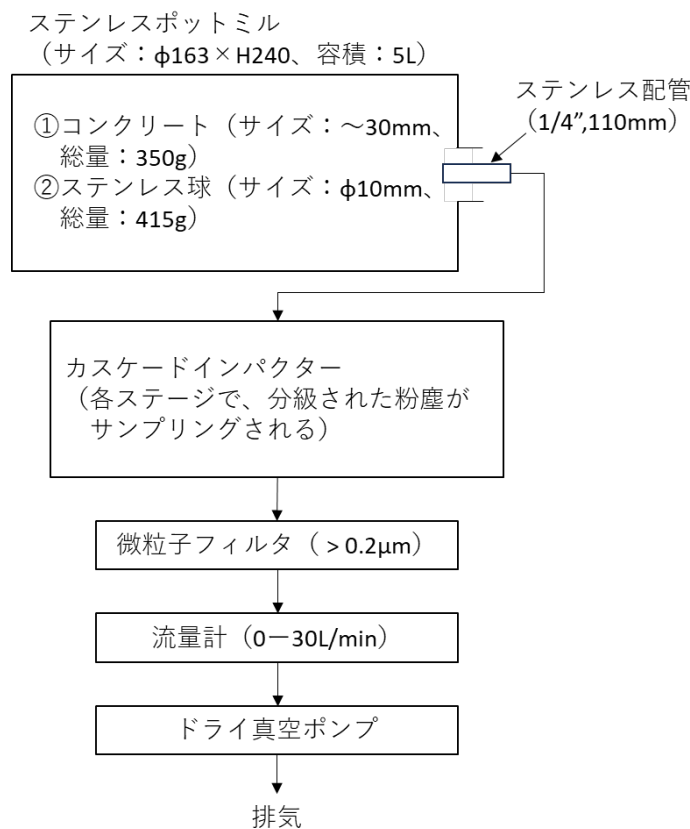


図 3.2-5 骨材分離試験の試験装置の概要

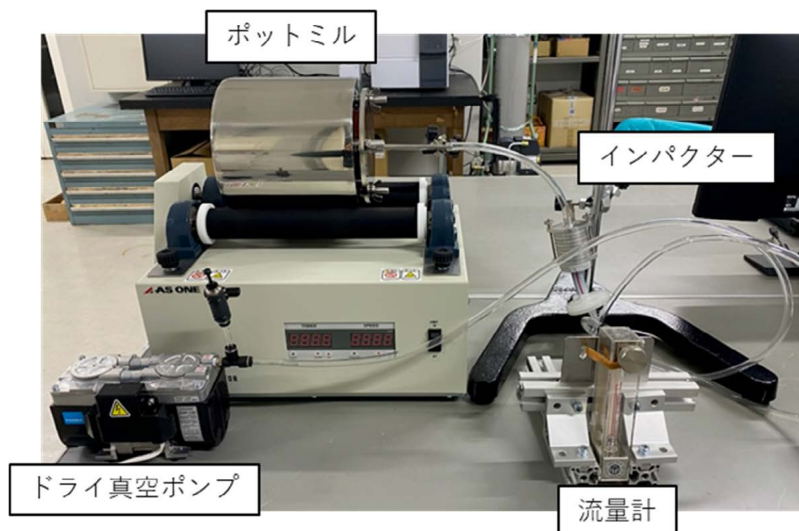
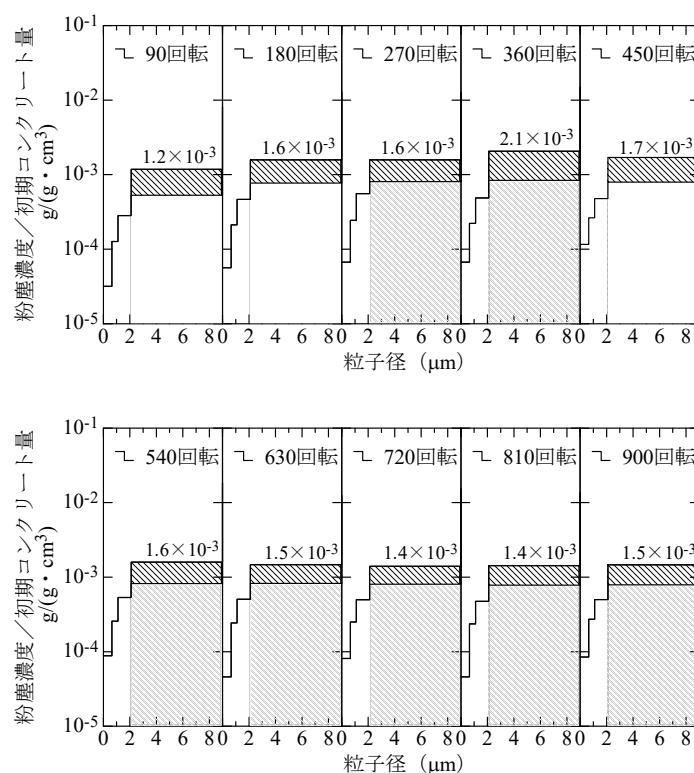


図 3.2-6 骨材分離試験の試験装置の外観

図 3.2-7 骨材分離中の粉塵の濃度の時間変化  
(汚染 1F 模擬コンクリート)

図の斜線領域は粉塵濃度のエラーバーを示す。カスケードインパクトターによる 50%カットオフ粒径としての分級精度にはさらなる検証が必要であり、この粒径範囲の粉塵濃度の最大／最小値を濃度範囲として示した。

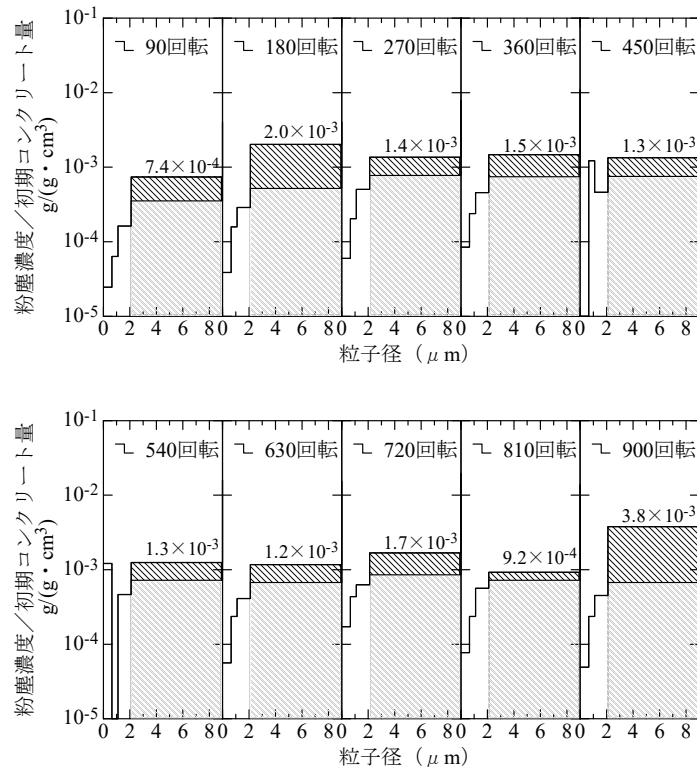


図 3.2-8 骨材分離中の粉塵の濃度の時間変化  
(汚染硬質砂岩コンクリート)

図の斜線領域は、粉塵濃度のエラーバーを示す。カスケードインパクトによる 50%カットオフ粒径としての分級精度にはさらなる検証が必要であり、この粒径範囲の粉塵濃度の最大／最小値を濃度範囲として示した。

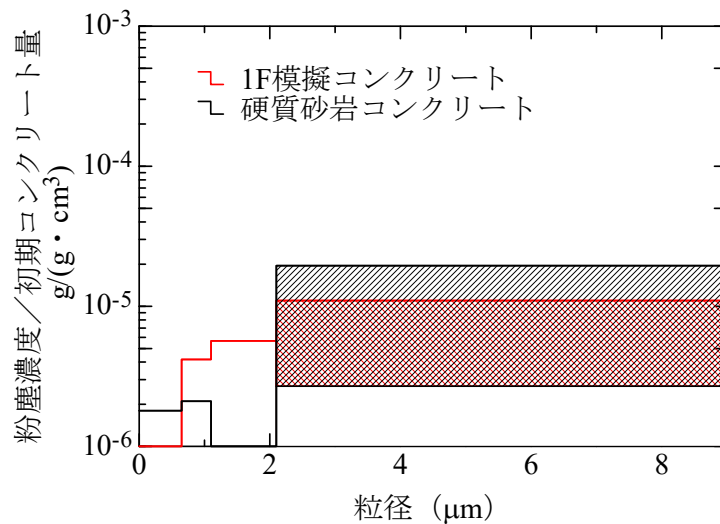


図 3.2-9 骨材分離後の気中の粉塵濃度  
(赤線：1F 模擬コンクリート、黒線：硬質砂岩コンクリート)

図の斜線領域は、その粒径範囲での粉塵濃度のエラーバーを示す。

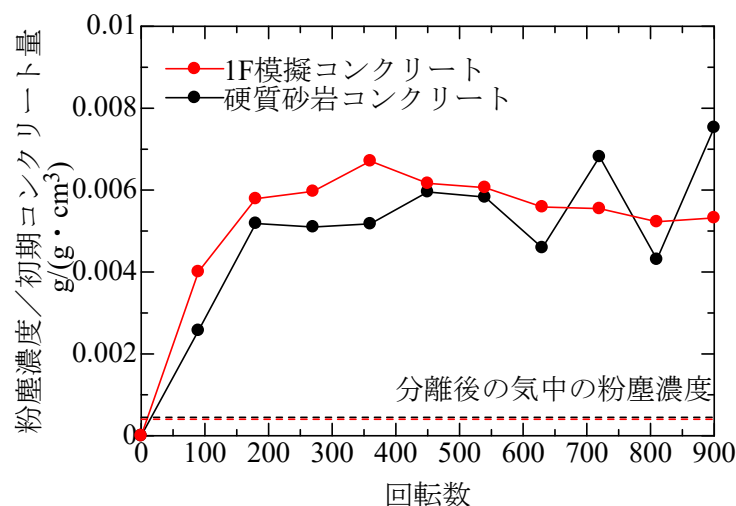


図 3.2-10 骨材分離中の気中の粉塵濃度  
(赤線：1F 模擬コンクリート、黒線：硬質砂岩コンクリート)

表 3.2-3 骨材分離中／後の粉塵の Cs 濃度

コンクリート	骨材分離中の粉塵 Cs 濃度 (wt%)	骨材分離後の粉塵 Cs 濃度 (wt%)
	AAS	AAS
1F 模擬コンクリート	3.9	2.8
硬質砂岩コンクリート	3.9	~2*

\* 粉塵量が微量なため分析精度が低い。

### ③ 熱分析試験の環境整備および試験

骨材分離に用いる加熱すりもみ法は、加熱によりコンクリート中の水分を蒸発させ骨材分離しやすくする技術である。一方で、コンクリート中の Cs 成分は水分に溶解するため、水分の蒸発に影響を与える。コンクリート中の Cs 成分が及ぼす影響を把握するために熱分析試験の環境整備を行った。熱分析試験には、株式会社リガク製 Thermo plus EV02 TG-DTA (TG-DTA8122/H) を購入した。模擬汚染コンクリート（粉状）、骨材（粒状）、モルタル（粉状）を用いて、昇温速度  $10 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$  で室温から 750 K までの TG-DTA 曲線を採用した。加熱に伴う重量減少（水分の放出）および反応熱を評価した。

図 3.2-11(a) および (b) は、模擬汚染コンクリート粉末、骨材、モルタル粉末の熱重量 (TG) を示し、図 3.2-12(a) および (b) は、示差熱 (DTA/ $M_0$ ) の測定結果を示す。室温から 750 K では、1F 模擬コンクリート、硬質砂岩コンクリートの両方においてコンクリートおよびモルタルで重量減少した。骨材に重量変化は見られなかった。TG は、750 K で 1F 模擬コンクリートが 5.46 wt%、モルタルが 6.67 wt%、硬質砂岩コンクリートが 4.39 wt%、モルタルが 6.08 wt% の重量減少を観測した。1F 模擬コンクリートの重量減少が硬質砂岩コンクリートよりも大きい点は、真空乾燥時の重量減少と同じ傾向であるため、コンクリートの含水率に依存すると考えられる。さらに、コンクリートおよびモルタルの DTA/ $M_0$  は、約 720 K で吸熱反応を示した。一般に高温でコンクリートは C-S-H の熱分解[21]が発生するため、この 720 K での吸熱反応も C-S-H の熱分解と考えられる。コンクリート中の C-S-H を確認するため、室温での模擬汚染コンクリート、さらに 500 °C まで加熱した後の模擬汚染コンクリートの X 線回折（以下、「XRD」と略す。）スペクトルを測定した。ここで X 線回折には、株式会社リガク製 ULTIMA IV を用いた。図 3.2-13 は、1F 模擬コ

ンクリート、硬質砂岩コンクリートの 500 °C 加熱前後の XRD スペクトルを示す。室温では  $2\theta \sim 17.9^\circ$ 、 $33.9^\circ$  の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  のピークが検出されているのに対し、500 °C に加熱した後のコンクリートでは、 $2\theta \sim 17.9^\circ$ 、 $33.9^\circ$  のピークは消失した。したがって、DTA/ $M_0$  において約 720 K で観測された吸熱反応は、コンクリート中の C-S-H 結合の熱分解と結論づけた。

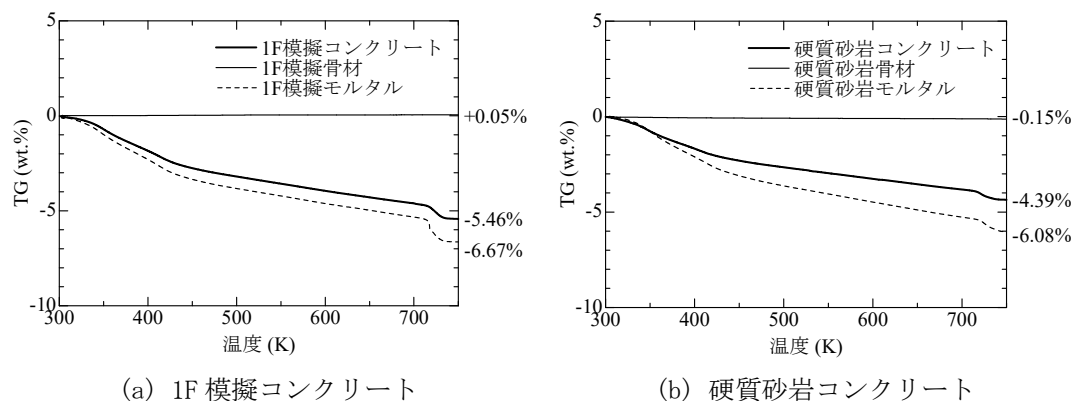


図 3.2-11 熱重量測定の結果

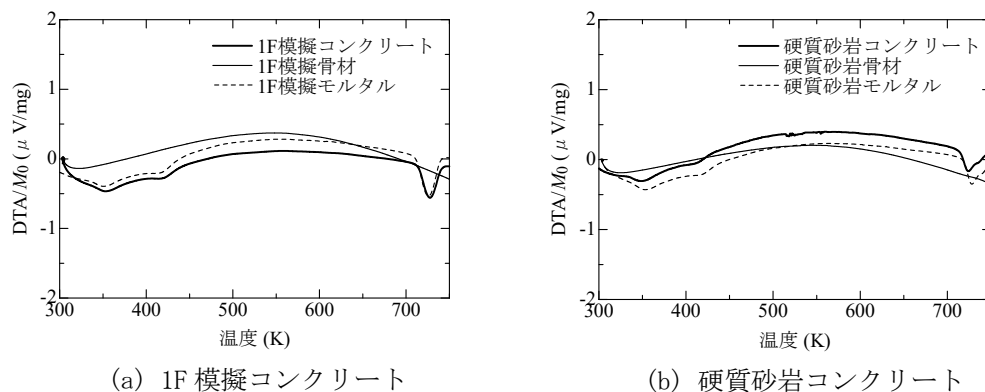


図 3.2-12 示差熱測定の結果

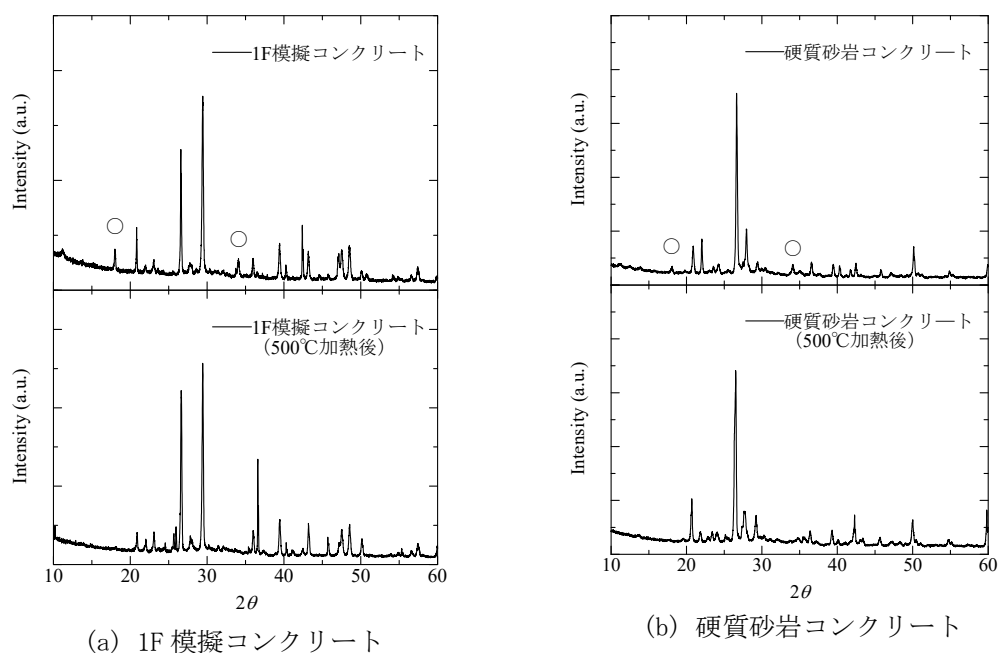


図 3.2-13 XRD スペクトル

### 3.3 再資源化物の性状評価

#### 3.3.1 再生コンクリートの作製

##### (1) 概要

所定のコンクリート廃材を破砕して作製した再生骨材に対し、非放射性の Cs 溶液および Sr 溶液に異なる濃度および浸漬期間を設定して、模擬汚染再生骨材を作製した。また、模擬汚染再生骨材を用いた再生コンクリート供試体を作製した。

##### (2) 方法

約 50 年経過した寒冷地の単一鉄筋コンクリート建造物を破砕し、JIS A 1102:2014「骨材のふるい分け試験方法」に則ったふるい分けを施して再利用した。使用した直径 5 mm～20 mm の再生粗骨材は、JIS 規定の再生粗骨材 L に相当する。再生骨材の表乾重量、水中質量、絶乾重量を測定し、吸水率を算出した。本実験では吸水率 1～7%の再生骨材を使用した。乾燥前後での重量変化がなくなるまで 40 °Cで絶乾状態にした再生骨材について、SrCl<sub>2</sub>水溶液、CsCl 水溶液にそれぞれ、1 週間あるいは 2 か月間浸漬させた。これにより、放射性コンクリート廃棄物を使用した再生骨材を模擬した。

核種イオンを含む水溶液の濃度は、飽水炭酸化モルタルへの浸透コンクリート中への Cs と Sr の浸透評価に関する先行研究での濃度設定[22]を参考にして、Cs 、Sr の濃度を  $1 \times 10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $1 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  とした。浸漬条件と浸漬させた再生骨材の吸水率を表 3.3-1 に示す。表 3.3-1 の「供試体」とは、核種イオンを含む水溶液に浸漬させた再生骨材を浸漬後にセメントペーストで被覆したものである。また、表 3.3-1 の「再生骨材単体」とは、供試体の対照実験として再生骨材単体での曝露試験に供した試料である。対照実験としては、核種イオン  $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の水溶液に 1 週間浸漬させた再生骨材をセメントペーストで被覆せずに再生骨材単体で水道水に曝露した。供試体、再生骨材単体ともに、「3.3.2 再生コンクリートからの核種移行評価」において浸漬試験を行い、Cs および Sr の外部環境への溶出挙動を評価した。図 3.3-1 に骨材浸漬の様子を示す。

表 3.3-1 浸漬条件と再生骨材の吸水率

浸漬溶液	浸漬期間	吸水率 (%)							
		供試体	1.0	2.0	2.9	4.0	4.8	6.0	6.6
SrCl <sub>2</sub> 10 <sup>-1</sup> mol/L	1週間	再生骨材単体	1.4		3.5		5.4		7.7
		供試体	1.3	2.2	3.3	4.1	5.1	6.2	7.1
	2か月	供試体	1.2	2.1	3.1	4.1	4.9	6.1	6.9
SrCl <sub>2</sub> 10 <sup>-4</sup> mol/L	1週間	再生骨材単体	1.4	2.4		4.3		6.5	
	2か月	供試体	0.9	1.9	2.8	4.0	4.8	5.9	6.6
		再生骨材単体	1.3	2.2		4.1			7.6
CsCl 10 <sup>-1</sup> mol/L	1週間	供試体	1.2	2.2	3.2	4.1	5.1	6.2	7.0
	2か月	再生骨材単体	1.4		3.7	4.2		6.5	
		供試体	1.0	2.1	3.0	4.1	4.9	6.1	6.8



図 3.3-1 再生骨材浸漬の様子

## (3) 結果

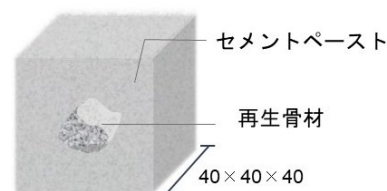
所定の浸漬期間終了後、マイクロフォーカス X 線 CT 装置で再生骨材を撮影し、核種イオンの浸透を確認した。撮影終了後、普通ポルトランドセメントを使用し、w/c が 43.6% のセメントペーストで再生骨材の周囲を被覆した供試体を作製し、これにより模擬再生コンクリートを模擬した。使用した材料の配合表を表 3.3-2 に示す。

表 3.3-2 使用材料の配合表（模擬再生コンクリート）

	水	普通ポルトランドセメント	w/c
質量 (kg)	115	264	0.436
単位質量 (kg/m <sup>3</sup> )	1000	3150	

上記の配合でセメントペーストを練り混ぜ、10 分放置し、再度混練した後に材料分離が生じないことを確認してから型枠に打設した。縦 40 mm×横 40 mm×高さ 40 mm の立方体の中心に再生骨材が埋設された供試体を作製するため、縦 40 mm×横 160 mm×高さ 40 mm の角柱型枠を用いて、養生終了後に縦 40 mm×横 40 mm×高さ 40 mm になるよう切削した。セメントペーストの中心に再生骨材が配置されるよう、再生骨材を埋設した。

養生方法は 20 °C の室温環境において湿布養生とした。打設後、型枠にプラスチックフィルムで被覆をして濡れたタオルをかけ、コンテナ内に静置して湿潤状態を保つためにカバーをかけて保管した。材齢 1 日後に脱型し、供試体を再度プラスチックフィルムで被覆し、改めて濡れたタオルをかけて再びコンテナに封入した。材齢 28 日まで養生を施し、養生期間終了後、縦 40 mm×横 160 mm×高さ 40 mm の角柱を縦 40 mm×横 40 mm×高さ 40 mm にカットして供試体を作製した。図 3.3-2 に供試体の外観および断面の様子を図 3.3-3 には供試体の概略図を示す。

図 3.3-2 供試体の断面図  
(外観写真)図 3.3-3 供試体概略図  
(単位は mm)



#### (4) まとめ

CsCl あるいは  $\text{SrCl}_2$  水溶液を  $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  および  $10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  に調製し、1 週間あるいは 2 か月の浸漬を行うことで模擬汚染骨材を作製した。また、セメントペーストで模擬汚染骨材を被覆した模擬再生コンクリートおよび実構造物と同じ配合で模擬汚染骨材を使用した模擬再生コンクリートを作製した。

### 3.3.2 再生コンクリートからの核種移行評価

#### (1) 概要

3.3.1 項で作製した模擬汚染再生骨材を用いた再生コンクリート供試体に対し、浸漬試験を行うことで、Cs および Sr の外部環境への溶出挙動を調べた。その際、ひび割れが生じた場合の再生コンクリート供試体に対して、ひび割れが核種移行特性に及ぼす影響を調べた。

#### (2) 方法

汚染を模擬した再生骨材単体での曝露試験を行った。セメントペーストで被覆せずに、再生骨材単体を  $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の核種イオンを含む水溶液に 1 週間浸漬させ、核種イオンの移行挙動を確認した。 $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の  $\text{SrCl}_2$  水溶液、CsCl 水溶液にそれぞれ 1 週間浸漬させた再生骨材単体をイオン交換水の中に 2 か月間曝露させた。イオン交換水は、それぞれの再生骨材ごとに液固比 20 となるよう、再生骨材の質量の 20 倍の量を用意した。曝露期間終了後、ICP-AES で曝露させた溶液の Sr 濃度、Cs 濃度をそれぞれ測定し、再生骨材単体からの核種イオンの溶出を確認した。

また、模擬再生コンクリートは所定の養生期間終了後、供試体ごとに一体ずつ 120 ml の水道水に 2 か月間曝露させた。曝露期間終了後、再びマイクロフォーカス X 線 CT 装置で供試体を撮影し、核種イオンの移行挙動を確認した。撮影終了後、2 か月時点で核種イオンの移行挙動を停止させるため、アセトンを真空状態で供試体に浸透させ、24 時間真空状態で乾燥させた。また、試験期間中、供試体や切削したサンプルは原則真空状態で保管した。X 線 CT 撮影終了後には、縦 40 mm×横 40 mm×高さ 40 mm の立方体の供試体を縦 40 mm×横 40 mm×高さ 20 mm になるよう半割し、再生骨材が中心に埋設された供試体の断面にレーザー誘起ブレークダウン分光法（以下、「LIBS」と略す。）あるいは電子プローブマイクロアナライザー（以下、「EPMA」と略す。）による元素分析を適用させ、核種イオンの移行挙動を観察した。また、曝露に用いた溶液については、ICP-AES で Sr 濃度と Cs 濃度を測定した。

#### (3) 結果

核種イオンを含む濃度の異なる水溶液に 1 週間浸漬させ、核種イオンを含む再生骨材をイオン交換水に 2 か月曝露した際の、再生骨材単体からの核種イオンの溶出を分析した。分析には ICP-AES を用いた。図 3.3-4 に溶出した Sr イオンの濃度を、図 3.3-5 に Cs イオンの濃度を示す。各グラフの横軸に示す数値 (%) は、浸漬させた再生骨材の吸水率である。横軸の下に、再生骨材を浸漬させた濃度と浸漬期間を示す。これより、Sr イオンと Cs イオンの両方で、濃度の高い  $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の水溶液に浸漬させた再生骨材からの、イオン交換水への溶出が著しいことがわかる。特に、吸水率が近い再生骨材を比較すると、Sr では 40 ～65 倍、Cs では 100 倍に近い濃度で溶出している。 $10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の水溶液に浸漬させた再生骨材からは、最大で Cs イオンが  $3.7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  溶出している。これは、同時に測定した水道



水の Sr イオン  $0.11 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、Cs イオン  $0.68 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  に対して大きな値となっている。また、核種イオンの溶出量は、概ね吸水率が大きくなると、それに伴って増加している。これは、吸水率の高い再生骨材のモルタル部に核種イオンが浸透しやすいことによるものであると考えられる[23]。吸水率の高い再生骨材は、核種イオンが浸透しやすく、かつ溶出しやすいことがわかった。核種イオンを含む再生骨材単体では、低濃度の核種イオンを含む水溶液に浸漬した再生骨材からも再生骨材の外部に核種イオンが溶出することが確認された。

汚染模擬再生骨材をセメントペーストに埋設して 2 か月経過した後の核種イオン移行挙動について、EPMA を用いた元素分析を行った。再生骨材とその周辺を被覆したセメントペースト 1 mm～2 mm を含む範囲について、25  $\mu\text{m}$  間隔で面分析を行った。濃度の異なる核種イオンを含む水溶液に浸漬させた再生骨材のうち、浸漬 1 週間および 2 か月の再生骨材を埋設した供試体の断面分析を実施した。Ca、Si および Sr あるいは Cs の 3 元素の元素分布を示したマッピング図の一例を図 3.3-6 および図 3.3-7 に示す。EPMA 分析の結果からは、Sr と Cs いずれの核種イオンも浸漬条件によらず、再生骨材を埋設した供試体では再生骨材の内部に留まっており、外部のセメントペーストに移行していないことが確認できた。また、Ca と Si の強度比が大きく変化する領域、すなわち再生骨材表面と周囲のセメントペーストとの境界面より外部には、Sr あるいは Cs が検出されていない様子が確認できた。

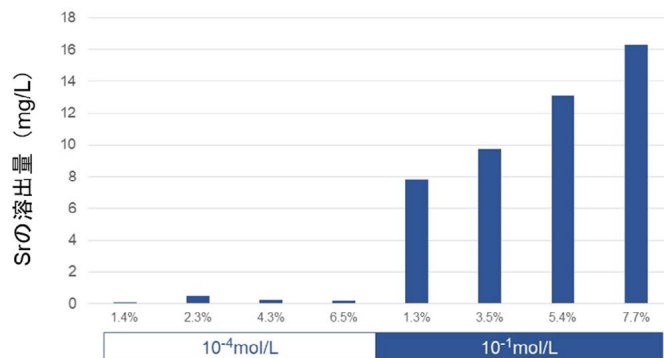


図 3.3-4 Sr イオン濃度（模擬汚染再生骨材からの溶出量）

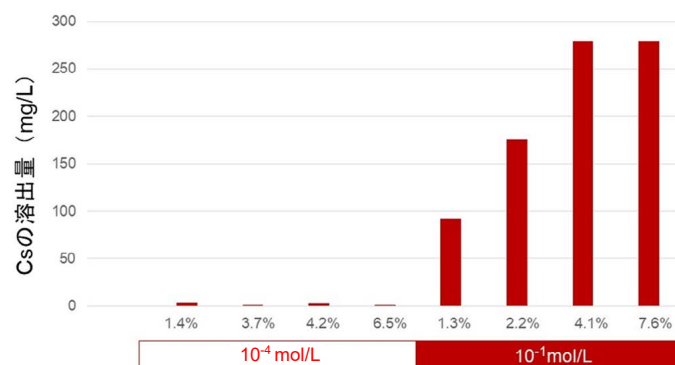


図 3.3-5 Cs イオン濃度（模擬汚染再生骨材からの溶出量）

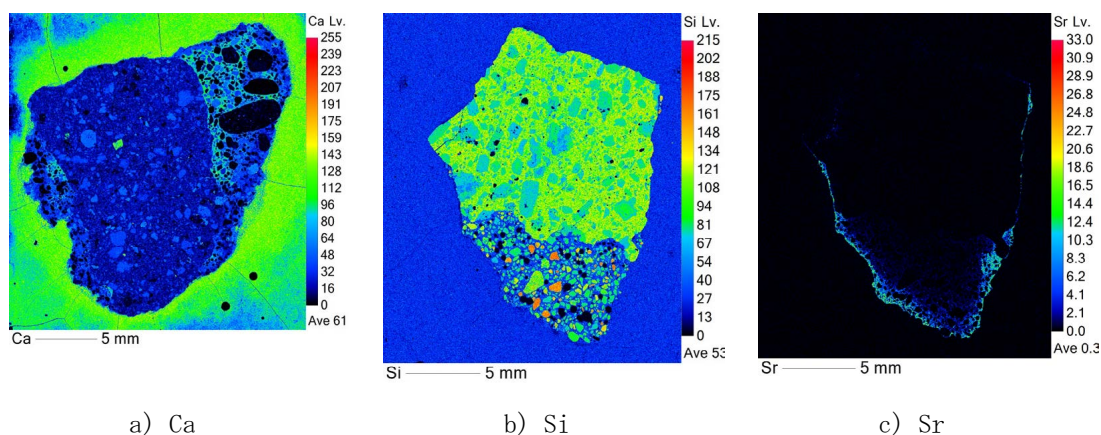


図 3.3-6  $\text{Sr } 10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  浸漬期間：1 週間 吸水率：6.6%

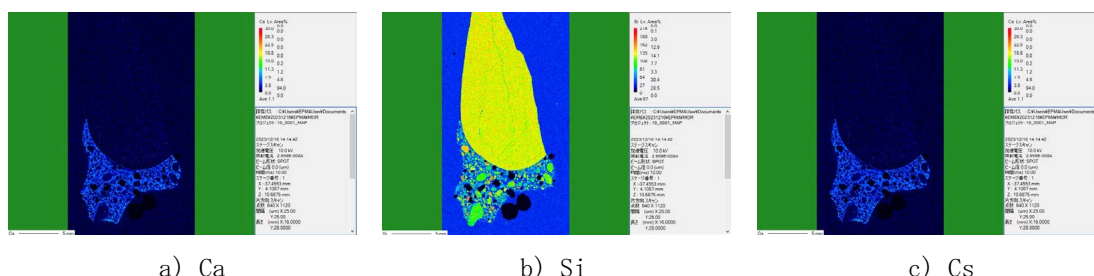


図 3.3-7  $\text{Cs } 10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  浸漬期間：1 週間 吸水率：7.0%

ここでは、EPMA で測定した特性 X 線の強度から、核種イオンの再生骨材内部への浸透深さを算出した。面分析したデータについて 4 方向の測定線を引き、線上で測定した特性 X 線の強度から核種イオンの浸透深さを算出した。測定した特性 X 線強度の最大値を、上記の手法で EPMA の測定結果から算出した浸透深さで除した値を用いて、近似的に拡散を評価した。再生骨材の吸水率および浸漬条件とともに算出した結果を表 3.3-3 に示す。ここでは、 $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の核種イオンを含む水溶液に浸漬させた再生骨材について検討する。 $10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の核種イオンを含む水溶液に浸漬させた再生骨材で測定された特性 X 線強度は、バックグラウンド相当の 2 cps 以下であることを確認した。

表 3.3-3 より、得られた最大強度を浸透深さで除した値は、どの浸漬条件においても吸水率が低いものの方が大きくなる傾向があった。 $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の Sr を含む水溶液に 1 週間浸漬させた再生骨材では、吸水率によって値が大きく変化しなかった。その原因として、吸水率が大きいほど、最大強度も浸透深さも大きいことが挙げられる。それに対して、 $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の Sr を含む水溶液に 2 か月浸漬させた再生骨材では、吸水率が低いほど最大強度を浸透深さで除した値が大きくなる傾向が強かった。最大強度が吸水率にあまり依存せず、20 cps 前後にもかかわらず、浸透深さは吸水率によって大きくなったことが要因の一つだと考えられる。Sr よりも拡散性の高い Cs では、Sr よりもその傾向が顕著であり、測定される最大強度は吸水率によらず高く、浸透深さは吸水率が大きいほど大きくなった。 $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の Sr を含む水溶液に 2 か月浸漬させた再生骨材は、1 週間浸漬させた再生骨材に比べ、浸透するのに十分な時間があつたと考えられる。

表 3.3-3  $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の核種イオン濃度に対する再生骨材中の拡散評価

	吸水率 %	最大強度 cps	浸透深さ $\mu\text{m}$	最大強度/浸透深さ
Sr $10^{-1}$ 週間	2.1	14.3	732.7	19.56
	4.0	17.5	917.1	19.08
	6.6	19.8	1041.3	18.97
Sr $10^{-1}$ 2か月	2.2	18.5	1520.7	12.17
	4.1	20.9	2807.3	7.43
	7.1	20.8	2675.7	7.76
Cs $10^{-1}$ 週間	2.2	8.3	2010.2	4.10
	4.1	14.8	2285.5	6.45
	7.0	14.0	3534.2	3.96
Cs $10^{-1}$ 2か月	1.9	11.8	3227.9	3.67
	4.0	14.8	5041.4	2.93
	6.6	16.5	6332.7	2.61

上記の結果から吸水率が小さい再生骨材では、吸水率の高い再生骨材に比べて、Sr が浸透しやすいモルタル部分が少ないために、少ないモルタル部分に浸透できるだけの Sr が浸透し、吸水率の高低にかかわらず、最大強度は 20 cps 前後の同等の値が得られたと推察された。さらに、浸漬期間が 2 か月を超えて、長ければ長くなるほど Sr が浸透しやすいモルタル部分全体に、より多くの Sr が浸透していくことが予想される。

Sr の浸透挙動について、図 3.3-8 および図 3.3-9 に示すように、 $10^{-1} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  の  $\text{SrCl}_2$  水溶液に 1 週間浸漬させた吸水率 6.6% の再生骨材 B を埋設した供試体について、断面での LIBS による元素分析を行った。再生骨材と周囲を被覆したセメントペーストの界面を横断する方向に、右端の測定開始点から 43  $\mu\text{m}$  間隔で 60 点（計 2,537  $\mu\text{m}$  間）について、Ca、Si、Sr の 3 元素の質量パーセント濃度を測定した結果を示す。図 3.3-8 は、測定開始点からの 3 元素の質量パーセント濃度のプロファイルである。図 3.3-9 は、LIBS による元素分析の測定位置を表している。図 3.3-8 より、再生骨材表面（図中縦線に示す）付近に Sr が多く含まれ、再生骨材内部に向かって徐々に濃度が低下し、35 点目（測定開始点から 1,462  $\mu\text{m}$ ）以降濃度勾配が消失し、Sr が浸透している深さが確認できる。図 3.3-8 中の Si の変化と Sr の変化に着目すると、Si の質量パーセント濃度の上昇に伴って、Sr の濃度は低下していることが確認できる。既往の研究[24]より、放射性核種の骨材中への浸透や骨材との界面における浸透はほとんど見られず、モルタル部分への浸透のみを考慮することが有意とされているが、同様のことが LIBS を用いた測定結果からも確認できる。

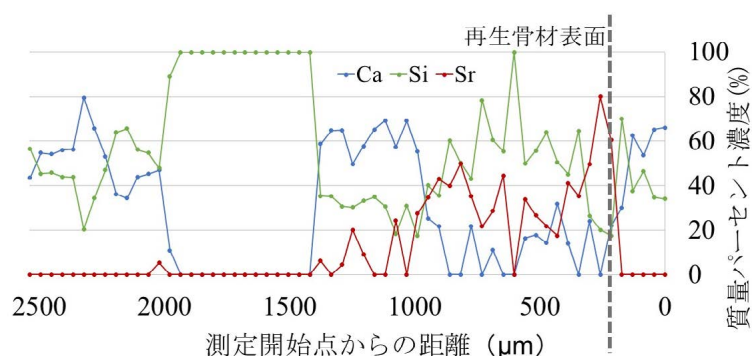


図 3.3-8 LIBS 測定結果（3 元素の質量パーセント濃度）



図 3.3-9 LIBS 測定位置

## (4) まとめ

模擬汚染骨材をイオン交換水に浸漬することで核種イオンの溶出挙動を確認した。また、模擬汚染骨材内部の元素分析を LIBS および EPMA を用いて行った。その結果、汚染を模擬する濃度が高いほど、核種イオンの浸水暴露環境への溶出量は多くなることがわかった。一方で、被覆したセメントペーストへの核種イオンの移行は確認されなかった。

## 3.4 廃棄体の性状評価

## 3.4.1 模擬廃棄体（セメント微粉）調製・特性評価（再委託先：電力中央研究所）

## (1) 概要

モルタル・コンクリート供試体を作製し、北海道大学に送付した。また、作製したコンクリート供試体を用いて骨材分離時に生じるセメント微粉模擬試料を調製した。あわせて、XRD および核磁気共鳴分光法（以下、「NMR」と略す。）等を用いてセメント微粉模擬試料の微細構造を把握した。また、セメント微粉模擬試料を用いてセメント種や配合を変化させたセメント系材料と固型化することで模擬廃棄体を作製した。XRD や NMR 等を用いて廃棄体の強度、水和率、C-S-H の微細構造および元素マッピングを取得し、配合および材料種と力学あるいは化学特性を関連づけた。調製した微粉模擬試料の XRD および NMR の結果より、微粉模擬試料は未反応セメント鉱物、セメント反応生成物ならびに骨材で構成されていることを確認した。微粉模擬試料を用いて作製した模擬廃棄体では、XRD や NMR の結果より、セメント水和率は微粉の含有率の増加に伴い高くなることが示された。模擬廃棄体の一軸圧縮強度試験では微粉の含有率の上昇に伴い強度が低下した。また、元素マッピングおよび反射電子像測定からは、粉体における微粉の割合の上昇に伴い空隙量が増加する傾向が示された。この空隙量の増加が強度低下の一因であると考えられる。

## (2) 方法

## ① コンクリートおよび模擬微粉の作製および性状評価

## 1) モルタル・コンクリートおよび模擬微粉の作製

コンクリートの作製は、丸山らによる 1F のモデルコンクリートの配合[22]、JIS A 1138:2018 試験室におけるコンクリートの作り方を参考にし、表 3.4-1 に示す材料、表 3.4-2 の配合を用いて約 60 L 練り混ぜた。モルタルは、表 3.4-3 に示す配合のとおり、コンクリート作製時に用いた水、セメントならびに細骨材の比率と一致するように配合を決定し、約 11 L 練り混ぜた。モルタルは、20 mm×20 mm×80 mm、40 mm×40 mm×160 mm、φ 28 mm×57 mm の型枠、コンクリートは、φ 100 mm×200 mm、40 mm×40 mm×160 mm の型枠に打設し、20 °C で 28 日間封緘養生した。脱型したモルタルは、3.1.3 項に記述した水銀ポロシメーター、ナノインデンテーションの測定に供した。また、作製したモルタル・コンクリート試料の一部は、脱型後 40 mm 程度に粗砕し、北海道大学に送付した。



表 3.4-1 コンクリートの作製に用いた材料

材料名	記号	種類	メーカー/採取地
練り混ぜ水	w	上水道水	千葉県我孫子市
セメント	c	普通ポルトランドセメント	株式会社太平洋コンサルタント
細骨材	S	山砂	有限会社丸和建材
粗骨材	G	石灰石碎石	住友大阪セメント株式会社
空気連行剤	A	マスターエア 303 A	ポゾリスソリューションズ株式会社

表 3.4-2 コンクリートの配合

w/c (%)	使用量 (kg)				
	w	c	S	G	A (100 倍希釈)
55	9.78	17.7	49.5	59.9	0.59

表 3.4-3 モルタルの配合

w/c (%)	使用量 (kg)			
	w	c	S	A (100 倍希釈)
55	3.26	5.92	16.5	0.012

模擬微粉の作製においては骨材分離方法の中から加熱すりもみ法[25]を選定し、骨材分離時に生じる微粉を採取した。加熱およびすりもみに関する実験条件は、島ら[25]の先行研究を参考に加熱温度・時間および粉碎時間を設定した。 $\phi 100 \text{ mm} \times 200 \text{ mm}$ の型枠に打設したコンクリートを、脱型後ジョークラッシャーで 3.2 cm の目開きのふるいを通過するまで粗砕を行った。粗砕後のコンクリート塊は、300 °C に設定した乾燥炉内で 3 時間加熱を行い徐冷した後、容積 3 L のポットミルの中に約 1 kg のコンクリート塊および 19.55 mm のステンレス球を投入し、シャフト回転数が 247.1 rpm のポットミル機を用いて 30 分間回転させた。得られた模擬微粉は、微細構造の把握を目的として XRD および NMR の測定を行った。

## 2) コンクリートおよび模擬微粉の物性評価

### (a) XRD

XRD の測定には、株式会社リガク製の Smartlab を用いた。測定ターゲット  $\text{CuK}\alpha$ 、管電圧、管電流をそれぞれ 45 kV、50 mA、走査範囲は  $5\text{--}70^\circ (2\theta)$ 、ステップ幅を  $0.01^\circ$  とした。また、XRD の測定に用いた試料には内部標準としてコランダム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、Baikalo 0.3CR) を内割で 10% 添加した。Rietveld 解析による結晶相の定量[26]は、SmartLab studio II を用いた。先行研究[27]に従い、得られたコランダムの量比と各化合物比から非晶質量ならびに非晶質量により補正した各化合物量の算出を行った。

## (b) NMR

NMR の測定には、日本電子株式会社製の ECZ-500R を用いた。磁場強度 11.7 T、測定対象核は  $^{29}\text{Si}$  とし、3.2 mm の MAS プローブを使用し、フリップ角  $90^\circ$ 、パルス幅 1.6  $\mu\text{s}$ 、積算回数 1,600 回、待ち時間は 40 秒、回転周波数は 12 kHz とした。得られたスペクトルから Delta Version5 を用いてデコンボリューションを行った。以下、 $^{29}\text{Si}$  を測定対象とし、固体条件でマジックアングルスピン法を用いた NMR 測定を  $^{29}\text{Si}$  MAS NMR とする。

## ② 模擬廃棄体の作製および性状評価

## 1) 模擬廃棄体の作製

セメント微粉模擬試料を用いてセメント種や配合を変化させたセメント系材料と固型化することで模擬廃棄体を作製し、配合による特性を把握するために模擬廃棄体の力学試験および微細構造の測定を実施した。

模擬廃棄体の作製には、表 3.4-4 の材料を用い、表 3.4-5 の配合に水粉体比が一定になるように調製した。ハンドミキサーで練り混ぜた後、 $\phi 50 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$  のモールド缶および口内径  $\times$  胴径  $\times$  高さが 24.3 mm  $\times$  26.6 mm  $\times$  56 mm のポリプロピレン製容器に打設した。20  $^\circ\text{C}$  に設定した環境で 7 日間封緘養生を行った試料を脱型し、一軸圧縮強度試験、XRD、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR の測定に用いた。

## 2) 模擬廃棄体の性状評価

## (a) 一軸圧縮強度試験、XRD、NMR 測定

一軸圧縮強度試験には、株式会社前川製作所製の多機能型全自動耐圧試験機 ACA-F1-200、XRD、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR の測定には、模擬微粉の測定と同じ装置を用い、同条件にて測定を行った。

模擬廃棄体に関しては、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR スペクトルのデコンボリューションから得られた Q0、Q1、Q2 の面積比率から式(3.4-1)を用いて水和率を算出した。ただし、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR の測定において得られるのは Si のみであるため、式(3.4-1)で得られる水和反応率はセメントの未水和鉱物のうち  $\text{C}_3\text{S}$  ( $3\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$ ) および  $\text{C}_2\text{S}$  ( $2\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$ ) のみの反応率である。

$$\alpha = Q_0 / (Q_0 + Q_1 + Q_2) \times 100 \quad \cdots \text{式(3.4-1)}$$

ここで、

$\alpha$  : 水和反応率、 $Q_n$  : 酸素原子を介して n 個の Si 原子と隣接している Si 原子である。

XRD/Rietveld 解析で得られた各化合物量からの水和率の算出は、先行研究[27]にしたがって算出した。ただし、水和率の算出にあたっては、模擬廃棄体中の鉱物が全て未水和セメント鉱物あるいはセメント生成物であるという仮定を置いているが、実際には上述のとおり、細骨材や骨材由来の鉱物が含有されているため、Rietveld 解析で得られた水和率は参考値として示す。

## (b) 走査電子顕微鏡

SEM 測定には株式会社日立ハイテクサイエンス製の TM4000 を用い、エネルギー分散 X 線分光測定（以下、「EDS」と略す。）はオックスフォード・インストゥルメンツ株式会社製の AztecOne を用いた。SEM 測定用のサンプルとしては、脱型後に破碎した試料を 3 日間 D-dry し、エポキシ樹脂で包埋して表面研磨を行ったサンプルを用いた。研磨は粗研磨として耐水研磨紙を用いて行った後、ダイヤモンドペーストを用いて鏡面研磨を行った。加速電圧 15 keV、倍率 500 倍に設定し、反射電子像を一つの試料に対して 8 枚取得した。反射電子測定に加えて EDS を用いた元素マッピングを取得した。得られた各元素のマッピング結果より、Ca、Si、Al の元素を選定し、反射電子像の図上に上記の 3 元素のマッピング結果を合成した。また、後方散乱電子像 (Back Scattered Electron : BSE) から、輝度のヒストグラムから低輝度値を空隙として分離し [28]、空隙率の算出を行った。

表 3.4-4 模擬廃棄体の材料

材料名	記号	種類	メーカー/採取地
セメント	c	普通ポルトランドセメント	株式会社太平洋セメント
高炉スラグ	BFS	高炉スラグ微粉末 4000	株式会社デイ・シイ
水	w	超純水	
混和剤	-	マスターグレニウム 6550	ポゾリスソリューションズ株式会社

表 3.4-5 模擬廃棄体の配合

サンプル名	粉体 P (%)			w/P (%)	混和剤 (100 倍希釈)
	模擬微粉	c	BFS		
B9C1	90	10	0	65	(c+BFS) × 0.01
B7C3	70	30	0		
B5C5	50	50	0		
B5C2.5BFS2.5	50	25	25		

## (3) 結果および考察

## ① 模擬微粉の性状

$^{29}\text{Si}$  MAS NMR の測定には、模擬微粉の他に比較用として細骨材を用いた。得られたスペクトルを図 3.4-1 に示す。模擬微粉の  $^{29}\text{Si}$  MAS NMR スペクトルから、 $Q_0$ 、 $Q_1$ 、 $Q_2$ 、 $Q_3$ 、 $Q_4$  に帰属されるシグナルが確認された。健全なセメントペーストから得られるシグナルは、 $C_3S$ 、 $C_2S$  の由来の  $\text{SiO}_4$  である  $Q_0$ 、 $C-S-H$  由来の  $\text{SiO}_4$  である  $Q_1$ 、 $Q_2$  [3] [29] [30] で構成されることが報告されている。本研究で得られたセメント微粉は  $Q_0$ 、 $Q_1$ 、 $Q_2$  に加えて  $Q_3$ 、 $Q_4$  が認められた。一方で、再生細骨材の NMR スペクトルでは、 $Q_3$ 、 $Q_4$  シグナルが確認されたため、 $Q_3$ 、 $Q_4$  シグナルは細骨材由来であることが推察される。模擬微粉の NMR スペクトルをデコンボリューションした結果を図 3.4-2 に示す。未水和鉱物由来の  $Q_0$  が 20%、 $C-S-H$  由来の  $Q_1$ 、 $Q_2$  の和が 50.6%、細骨材由来の  $Q_3$ 、 $Q_4$  の和が 28.5%であった。 $\text{SiO}_2$  中の含有割合のみの情報ではあるが、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR の結果からは微粉は未水和セメント鉱物、 $C-S-H$  および骨材で構成されていることが推察された。

XRD/Rietveld 解析により得られた粗骨材、細骨材、模擬微粉の化合物組成を図 3.4-3 に示す。



粗骨材の鉱物組成においては、92.2%が calcite であり、非晶質は 5.5%であることが確認された。細骨材は quartz、albite が全体の 63.9%を占めており、非晶質は粗骨材に比べて高い 22.3%であった。模擬微粉においては細骨材、粗骨材に含有される化合物に加えてセメントの未水和鉱物である  $C_3S$ 、 $C_2S$ 、セメントの水和生成物である portlandite が含有されていることが確認され、さらに非晶質の割合は骨材に比べて 3 倍以上高い 67.7%であった。模擬微粉の非晶質量は細骨材、粗骨材に比べて高いことから、セメントの水和生成物である C-S-H 由来の非晶質が多く含まれていることが推察される。

模擬微粉は、セメントペースト由来の化合物が 71.5%であり、その他に細骨材由来の化合物が 20.3%、粗骨材由来の化合物が 8.2%であった。したがって、本実験で得られた微粉のうち 28.5%は骨材成分が含有されていることが考えられる。

また、粗骨材、細骨材に含有する非晶質の割合は単体で測定した場合と一致すると仮定し、模擬微粉中の非晶質を分配し、微粉の非晶質量は Rietveld 解析で得られた非晶質量から細骨材・粗骨材中の非晶質量を差し引いた量とした。粗骨材、細骨材由来の化合物およびそれぞれの非晶質の量を合計した数値を図 3.4-4 に示す。ただし、calcite はコンクリート作製時に使用したセメント中に少量混合成分として含有している可能性があり [31]、かつ微粉作製時の炭酸化により生成する [32] 可能性があるが、本仮定では、calcite は全て粗骨材で由来であるとした。

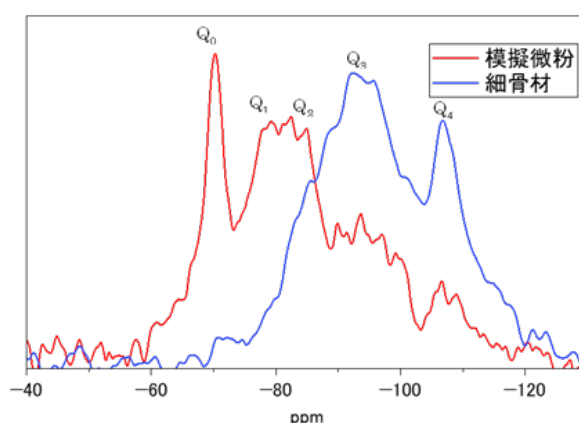


図 3.4-1 模擬微粉の  $^{29}\text{Si}$  MAS NMR スペクトル

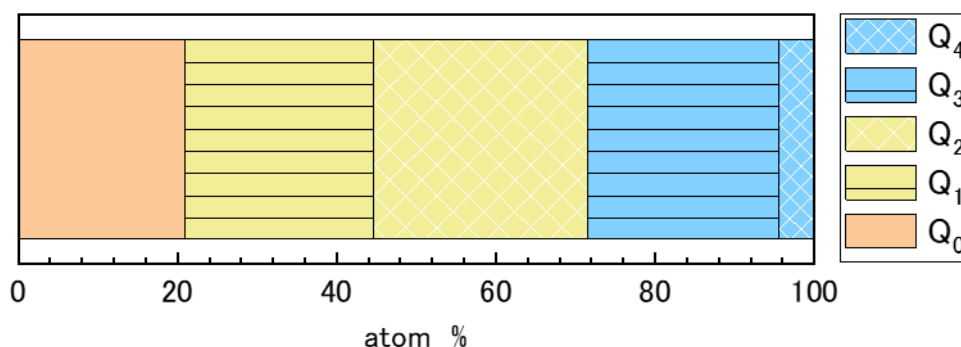


図 3.4-2 模擬微粉の  $^{29}\text{Si}$  MAS NMR スペクトルのデコンボリューション結果

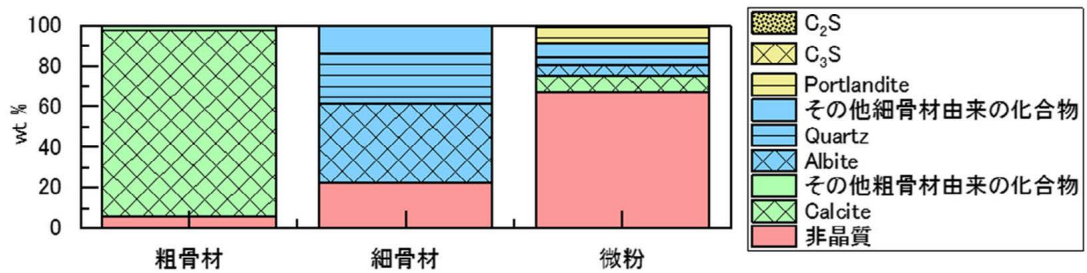


図 3.4-3 模擬微粉の XRD/Rietveld 解析結果

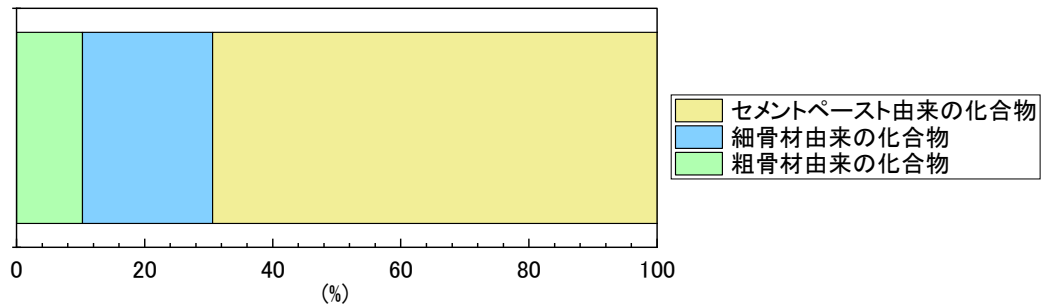


図 3.4-4 模擬微粉の XRD/Rietveld から得られた化合物の比率

## ② 模擬廃棄体の性状

一軸圧縮強度試験の結果を図 3.4-5 に示す。本実験では、表 3.4-5 に示すように水粉体比を統一している。水粉体比を一定にした場合、全粉体における模擬微粉の重量比率（以下、「微粉の含有率」と略す。）が減少するにつれて一軸圧縮強度が増加することが示された。その一方で、セメントに対する高炉スラグの置換率（以下、「高炉スラグ置換率」と略す。）は、微粉の含有率に比べて強度への影響度が小さいことが確認された。B9C1、B7C3、B5C5 の微粉の含有率と一軸圧縮強度の関係を図 3.4-6 に示す。微粉の含有率と一軸圧縮強度の関係は、線形であり微粉の含有率の増加に伴い強度が低下したことが確認された。

微粉の含有率の増加が一軸圧縮強度の低下に与えた影響を把握するため、XRD、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR、SEM/EDS の測定を行った。XRD、 $^{29}\text{Si}$  MAS NMR の関係からは水和率を取得、SEM/EDS の結果からは空隙率の取得を目的とし、化学・物理的特性の把握を試みた。

図 3.4-7 に微粉の含有率とセメントの水和率の関係を示す。前述のとおり、XRD から得られた水和率は、微粉に混和した骨材量の影響を無視しているため、参考値として示している。

$^{29}\text{Si}$  MAS NMR で得られたセメントの水和率は、微粉の含有率に伴い水和率は高くなる傾向にあった。図 3.4-6 に示す微粉の含有率と強度の増加の関係について水和率の観点から考察すると、セメント硬化体の強度は水和率と正の相関があることが報告されている。一方、本研究で得られた結果では、微粉の含有率の減少に伴い強度は増加しているものの水和率は減少している。したがって微粉の含有率の減少に伴い強度が増加する要因が水和率であるとは考えにくい。

図 3.4-8 に SEM/EDS で得られた反射電子像、元素マッピング、反射電子像の輝度から空隙部分を分離し、空隙の位置を示した図を示す。元素マッピング結果より、同一粒子内に Si あるいは Al の濃度が高い箇所と Ca の濃度が高い箇所が混在していることが確認された。Si の濃度が高い粒子は細骨材であると推察され、Ca 濃度が高い部分はセメント微粉由来の粒子であることが考えられる。したがって模擬微粉中内には、細骨材にセメントペーストが付着した状態で存在していることが確認された。図 3.4-9 に反射電子像の輝度値から空隙を分離し、空隙率を算出した結果を示す。微粉の含有率の増大とともに空隙率が増加していることが示された。セメント硬化体の一軸圧縮強度において、空隙率と一軸圧縮強度は負の相関があることが報告されているが[33]、模擬廃棄体においても図 3.4-10 に示すように空隙率と一軸圧縮強度は負の相関を示している。以上より、微粉の含有率の増加に伴い一軸圧縮強度が減少した一因に空隙率の増加があることが推察された。

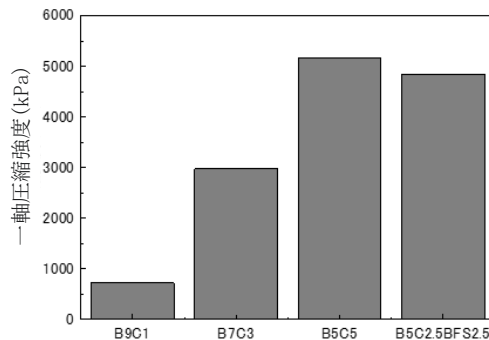


図 3.4-5 模擬廃棄体の一軸圧縮強度

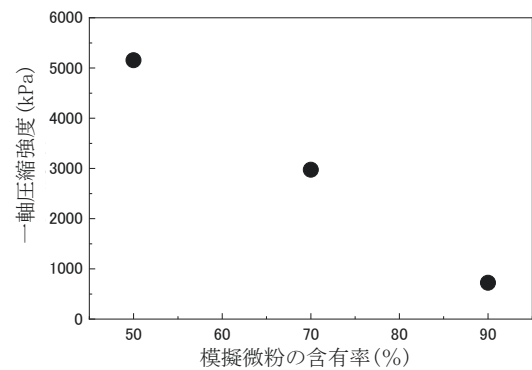


図 3.4-6 模擬廃棄体の微粉の含有率と一軸圧縮強度の関係

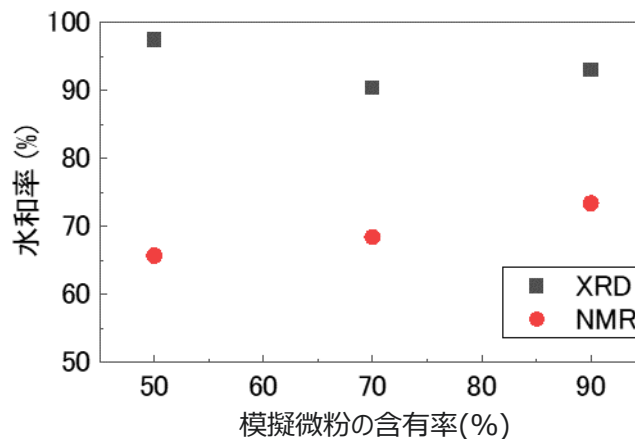


図 3.4-7  $^{29}\text{Si}$  MAS NMR、XRD/Rietveld 解析による模擬廃棄体の水和率と微粉含有率の関係

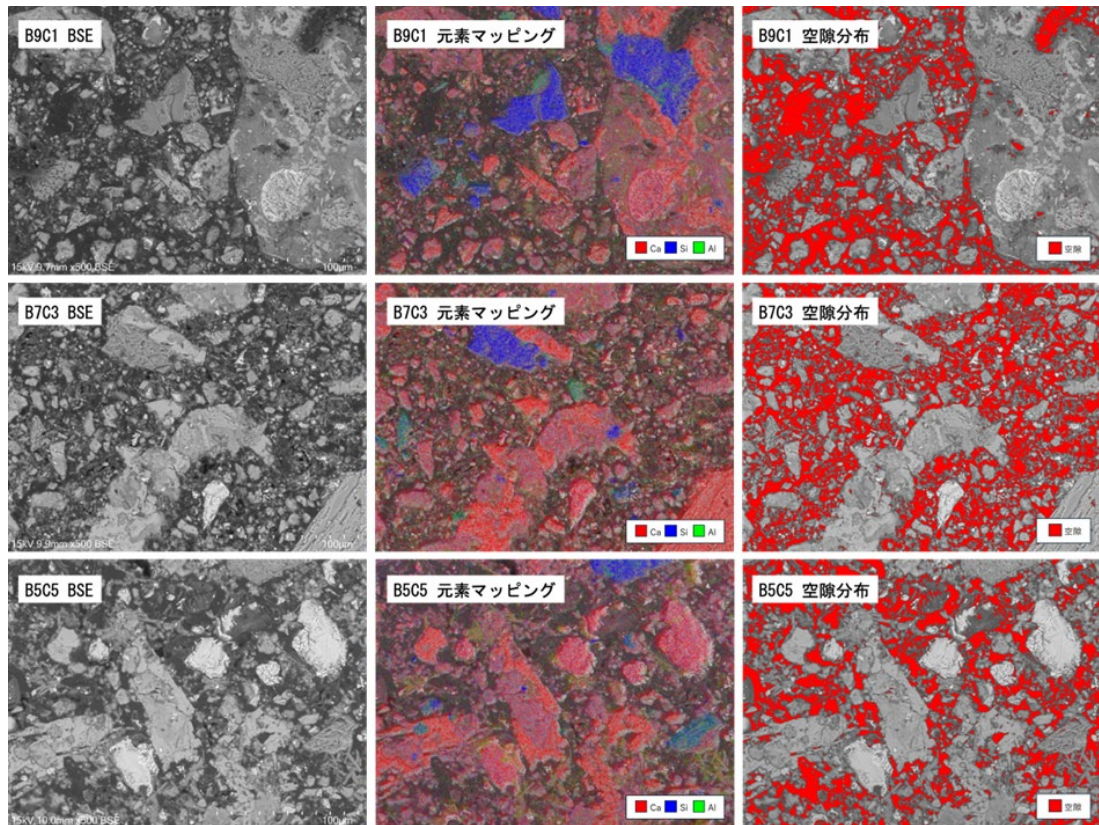


図 3.4-8 模擬廃棄体断面の反射電子像、元素マッピング、空隙マッピング

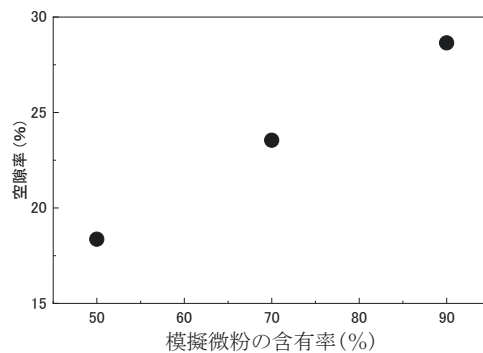


図 3.4-9 模擬廃棄体断面の空隙率と微粉の含有率の関係

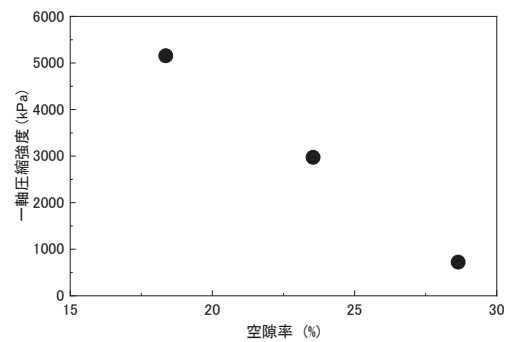


図 3.4-10 模擬廃棄体断面の空隙率と一軸圧縮強度の関係

### 3.4.2 セメント固化体からの U 浸出実験（連携先：JAEA）

#### (1) 概要

セメント固化体に接した地下水等は強アルカリ性を示す。セメント固化体から浸出する U の化学状態を明らかにするため、強アルカリ性溶離液を用いたクロマトグラフィーによる U 分析の有効性を検討した。また、単純な化学形態の U 化合物を調製し、基礎データとしてクロマトグラムを取得した。



## (2) 試料および方法

## ① U を含有したセメントおよび C-S-H 平衡水の調製

セメント平衡水、C-S-H の平衡水を調製した。セメントは研究用ポルトランドセメント G を使用し、C-S-H は Ca/Si 比が 1.0 と 1.4 のものを使用した（電力中央研究所から提供された）。各 5 g に対して超純水 50 mL を混合し、2 日以上チューブローターで混合した。この際、予備実験により 2 日以上経過後にセメント中の Ca、Na 等の液相への溶出はほぼ平衡となることを確認している。その後、遠心分離器により 2,000 rpm で固相と液相を分離し、上澄みを取って 0.2  $\mu\text{m}$  のシリンジフィルターでろ過して平衡水とした。

硝酸系の U 含有溶液を調製した。U を 10 ppm 含む 2%硝酸系の U 標準液（西進商事株式会社 XSTC-3325、共存陽イオンとして K、Li、Na、Rb を 1 ppm 含む）を PTFE ビーカーに 100 mL (U 1 mg) 入れ、時計皿で蓋をし、ホットプレートを用いて蒸発乾固した。その後、超純水を 4 mL 加えて溶解し、NaOH 水溶液を加えて pH5.18 の希硝酸溶液（U 濃度：208.3 ppm）とした。

9 mL のセメント平衡水、C-S-H 平衡水に調製した U 含有水溶液をそれぞれ 1 mL 加え、U を含有したセメント平衡水等（U 濃度：20.8 ppm）を調製した。また、比較評価用に U 含有水溶液を混合していないセメント平衡水等をそれぞれ準備した。

## ② クロマトグラムの取得

U を添加しない平衡水試料（コントロール）および U を添加した平衡水試料の両方を 7,000 rpm で 5 分間遠心分離したところ、コントロール試料には沈殿物は認められなかったが、U 添加試料では黄色の物質が沈殿していた。正しくは沈殿ではなく、底に集まって漂っている感じであった。コントロール試料と U 添加試料の上澄み液を新しい遠沈管に移した。この液をマイクロシリンジに分取し、高速液体クロマトグラフィー装置 (HPLC) のマニュアルインジェクターに注入した。U を添加しないコントロール試料についても同様に遠心分離を行って得た上澄み液を分析した。

分離カラムとして、Asahipak GS-320HQ (Shodex、分画分子量 300-20,000) をガードカラム Asahipak GS-2G 7B (Shodex) とともに用いた。溶離液は pH12 ( $0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ ) の KOH 水溶液である。セメント平衡水等の pH が 12 前後であり、pH 変化による U の化学状態の変化を避けるため、この pH の溶離液を用いた。このカラムに試料 100  $\mu\text{L}$  を注入し、カラムを通過した溶離液を誘導結合プラズマ質量分析装置（以下、「ICP-MS」と略す。）にオンラインで導入し溶離液中の元素を定量分析した（実際には、カラムを通過した液はオンラインで UV-Vis 吸光光度計に導入され、それを通過した溶離液が ICP-MS に入る）。カラムの上限圧力は 5 MPa であり、これを越えさせないため流速を  $0.55 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$  とした。溶離液の pH が高いので、カラムを通過した溶離液を希硝酸水溶液とオンラインで混合して ICP-MS に導入した。ICP-MS のネブライザー出口での pH は約 1~2 程度であった。

上述の方法で試料を分析した後、カラムに吸着した U 等を脱離させるため、5 mM EDTA 2Na と 5 mM クエン酸の混合水溶液（脱離液）を 5 回カラムに注入した。EDTA とクエン酸には UV 吸収があるので、UV-Vis 吸光光度計でモニタしながら 5 回目の脱離液の紫外吸収が十分減衰することを確認して次の試料の分析を行った。

比較のため、U の炭酸錯体を以下の方法で調製し、同様に分析した。U の標準液（西進商事株式会社、U 10 ppm、Li、Na、K、Rb 各 1 ppm）30  $\mu\text{L}$  を遠沈管に分取し、そこに 0.01 M KOH 水溶液 30  $\mu\text{L}$  を入れピペットで混合し、これを全量炭酸ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ) の 10%水溶液 9 mL に添加した。この水溶液の pH は約 12 であり、U 濃度は約 30 ppb ( $1.2 \times 10^{-6} \text{ M}$ ) である。

## (3) 結果および考察

U の炭酸錯体の分析結果を図 3.4-11 (A) に示す。U は 12 分頃から一つのピークとして現れた。ピーク時間は約 15 分である。図 3.4-11 (B) は、U 炭酸錯体を分析した後に脱離液を 5 回カラムに注入した結果を示す。図 3.4-11 (B) の縦軸は図 3.4-11 (A) と同じとした。同じスケールでは図 3.4-11 (B) に U はほとんど確認できず、U の炭酸錯体以外の U 化学種がほとんどないことがわかる。図 3.4-11 (C) は脱離液注入結果の縦軸を拡大したものである。U のピークが 5 個 (13 分、21 分、27 分、33 分、39 分頃) 現れ、最初の 2 個のピーク強度が他 3 個よりも高く、3～5 個目のピーク強度が類似している。3～5 個目のピークは脱離液に含まれていた U であり、1～2 個目のピークには U 炭酸錯体水溶液からカラムに吸着した U と脱離液の U が含まれると考えられる。したがって U 炭酸錯体水溶液の化学種は、厳密には一種類ではない可能性がある。Geochemist's Workbench にて pH12 の KOH 水溶液中での  $1.2 \times 10^{-6}$  M U の化学種を計算すると、溶存種の 99.9997 mol% が  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  となる。分析結果と計算結果は概ね一致する。

図 3.4-12～図 3.4-17 には、U を添加した C-S-H 平衡水とセメント平衡水、添加前の平衡水を分析した結果として C-S-H とセメントの主要元素である Ca と Si および U のクロマトグラムを示す。左列は平衡水注入、右列は脱離液注入によるクロマトグラムであり、U を添加していない C-S-H 平衡水とセメント平衡水に U が検出された (図 3.4-13、図 3.4-15、図 3.4-17)。C-S-H とセメントの原材料に微量含まれていた U が検出されたと考えている。どの試料のクロマトグラムでも、U は約 15 分にピークが現れた。この時間は、U 炭酸錯体の溶出時間と同じである。U の溶出時間の近くに Ca と Si が現れる場合があるが、現れない場合もある。今後別の方法で確かめる必要があるが、U とこれらの元素に関係はない可能性が高い。U のクロマトグラムについては、平衡水注入と脱離液注入の縦軸スケールを一致させている。U を添加した C-S-H 平衡水とセメント平衡水のいずれも、脱離液注入によって U のピークが現れるが、平衡水の U に比べて非常に小さい。これらの結果から、U を添加した全ての平衡水試料の U のほとんどは炭酸錯体である可能性が高い。

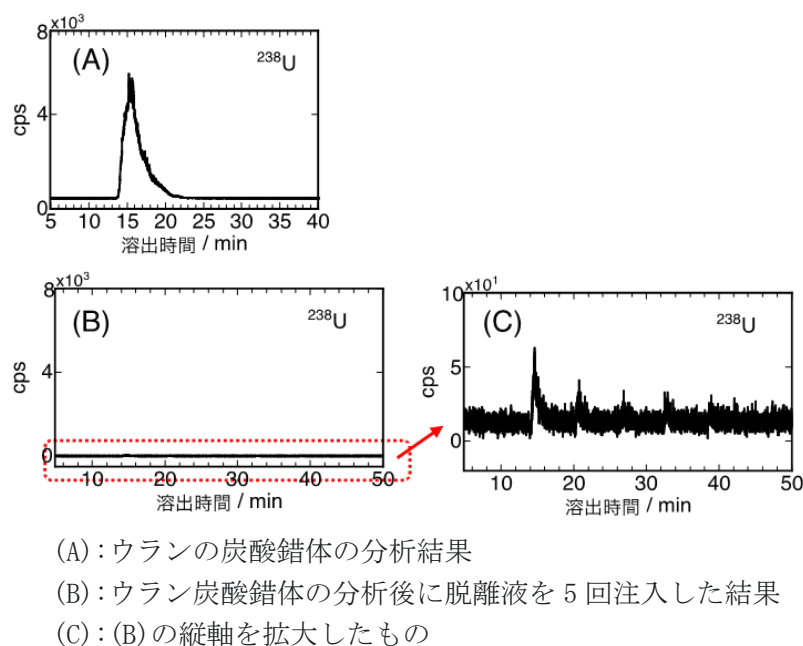
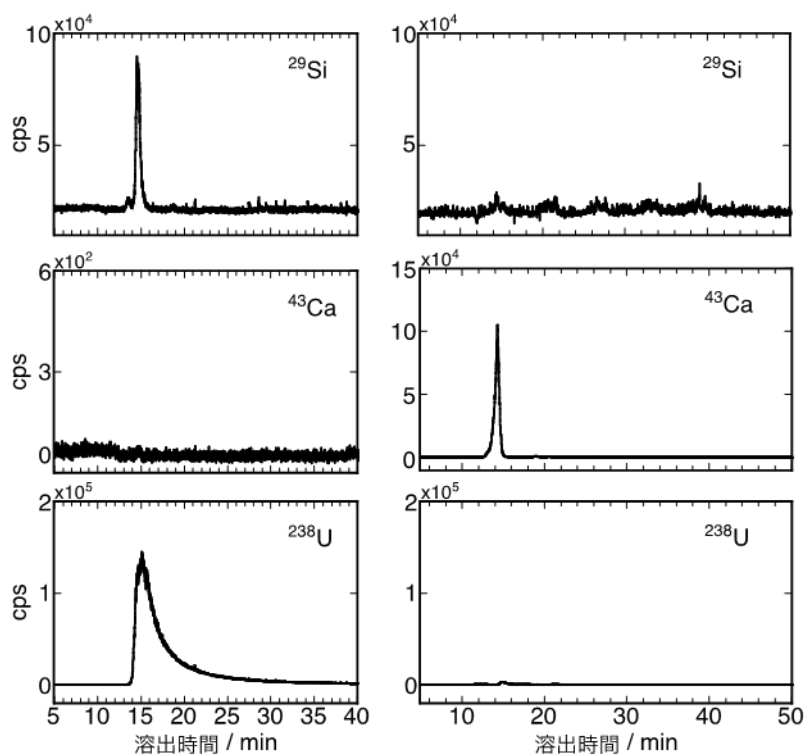
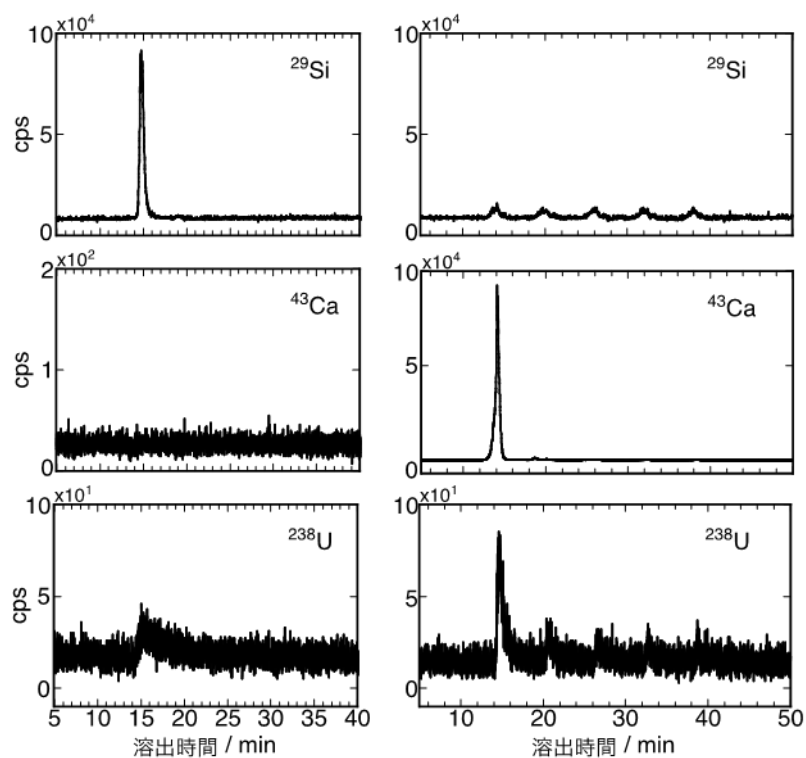


図 3.4-11 ウランの炭酸錯体を用いたクロマトグラム



(左列は平衡水注入、右列は脱離液注入)

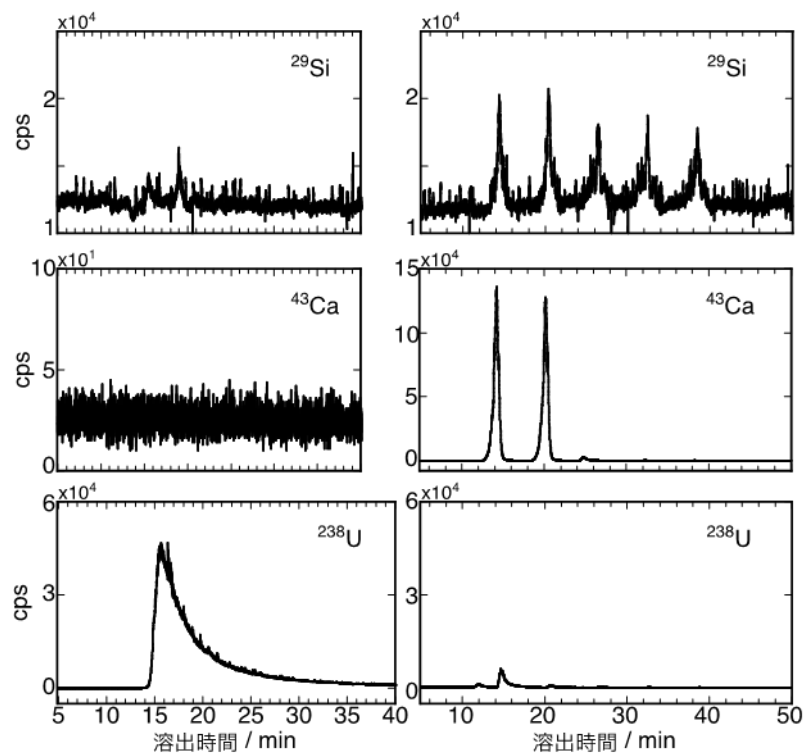
図 3.4-12 6 価ウラン水溶液を添加した C-S-H (Ca/Si=1.0) 平衡水と脱離液のクロマトグラム



(左列は平衡水注入、右列は脱離液注入)

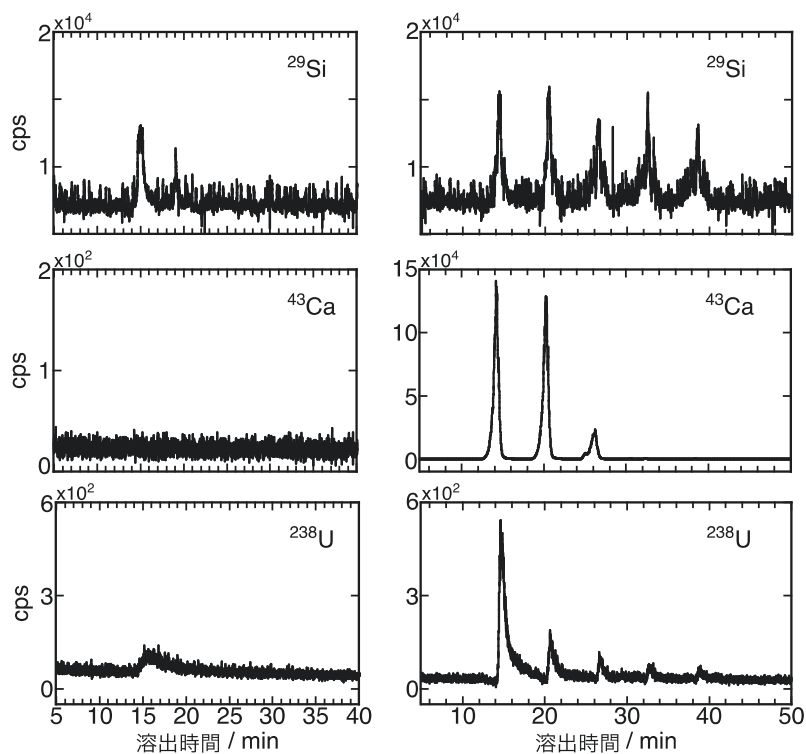
図 3.4-13 C-S-H (Ca/Si=1.0) 平衡水と脱離液のクロマトグラム (ウラン添加無し)





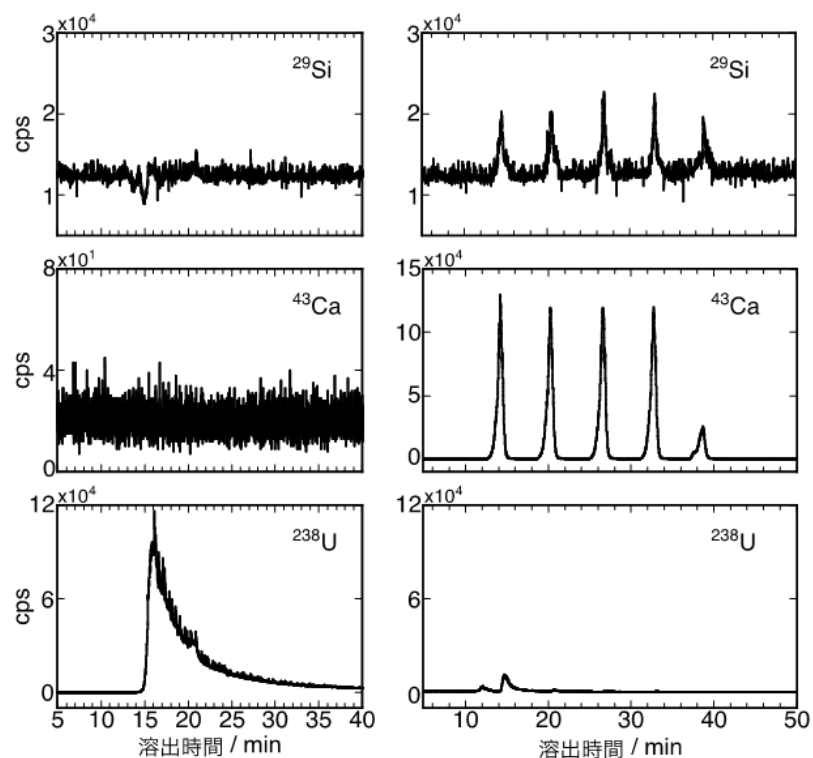
(左列は平衡水注入、右列は脱離液注入)

図 3.4-14 6 価ウラン水溶液を添加した C-S-H (Ca/Si=1.4) 平衡水と脱離液のクロマトグラム



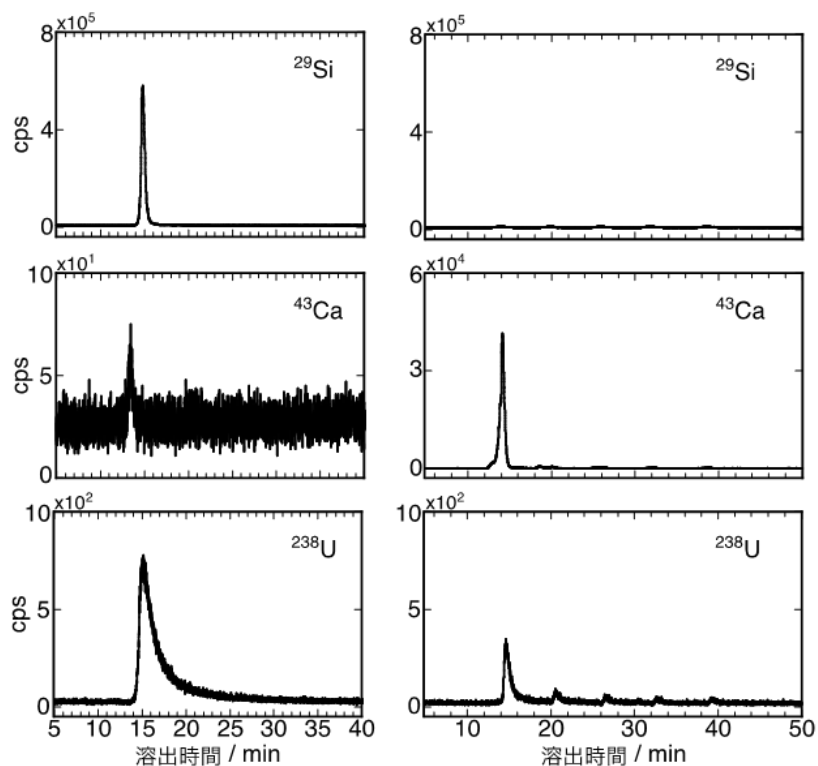
(左列は平衡水注入、右列は脱離液注入)

図 3.4-15 C-S-H(Ca/Si=1.4) 平衡水と脱離液のクロマトグラム (ウラン添加無し)



(左列は平衡水注入、右列は脱離液注入)

図 3.4-16 6 価ウラン水溶液を添加したセメント平衡水と脱離液のクロマトグラム



(左列は平衡水注入、右列は脱離液注入)

図 3.4-17 セメント平衡水と脱離液のクロマトグラム (ウラン添加無し)

### 3.4.3 セメント固化体からの FP 核種の浸出実験

#### (1) 概要

令和 5 年度は、セメント固化体からの  $^{137}\text{Cs}$  の浸出挙動を明らかにするため、電力中央研究所から提供されたコンクリート供試体の骨材分離により得たセメントペースト粒子・粉末試料に微量の  $^{137}\text{Cs}$  を添加して模擬セメント固化体を調製した。浸出試験は、作製したセメント固化体試料を所定の組成の溶液に浸漬することで行った。まず、骨材分離により得たセメントペースト粒子・粉末を含めず、 $^{137}\text{Cs}$  を混練した HCP 試料を粉砕してイオン交換水に浸漬し  $^{137}\text{Cs}$  の浸出試験を行って、実験手法を確立した。その後、核種の再分配挙動を明らかにすることを目的として、核種の溶出挙動を調べる他、浸漬後の試料中の核種濃度分布を求める浸出試験に着手した。

#### (2) 試料および方法

##### ① 模擬セメント固化体の調製

模擬セメント固化体試料は、3.4.1 項(2)にて述べる手順で、電力中央研究所で調製された模擬微粉を用いて調製した。研究用ポルトランドセメントと微粉は質量比 1 : 1 とし、水粉体比は 65% (表 3.4-5 の B5C5 から混和剤を除いた配合) とした。 $^{137}\text{CsCl}$  (Eckert & Ziegler 製、製品コード 6137) は所定量のイオン交換水を用いて希釈し、固化体試料中の濃度が  $\sim 20 \text{ kBq} \cdot \text{g}^{-1}$  となるよう添加した。

模擬微粉入りのセメント試料は、ジップロックに 2 重に入れて練り混ぜ、30 分ごとに材料分離が生じなくなるまで混練し、マイクロチューブに打設し、25 °C で 7 日間、封緘養生した。試料の状態を確認するため、 $^{137}\text{Cs}$  を含まない模擬セメント固化体を同様の方法でフィルムケースに打設した。

浸出試験用模擬セメント固化体試料は、脱型した試料をエポキシ樹脂に含浸した後に、1 面だけが露出するようダイヤモンドカッターで切断した。調製した試料は、ラップ 1 枚を介してイメージングプレート (IP ; BAS IP MS 2025E、富士フイルム株式会社製) 上に固定し、所定時間経過後、試料を取り除いた IP をイメージングプレート読み取り装置 (FLA-7000、GE Healthcare) にかけて、 $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度分布を確認した。この試料を用いて浸出試験に着手した。

##### ② HCP 試料からの $^{137}\text{Cs}$ 浸出試験

$^{137}\text{Cs}$  浸出試験手法を確立するため、模擬微粉を含めず、 $^{137}\text{Cs}$  を添加した HCP 試料を用いて浸出実験を行った。HCP 試料は、w/c を 0.35 とし、HCP 試料中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が約  $5.0 \times 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$  となるよう  $^{137}\text{CsCl}$  を添加したイオン交換水を研究用ポルトランドセメントに加え、2 重のジップロックの中で、手で混練して調製した。 $^{137}\text{Cs}$  を混練したセメント試料は、ジップロックのまま 50 °C で 28 日間水中養生した後、48 時間真空乾燥し、全量が 300  $\mu\text{m}$  のふるいを通るようメノウ乳鉢で粉砕した。浸出試験は、固相を  $^{137}\text{Cs}$  混練した HCP 粉末、液相をイオン交換水、固液比を 1:100 とし、25 °C の恒温槽中に設置した振とう器 (タイテック株式会社製、NR-30) 上で実施した。試料は所定の浸出期間 (1、3、14 日) 後、3,600 rpm で 15 分間遠心分離をし、上澄み液を 0.45  $\mu\text{m}$  シリンジフィルターでろ過をした。ろ液 2 mL を栄研チューブに入れ、NaI シンチレーションカウンター (アロカ株式会社製、ARC-7001) により  $^{137}\text{Cs}$  の放射能を測定した。

## (3) 結果

## ① 模擬セメント固化体の調製

微粉を含む模擬セメント固化体は、通常の HCP 試料よりも脆く、型の上部は白っぽく脆く、下部は色が濃く硬い固化体となった。図 3. 4-18 に模擬セメント固化体を粉末にしたものの SEM (JCM-7000 NeoScope、日本電子株式会社製) 画像を模擬微粉の画像とともに示す。図 3. 4-19 に  $^{137}\text{Cs}$  を添加して調製した模擬セメント固化体の切断面の画像と、対応する IP 画像を示す。IP 画像は黒色の濃い部分で  $^{137}\text{Cs}$  の濃度が高く、 $^{137}\text{Cs}$  が濃集していると見られる点が散在するが、試料の部位による偏りは見られず、浸漬後の試料中の核種濃度分布を求めることが可能であると考えられた。この試料を用いて、浸出試験に着手した。

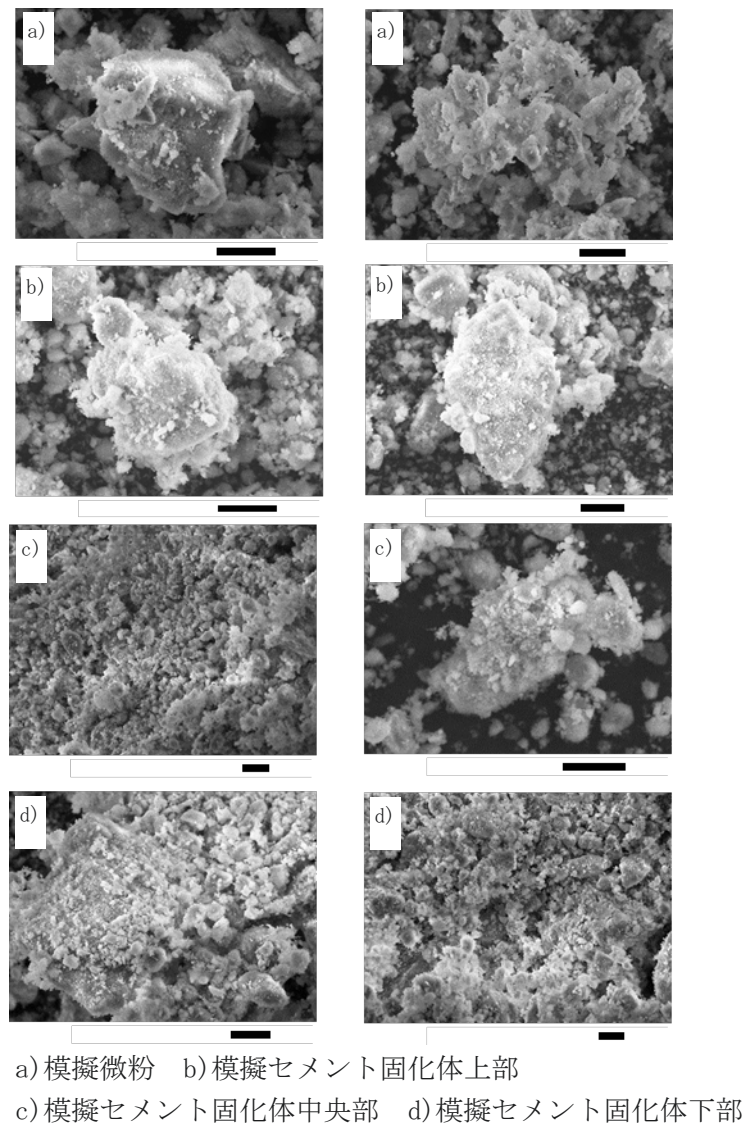
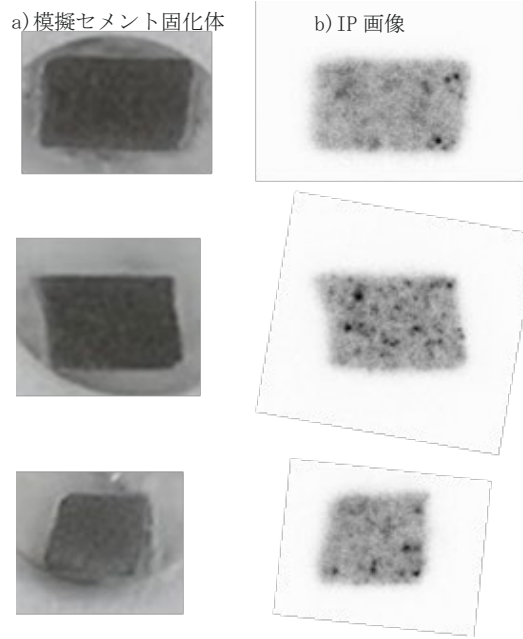


図 3. 4-18 模擬微粉および模擬セメント固化体の SEM 画像



a) 模擬セメント固化体切断面画像 b) 対応する IP 画像

図 3.4-19 模擬セメント固化体の切断面と IP 画像

## ② HCP 試料からの $^{137}\text{Cs}$ 浸出試験

図 3.4-20 に  $^{137}\text{Cs}$  を添加した HCP 試料からの  $^{137}\text{Cs}$  の浸出試験結果を示す。 $^{137}\text{Cs}$  は 1 日で添加した量の約 8 割が浸出し、その後 14 日間で固相の濃度に大きな変化はなかった。この試験では液相にイオン交換水を用いており、セメント平衡水を用いる場合よりも浸出速度が高いものと考えられる。14 日での浸出の際の分配係数  $K_d$  は  $25.5 \pm 0.6 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$  となった。液相に Cs を添加して実施する HCP への収着分配係数は  $1.10 \times 10^{-3} \sim 1.0 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$  と報告されており [34]、数桁高い結果となった。

このように、 $^{137}\text{Cs}$  を添加して調製した HCP を粉末として実施する浸出試験について、実験手法を確立した。模擬微粉を用いて  $^{137}\text{Cs}$  を添加した模擬セメント固化体を調製し、この手法を用いて、浸出試験に着手した。

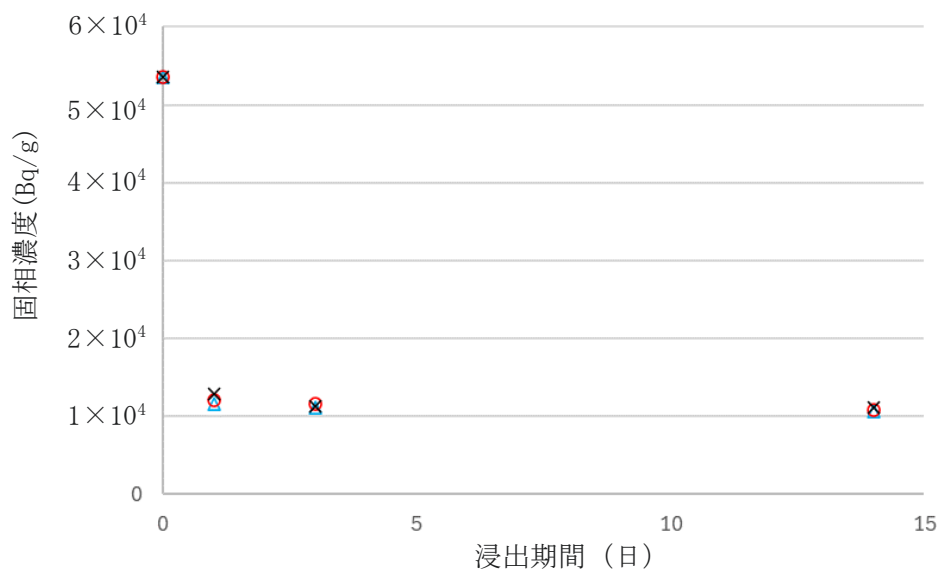


図 3.4-20 HCP 試料からの  $^{137}\text{Cs}$  の浸出挙動



### 3.5 再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価

#### 3.5.1 廃棄物管理シナリオの構築・評価

##### (1) 概要

令和5年度は、公開されている1Fの汚染状況および線量率にかかわる情報と事故炉の廃炉にかかわる文献等を調査・整理し、汚染状況および解体コンクリート廃棄物管理の観点から、1Fコンクリートを建屋ごと、格納容器内、地下部、地上部、放射化を考慮する必要がある領域などに分割した。また、原子炉施設における線量率の測定値から汚染の程度を推定し、放射化については事故による汚染核種とインベントリを比較・評価し、廃棄物管理シナリオ評価において考慮する必要がある核種を抽出した。

##### (2) 基本的な考え方

1Fサイトでは事故時の水素爆発により、施設全体が汚染している可能性があり、廃炉で発生する解体物を有効に利用するためには、汚染部分を除去することが必須となる。本研究では、コンクリート構造物の表面に付着した放射性核種の除去（除染）に加えて、表面から放射性核種が内部に浸透した場合も考慮し、構造物内部における汚染も除去したうえでの再利用の可能性に関する検討を実施する。

コンクリート構造物の解体・除染等で発生する解体物を対象とする廃棄物管理シナリオ評価の基本的な考え方を図3.5-1に、対象となるコンクリート構造物量を表3.5-1に示す。図3.5-1に示すように、前研究[1][2][3]で実施した安全性の評価、廃棄物量の推定に加えて、本研究では再資源化・再利用シナリオを構築する。再資源化・再利用を含めた合理的な処理・処分方法を検討するため、解体時の汚染コンクリートの特性把握（3.1節）、再資源化・再利用に向けた処理方法の検討（3.2節）、再資源化物の性状評価（3.3節）、廃棄体の性状評価（3.4節）などを進め、それらの情報を統合して廃棄物管理シナリオを検討・評価する。再資源化・再利用の形態としては、「除染による再利用」、「骨材分離後の骨材の再利用」の他、「分離後の鉄筋・鉄骨の再利用」などを考慮する。再資源化・再利用の方法としては、埋戻し材（場内・場外）、骨材利用による構造物の建設、鉄筋・鉄骨利用による金属製品の製造などが考えられる。

他方、1Fサイトには原子炉建屋、タービン建屋などの原子炉施設の他にも多種多様のコンクリート構造物が存在し、その用途や位置などの状況に応じて放射性核種の汚染の形態は異なる。原子炉施設を対象にすると、運転中におけるコンクリート構造物の放射化、燃料溶融による揮発性核種（Cs、I など）の燃料棒から施設内への拡散による汚染、汚染された水によるコンクリート構造物の内部への浸透などを考慮する必要がある。図3.5-2は原子炉施設を領域に分割し、汚染の形態を整理した結果である。これらの汚染形態を勘案し、除染方法や除染の程度、再資源化・再利用の形態などを選択する。

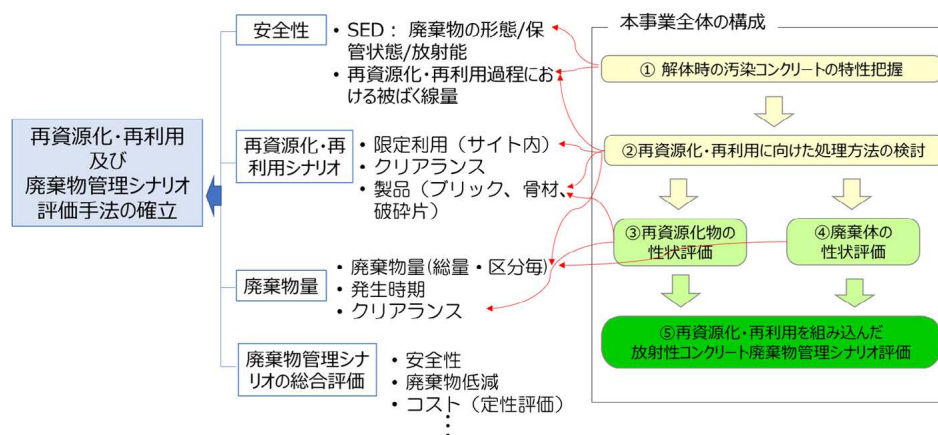


図 3.5-1 廃棄物管理シナリオ評価の基本的な考え方

表 3.5-1 コンクリート構造物量の推定[1][2][3]

1号機

トン

領域	コンクリート	鉄筋	合計
熱遮蔽	433	103	536
ペデスタル	464	35	499
生体遮蔽	5,549	128	5,677
燃料プール	301	75	376
原子炉建屋	36,555	4,292	40,847
タービン建屋	56,112	3,805	59,917
廃棄物建屋	12,621	685	13,306
制御建屋	11,613	1,290	12,903
合計	123,648	10,413	134,061

2, 3号機

トン

領域	コンクリート	鉄筋	合計
熱遮蔽	480	63	543
ペデスタル	419	60	479
生体遮蔽	4,352	190	4,542
燃料プール	202	83	285
原子炉建屋	56,552	6,190	62,742
タービン建屋	114,492	9,302	123,794
廃棄物建屋	19,173	2,090	21,263
制御建屋	6,342	618	6,960
合計	202,012	18,596	220,608

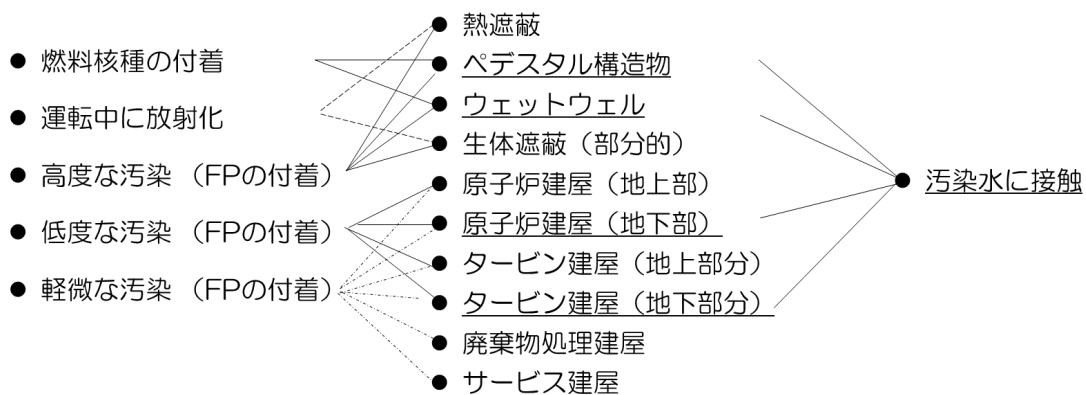


図 3.5-2 汚染特性に基づく領域区分



### (3) 汚染状況の整理

東京電力ホールディングス株式会社・福島第一廃炉推進カンパニーでは、毎年1号機から6号機まで、原子炉建屋、タービン建屋、廃棄物処理建屋、制御建屋の線量率を測定し公開している[35]。令和5年度には、令和4年4月1日～令和5年3月31日の測定結果が示されており、建屋内の汚染の程度を推測することができる。例えば、1F3号機における原子炉建屋では、地下1階、中地下1階、地上1～5階、タービン建屋では、地下1階、地上1、2階、廃棄物処理建屋では、地下1階、地上1～4階、サービス建屋（3、4号機）では、地下1階、中地下1階、地上1、2階における測定値が示されている。汚染機器内部からの寄与、領域の広さや構造物の幾何形状など、線量率に影響を与える線源の特性は異なり、最終的には線源の特定が必要になるが、公開情報からおおまかに汚染の程度を推定することが可能である。

領域ごとの線量率の概要を評価するため、各領域における測定値の平均を求めた（表3.5-2）。原子炉建屋1階、タービン建屋1階、廃棄物処理建屋1階、サービス建屋1階（3、4号機）の平均の線量率は、それぞれ  $12.2 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $0.28 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $0.15 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $0.0053 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$  であった。また、1号機から6号機の原子炉建屋1階の線量率の測定結果の分布を図3.5-3に示す。1号機から6号機の原子炉建屋1階における号機ごとの空間線量率の平均は、それぞれ  $2.65 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $3.25 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $12.15 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $0.01 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $0.03 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 $0.001 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$  であり、3号機の線量率が高い値を示していた。

コンクリート構造物を再資源化・再利用するためには、汚染領域の放射性核種を除去することとなるが、そのためには表面の汚染密度を推定することが必要となる。前述の空間線量率の線源の大部分を事故時に揮発性の放射性核種が移行して沈着した結果と想定し、空間線量率と汚染密度の関係を評価するため、測定点での線量率を特定した領域からの線源の寄与と仮定して、汚染密度と線量率との関係を線量率の計算プログラム（QAD-CGGP2）[36]を用いて計算した。この計算では、特定した領域の汚染は均一であると仮定し、床面積が  $25 \text{ m}^2$ （ $5 \text{ m}\times 5 \text{ m}$ ）、 $16 \text{ m}^2$ （ $4 \text{ m}\times 4 \text{ m}$ ）、 $9 \text{ m}^2$ （ $3 \text{ m}\times 3 \text{ m}$ ）、 $4 \text{ m}^2$ （ $2 \text{ m}\times 2 \text{ m}$ ）、 $1 \text{ m}^2$ （ $1 \text{ m}\times 1 \text{ m}$ ）の5ケースについて、床から1 mの高さにおける線量率を計算した。また、床から天井までの高さは5 mとし、壁面からの寄与を考慮する計算も行った（図3.5-4）。

この結果から、例えば、評価対象領域を  $25 \text{ m}^2$ 、天井までの高さを5 mとし、部屋の床・壁・天井が  $100 \text{ Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$  の密度で汚染されていた場合、床面からの放射線の寄与のみ場合は  $2.23 \text{ }\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ 、全方向からの放射線の寄与を考慮すると  $3.42 \text{ }\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$  となった。床および壁の面積を変えた場合の線量率の計算結果を図3.5-5に示す。

1F3号機・サービス建屋1階の線量率の平均は  $5.3 \text{ }\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$  であり（表3.5-2）、計算結果と比較すると、 $100 \text{ Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$  程度の汚染が予想される。例えば、1 cmの厚さで除染した場合の廃棄物の単位重量当たりの放射能は、コンクリートの密度を  $2.3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  程度とすると  $50 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  程度となり、L3廃棄物として処理・処分が必要になる。1F3号機原子炉建屋1階についても同様に検討すると、サービス建屋よりも約2千倍の放射能汚染になり、除染で発生する放射性廃棄物はL2廃棄物相当として考える必要がある。

表 3.5-2 1F3 号機建屋の線量率

	原子炉建屋 1 階	タービン建屋 1 階	廃棄物処理 建屋 1 階	サービス建屋 1 階
平均値 (標準偏差)	12.2 (17.2)	0.28 (0.35)	0.15 (0.10)	0.0053 (0.0022)
最大値	100	2.0	0.50	0.0070
最小値	1.0	0.010	0.010	0.0020
測定点数	44	38	46	4

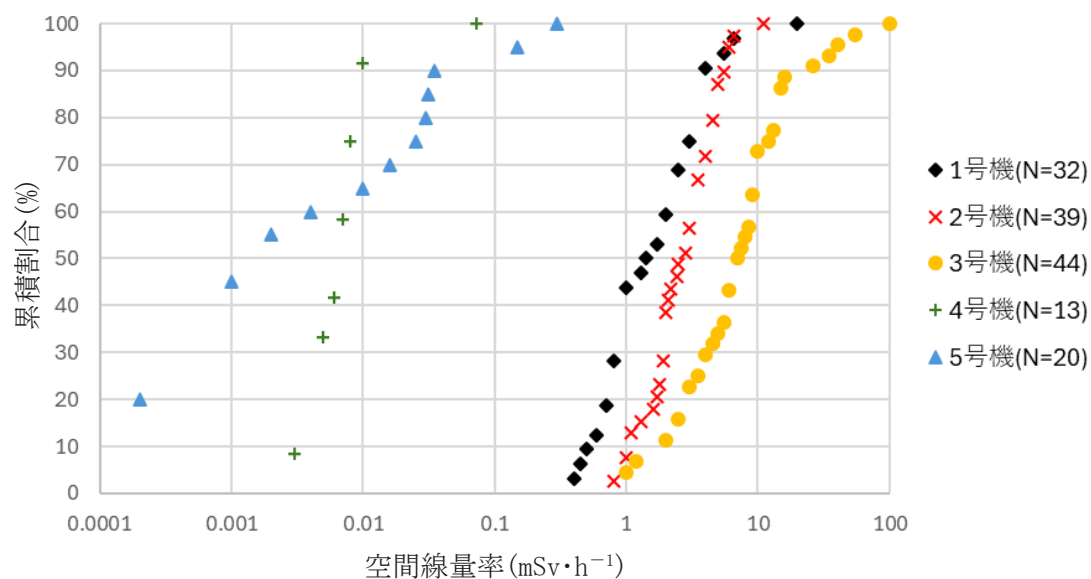
(mSv・h<sup>-1</sup>)

図 3.5-3 原子炉建屋 1 階の空間線量率測定値分布

6 号機は N=2 (いずれも 0.01 mSv・h<sup>-1</sup>) であったため、プロットしていない。

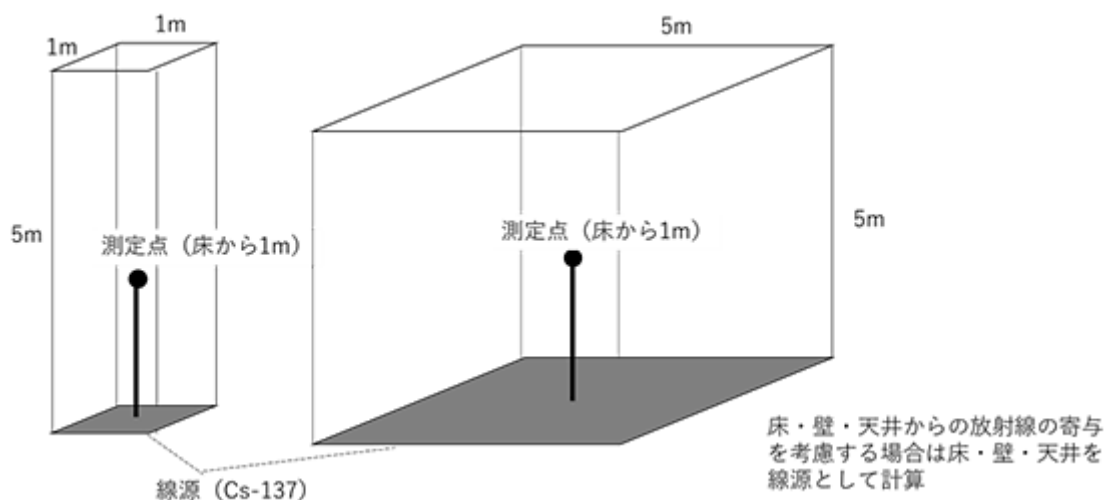


図 3.5-4 QAD-CGPP2 による線量率の計算体系

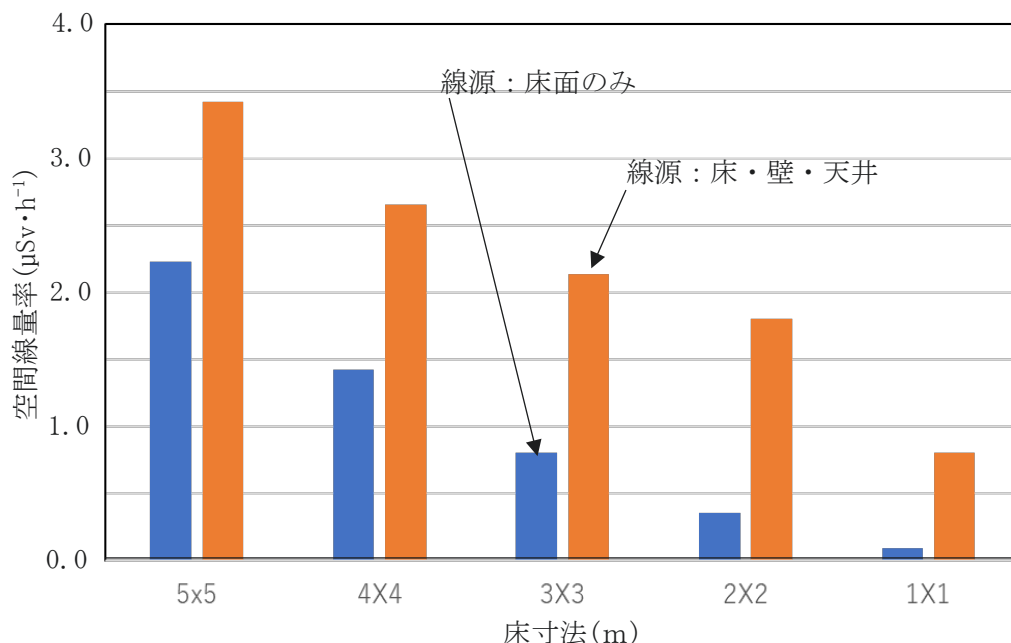


図 3.5-5 空間線量率の計算結果（汚染密度:100 Bq・cm<sup>-2</sup>）

#### (4) 放射化核種

NUREG/CR-3474[4]では、長寿命の放射化物に関する情報がまとめられている。アメリカにおける12の原子力発電所のコンクリート試料の親元素の組成の平均に基づいたBWR生体遮蔽コンクリートの放射化計算の結果（生体遮蔽の内側から10 cmの位置）から、日本のクリアランス基準となっている核種について抜粋したものを表3.5-3に示す。親元素としては54元素の濃度が入力データとなっているが、施設停止後10～50年の間ではD/C値の97%以上を<sup>60</sup>Co、<sup>152</sup>Eu、<sup>154</sup>Euが占めている。100年後には<sup>60</sup>Coの減衰により、<sup>14</sup>Cのような長半減期の核種の占める割合が大きくなった。

NUREG/CR-3474[4]に示されている個々の発電所のコンクリート（鉄筋を除く）の組成を用いて、簡易な体系で、Dort、Bugle96による中性子輸送計算、Origen-S/Scale5.1による放射化放射能計算により、D/C値の内訳を計算した結果を図3.5-6に示す。コンクリート中の最も濃度の高くなる位置内側から（6 cmほど）での、運転停止後50年度の計算結果である。D/Cを計算する際には、クリアランス基準にある33核種のうちの30核種を含めた。Enrico Fermiの計算結果を除くと、表3.5-3の結果と同様に<sup>60</sup>Co、<sup>152</sup>Eu、<sup>154</sup>EuでD/C値の9割以上を占めており、コンクリートのクリアランスの際にはこれらの核種が重要であることがわかる。特に、30～50年では<sup>152</sup>Euが大きな割合を占めているが、親元素であるEuはセメント、骨材の両方に1 mg・kg<sup>-1</sup>オーダーで含まれている場合が多く[4]、骨材とセメントを分離しても、両方に同程度含まれることになると考えられる。ただし、NUREG/CR-3474[4]の分析結果の中にはEu濃度の比較的高いフライアッシュのデータも含まれていた。

FRAnDLi[37]から原子炉建屋のコンクリート瓦礫中の放射性核種の濃度（基準日2011年3月11日）を表3.5-4にまとめる。運転停止直後の生体遮蔽コンクリート中の放射化放射能濃度（表3.5-3）と比較すると、原子炉建屋のコンクリート瓦礫の濃度は（表3.5-4）、<sup>129</sup>I、<sup>137</sup>Csについては最大値で8桁、最小値で<sup>129</sup>Iでは5桁、<sup>137</sup>Csでは1桁高くなってい

る。原子炉建屋における放射化放射能の寄与は、事故による汚染と比較すると全般的には桁違いに小さいが、事故による汚染の程度や構造物の種類、コンクリートの表面、中心部などの位置、セメント、骨材、鉄筋などの材料により分類して検討を進める必要がある。

表 3.5-3 コンクリート（鉄筋を除く）の放射化放射能濃度と核種ごとの D/C への寄与(1/2)

核種 (クリアランス 基準値(Bq/g))	濃度 (Bq/g) t=0 y	D/C (%) t=0 y	D/C (%) t=10 y	D/C (%) t=20 y
T-3 (100)	$3.2 \times 10^4$	$3.2 \times 10^2$ (1.0)	$1.8 \times 10^2$ (1.3)	$1.0 \times 10^2$ (1.5)
C-14 (1)	$1.1 \times 10^1$	$1.1 \times 10^1$ (-)	$1.1 \times 10^1$ (0.1)	$1.1 \times 10^1$ (0.2)
Cl-36 (1)	$5.9 \times 10^{-1}$	$5.9 \times 10^{-1}$ (-)	$5.9 \times 10^{-1}$ (-)	$5.9 \times 10^{-1}$ (-)
Ca-41 (100)	$7.4 \times 10^1$	$7.4 \times 10^{-1}$ (-)	$7.4 \times 10^{-1}$ (-)	$7.4 \times 10^{-1}$ (-)
Mn-54 (0.1)	$7.4 \times 10^1$	$7.4 \times 10^2$ (2.3)	$2.2 \times 10^{-1}$ (-)	$6.8 \times 10^{-5}$ (-)
Fe-55 (1000)	$1.8 \times 10^4$	$1.8 \times 10^1$ (0.1)	$1.4 \times 10^0$ (-)	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)
Ni-59 (100)	$1.0 \times 10^{-1}$	$1.0 \times 10^{-3}$ (-)	$1.0 \times 10^{-3}$ (-)	$1.0 \times 10^{-3}$ (-)
Co-60 (0.1)	$1.3 \times 10^3$	$1.3 \times 10^4$ (39.4)	$3.5 \times 10^3$ (25.2)	$9.3 \times 10^2$ (13.4)
Ni-63 (100)	$1.3 \times 10^1$	$1.3 \times 10^{-1}$ (-)	$1.2 \times 10^{-1}$ (-)	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)
Zn-65 (0.1)	$9.3 \times 10^1$	$9.3 \times 10^2$ (2.8)	$2.9 \times 10^{-2}$ (-)	$8.9 \times 10^{-7}$ (-)
Sr-90 (1)	$2.7 \times 10^{-1}$	$2.7 \times 10^{-1}$ (-)	$2.2 \times 10^{-1}$ (-)	$1.7 \times 10^{-1}$ (-)
Nb-94 (0.1)	$1.7 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-1}$ (-)	$1.7 \times 10^{-1}$ (-)	$1.7 \times 10^{-1}$ (-)
Tc-99 (1)	$4.1 \times 10^{-4}$	$4.1 \times 10^{-4}$ (-)	$4.1 \times 10^{-4}$ (-)	$4.1 \times 10^{-4}$ (-)
Ag-108m (0.1)	$1.2 \times 10^{-2}$	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)
I-129 (0.01)	$8.5 \times 10^{-8}$	$8.5 \times 10^{-6}$ (-)	$8.5 \times 10^{-6}$ (-)	$8.5 \times 10^{-6}$ (-)
Ba-133 (0.1)	$7.8 \times 10^0$	$7.8 \times 10^1$ (0.2)	$4.0 \times 10^1$ (0.3)	$2.1 \times 10^1$ (0.3)
Cs-134 (0.1)	$6.3 \times 10^1$	$6.3 \times 10^2$ (1.9)	$2.2 \times 10^1$ (0.2)	$7.6 \times 10^{-1}$ (-)
Cs-137 (0.1)	$3.0 \times 10^{-1}$	$3.0 \times 10^0$ (-)	$2.4 \times 10^0$ (-)	$1.9 \times 10^0$ (-)
Eu-152 (0.1)	$1.6 \times 10^3$	$1.6 \times 10^4$ (47.3)	$9.3 \times 10^3$ (67.5)	$5.6 \times 10^3$ (79.9)
Eu-154 (0.1)	$1.7 \times 10^2$	$1.7 \times 10^3$ (5.1)	$7.4 \times 10^2$ (5.4)	$3.3 \times 10^2$ (4.7)
Pu-239 (0.1)	$4.8 \times 10^{-2}$	$4.8 \times 10^{-1}$ (-)	$4.8 \times 10^{-1}$ (-)	$4.8 \times 10^{-1}$ (-)
D/C 合計		$3.3 \times 10^4$ (100.0)	$1.4 \times 10^4$ (100.0)	$7.0 \times 10^3$ (100.0)

[4]をもとに作成

表 3.5-3 コンクリート（鉄筋を除く）の放射化放射能濃度と核種ごとの D/C への寄与(2/2)

核種 (クリアランス 基準値(Bq/g))	D/C (%) t=30 y	D/C (%) t=50 y	D/C (%) t=100 y
T-3 (100)	$5.9 \times 10^1$ (1.5)	$1.9 \times 10^1$ (1.5)	$1.1 \times 10^0$ (1.1)
C-14 (1)	$1.1 \times 10^1$ (0.3)	$1.1 \times 10^1$ (0.8)	$1.1 \times 10^1$ (9.8)
Cl-36 (1)	$5.9 \times 10^{-1}$ (-)	$5.9 \times 10^{-1}$ (-)	$5.9 \times 10^{-1}$ (0.5)
Ca-41 (100)	$7.4 \times 10^{-1}$ (-)	$7.4 \times 10^{-1}$ (0.1)	$7.4 \times 10^{-1}$ (0.7)
Mn-54 (0.1)	$2.1 \times 10^8$ (-)	$1.9 \times 10^{-15}$ (-)	$4.9 \times 10^{-33}$ (-)
Fe-55 (1000)	$9.1 \times 10^{-3}$ (-)	$5.7 \times 10^{-5}$ (-)	$1.8 \times 10^{-10}$ (-)
Ni-59 (100)	$1.0 \times 10^{-3}$ (-)	$1.0 \times 10^{-3}$ (-)	$1.0 \times 10^{-3}$ (-)
Co-60 (0.1)	$2.5 \times 10^2$ (6.5)	$1.8 \times 10^1$ (1.4)	$2.5 \times 10^{-2}$ (-)
Ni-63 (100)	$1.0 \times 10^{-1}$ (-)	$8.9 \times 10^{-2}$ (-)	$6.3 \times 10^{-2}$ (0.1)
Zn-65 (0.1)	$2.7 \times 10^{-11}$ (-)	$2.6 \times 10^{-20}$ (-)	$7.5 \times 10^{-43}$ (-)
Sr-90 (1)	$1.3 \times 10^{-1}$ (-)	$8.2 \times 10^{-2}$ (-)	$2.5 \times 10^{-2}$ (-)
Nb-94 (0.1)	$1.7 \times 10^{-1}$ (-)	$1.7 \times 10^{-1}$ (-)	$1.7 \times 10^{-1}$ (0.2)
Tc-99 (1)	$4.1 \times 10^{-4}$ (-)	$4.1 \times 10^{-4}$ (-)	$4.1 \times 10^{-4}$ (-)
Ag-108m (0.1)	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)	$1.1 \times 10^{-1}$ (-)	$9.7 \times 10^{-2}$ (0.1)
I-129 (0.01)	$8.5 \times 10^{-6}$ (-)	$8.5 \times 10^{-6}$ (-)	$8.5 \times 10^{-6}$ (-)
Ba-133 (0.1)	$1.1 \times 10^1$ (0.3)	$2.9 \times 10^0$ (0.2)	$1.1 \times 10^{-1}$ (0.1)
Cs-134 (0.1)	$2.7 \times 10^{-2}$ (-)	$3.2 \times 10^{-5}$ (-)	$1.7 \times 10^{-12}$ (-)
Cs-137 (0.1)	$1.5 \times 10^0$ (-)	$9.4 \times 10^{-1}$ (0.1)	$3.0 \times 10^{-1}$ (0.3)
Eu-152 (0.1)	$3.3 \times 10^3$ (87.4)	$1.2 \times 10^3$ (93.5)	$9.3 \times 10^1$ (86.2)
Eu-154 (0.1)	$1.5 \times 10^2$ (3.9)	$2.9 \times 10^1$ (2.3)	$5.2 \times 10^{-1}$ (0.5)
Pu-239 (0.1)	$4.8 \times 10^{-1}$ (-)	$4.8 \times 10^{-1}$ (-)	$4.8 \times 10^{-1}$ (0.4)
D/C 合計	$3.3 \times 10^4$ (100.0)	$1.3 \times 10^3$ (100.0)	$1.1 \times 10^2$ (100.0)

[4]をもとに作成

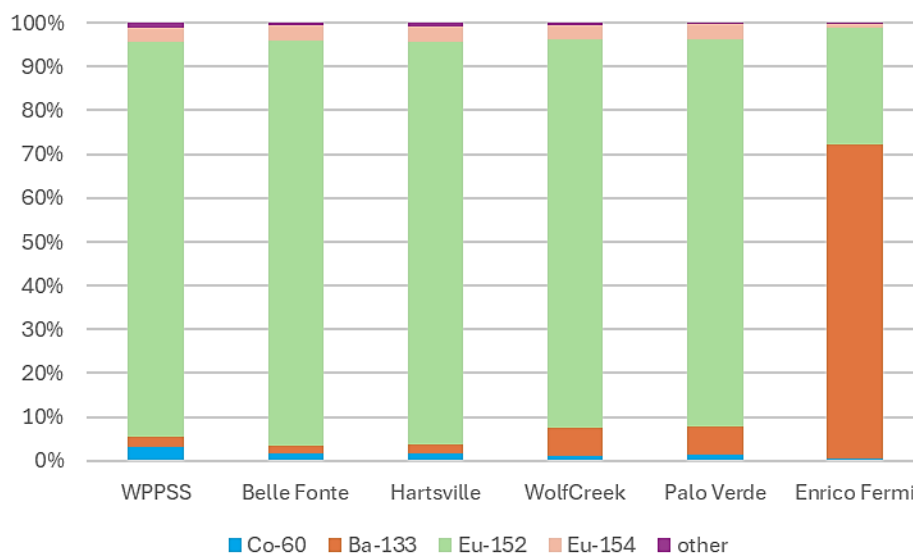


図 3.5-6 異なる親元素組成に基づく D/C 値計算結果の内訳

表 3.5-4 原子炉建屋コンクリート瓦礫中の放射性核種濃度

核種	最大値 (Bq・g <sup>-1</sup> )	最小値 (Bq・g <sup>-1</sup> )	データ数
H-3	$1.20 \times 10^2$	$3.30 \times 10^{-1}$	43
C-14	$3.70 \times 10^1$	$1.20 \times 10^{-1}$	36
Co-60	$1.60 \times 10^2$	$1.50 \times 10^{-1}$	38
Ni-63	$3.60 \times 10^1$	$9.00 \times 10^{-1}$	13
Se-79	$6.50 \times 10^0$	$7.00 \times 10^{-2}$	6
Sr-90	$4.50 \times 10^3$	$4.20 \times 10^{-3}$	53
Tc-99	$3.60 \times 10^1$	$5.30 \times 10^{-2}$	19
Sn-126	$2.70 \times 10^0$	$5.20 \times 10^{-1}$	5
Sb-125	$2.90 \times 10^3$	$9.20 \times 10^0$	8
I-129	$3.20 \times 10^0$	$3.10 \times 10^{-3}$	10
Cs-134	$5.60 \times 10^6$	$1.10 \times 10^4$	3
Cs-137	$1.50 \times 10^7$	$2.40 \times 10^0$	64
Eu-154	$2.10 \times 10^1$	$1.90 \times 10^0$	11
U-234	$2.80 \times 10^{-2}$	$6.50 \times 10^{-3}$	16
U-235	$8.60 \times 10^{-4}$	$4.20 \times 10^{-4}$	10
U-238	$2.00 \times 10^{-2}$	$1.50 \times 10^{-3}$	19
Pu-238	$3.80 \times 10^0$	$1.70 \times 10^{-3}$	27
Pu-239+240	$1.60 \times 10^0$	$1.00 \times 10^{-3}$	25
Am-241	$2.20 \times 10^0$	$1.10 \times 10^{-3}$	20
Cm-244	$2.30 \times 10^0$	$2.50 \times 10^{-3}$	18
全 $\alpha$	$1.30 \times 10^{-1}$	$4.00 \times 10^{-3}$	9

基準日 2011 年 3 月 11 日

[36]をもとに作成

### 3.5.2 再利用・再資源化量、廃棄物量の推計手法の構築（再委託先：福井大学）

#### （1）概要

廃棄物管理シナリオの合理化・最適化の検討においては、各々のシナリオにおいて発生する放射性廃棄物の物量や放射能濃度等の計算・分析が必要である。ここでは、核種濃度分布や骨材分離などの処理方法を考慮して、廃棄体発生量や再利用される骨材等の物量を算出するツールを開発し、各シナリオで発生する種々の廃棄物量を評価することを目的とし、汚染コンクリートの各々の処理において、物量や放射能インベントリの収支を計算するモデルを開発する。令和5年度は単一の汚染コンクリートを対象に、その核種濃度分布を考慮したうえで、想定される処理（表面研り、骨材／セメント分離）を施した際に発生する放射性廃棄物や再利用対象物の物量や核種濃度を算出するモデルを構築した。このモデルは、生成物のパラメータを原料のパラメータの線形結合式として表し、一連の処理体系を樹形図として表し、各々の処理を実施する原料の物量を指定することで、最終的に生成される廃棄物の物量を算出するものである。処理プロセスごとに原料のパラメータから生成物のパラメータを算出するモデルを構築し、個々のプロセスを連結することにより最終的に生成される廃棄物の物量を算出する計算コードを作成した。

#### （2）汚染コンクリートに施す処理とその物質収支のモデル化

図 3.5-7 に汚染されたコンクリートに施す処理の流れを例示する。ここに図示した処理は一例であり、その他の処理を検討する場合には、それらも追加してモデルに組み込めるように開発する。各々の処理の前後における物量および放射能インベントリに着目すると、一般には図 3.5-8 に示すような体系で、複数の生成物の重量や放射能インベントリが、複数の原料の重量等の情報に基づき計算する。このような個々の処理を連結させることで、図 3.5-7 のような廃棄物ストリーム全体の計算モデルを構築する。ここで想定した処理は、原料と生成物の数の観点で大きく 3 種類に分類できる。一つは単一の原料を複数の生成物に分離する処理である（研り、切断、分別、骨材／セメント分離など）。もう一つは、複数の原料を混合して単一の生成物にする処理が挙げられる（固化体の生成プロセスなど）。最後に単一の原料から単一の生成物を生む処理が、モデルの取り扱い上、挙げられる（コンクリート破碎、保管など）。

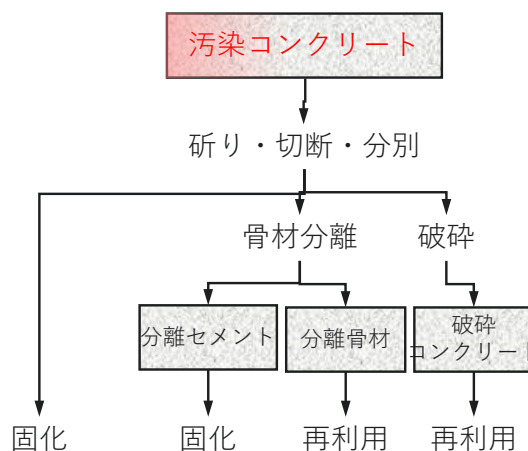


図 3.5-7 汚染コンクリートに施す種々の処理の流れ



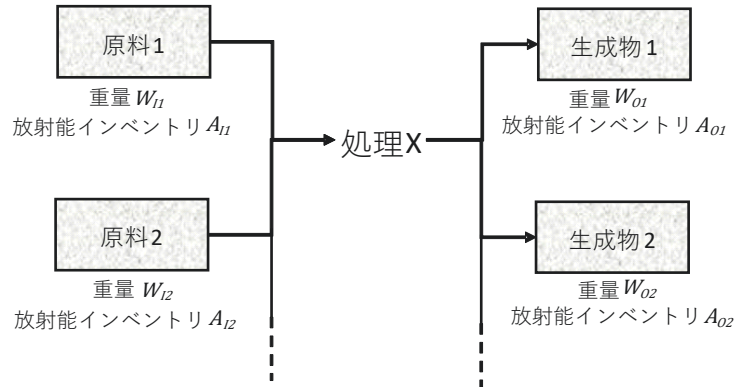


図 3.5-8 一つの処理の前後における物量と放射能インベントリの収支モデルの概要

#### ① 単一の原料を複数の生成物に分離する処理

斫り、切断、分別、骨材／セメント分離など、単一の原料（コンクリート）を複数種類の生成物に分離する処理については、その物質収支について以下のとおりモデル化できる。

原料の重量  $W_I$  [kg] や放射性核種インベントリ  $A_I$  [Bq] が与えられているものとする。生成物  $i$  の物量  $W_{Oi}$  [kg] や放射性核種インベントリ  $A_{Oi}$  [Bq] については、

$$W_{Oi} = k_i W_I, \quad A_{Oi} = f_i A_I, \quad i = 1, 2, \dots$$

として計算する。ここで、 $k_i$  は生成物全体に対する生成物  $i$  の重量割合を表し、

$$\sum_i k_i = 1, \quad 0 < k_i < 1$$

である。 $f_i$  は生成物全体に対する生成物  $i$  の放射性核種インベントリの割合を表し、

$$\sum_i f_i = 1, \quad 0 < f_i < 1$$

である。 $k_i$  と  $f_i$  は、処理とその対象となるコンクリートが定まるとそれらの情報に基づき決定することが可能であり、物質収支計算の前にあらかじめ設定する定数パラメータである。

また、生成物中の平均核種濃度  $C_{Oi}$  [Bq・kg<sup>-1</sup>] や体積  $V_{Oi}$  [m<sup>3</sup>] については、密度  $\rho_{Oi}$  [kg・m<sup>-3</sup>] を用いて、

$$C_{Oi} = \frac{A_{Oi}}{W_{Oi}}, \quad V_{Oi} = \frac{W_{Oi}}{\rho_{Oi}}$$

と計算できる。

#### ② 複数の原料を混合して単一の生成物にする処理

複数の原料を混合して単一の生成物にする処理については、以下のとおり物質収支をモデル化できる。主に、廃棄物とセメント粉末や水等を混合して廃棄体を作製する固化処理がこのモデル分類に属する。

複数種類の原料  $i$  の重量  $W_{Ii}$  [kg] や放射性核種インベントリ  $A_{Ii}$  [Bq] が与えられているものとする。単一の生成物の物量  $W_O$  [kg] や放射性核種インベントリ  $A_O$  [Bq] については、

$$W_O = \sum_i W_{Ii}, \quad A_O = \sum_i A_{Ii}, \quad i = 1, 2, \dots$$

として計算する。ただし、廃棄体作製等の処理においては、固化する廃棄物に対して固化材（或いは充填材）となるセメントや水の適切な混合比があらかじめ定められる。このような場合においては、各々の原料の混合割合  $k_i$  をあらかじめ設定したうえで、

$$W_{Ii} = \frac{k_i}{k_1} W_{I1}, \quad i = 2, 3, \dots$$

のように、原料 1 の重量に対するその他の原料の重量を決定する。ここで、

$$\sum_i k_i = 1, \quad 0 < k_i < 1$$

である。

### ③ 単一の原料から単一の生成物を生む処理

単一の原料から単一の生成物を生む処理については、原料と生成物の重量は等しい ( $W_o = W_I$ )。また、コンクリートを破砕する処理などにおいては、放射性核種インベントリも保存する ( $A_o = A_I$ )。ただし、放射性核種の寿命に対して比較的長期間におよぶ処理や保管においては、放射性崩壊による核種インベントリの減衰を考慮する。

$$A_o = A_I \exp(-\lambda t)$$

## 3.5.3 骨材クリアランスならびにセメント廃棄体化の要件の検討（連携先：JAEA）

### (1) 概要

骨材の再利用を念頭に置き、コンクリート中の放射性核種のインベントリおよびその不確かさについて既往の報告例を整理した。従来のクリアランスの基準を参照し、1F での実施を念頭に置いた運用条件を検討した。

### (2) 要件の検討

コンクリートの汚染に関する評価として、廃炉・汚染水・処理水対策事業の成果[38]から事故の以前には汚染がなく、事故に伴い空気を経由した汚染を被ったコンクリートの核種濃度を参照し、事故から 15 年経過した時点でのクリアランス[39]にかかわる D/C を試算した。D/C に寄与する核種は、表 3.5-5 に示すように、 $^{137}\text{Cs}$  が 9 割程を占め支配的である。次いで、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  と続き、これら核種で 99%を占める。さらに、処分に影響しうる重要な核種として、Pu 等のアクチニド核種、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{63}\text{Ni}$ 、 $^{14}\text{C}$  が後に続いていく。

インベントリ推算においては、核種が空気と水を経由して移行する割合を PCV から外で得られた試料の分析データに基づいて類型化、算出しており、表の右列に示すように汚染の重量により変化しうるが、様態が明らかではないので分析データをもった検証が望まれる。

骨材をクリアランスし再利用するためには、汚染の主要な核種と見られる  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$  や  $^{90}\text{Sr}$  などとともに、アクチニドや長半減期の  $\beta$  核種に着目した除染、再利用手法が重要になると考えられる。また、処分にあたり廃棄体化するうえでは、やはり  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  を指標として処分区分をおおよそ把握したうえで、アクチニドや長半減期の  $\beta$  核種の寄与を考慮することが肝要と見られる。

1F では減容処理設備が設置され、金属とコンクリート廃棄物を減容する処理が令和 6 年 2 月に開始された[40]。表面線量率が比較的低い物（平均  $1 \text{ mSv} \cdot \text{h}^{-1}$  以下）を 2 軸ローラによる圧縮破砕により処理して容器に収納する。骨材とセメントが分離されないで、骨材のクリアランスや再利用のためには、さらに分離する処理が必要となる。

分離した骨材等は、放射性核種の濃度が所定の値を下回ること示していく。表 3.5-5 に示した放射能濃度の推算値の妥当性を分析により確認することができれば、主要な核種

は  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  が占めているので非破壊測定の数値に基づいてクリアランスの可否を判断できるものと期待される。さらには、線量率に基づいた評価が可能となればさらに簡便となる。測定の対象は、圧縮破砕もしくはその後の分離したものを収納した容器が想定されるが、容器の内容物が不均一である可能性を考慮して評価しなければならない。側面を測定した線量率のばらつき（平均値に対する比の標準偏差）が不均一な線源分布に関する情報となることがわかっている[3]。

コンクリートの汚染の様態によっては、想定する核種の組成が異なる可能性があるので、由来が追跡できると都合がよい。すでに保管されている廃棄物について遡ることは困難と思われるが、今後の解体等の作業において発生する廃棄物は発生履歴の記録が望まれる。また、再利用の目的に応じては JIS 規格（再生骨材および再生骨材を用いたコンクリートにかかわる、JIS A 5021：コンクリート用再生骨材 H、JIS A 5022：再生骨材コンクリート M、JIS A 5023：再生骨材コンクリート L）への適合性を評価も検討することとなる。

金属の廃棄物は溶融処理によって、除染、減容することを目的として設置が進められており[41]、コンクリートに比して積極的に除染を図ることからクリアランスに対する適用性について関心が寄せられるところである。竣工予定は、令和 9～令和 11 年度頃を検討することとされており、まだ具体的な情報は無い。

表 3.5-5 建屋内のコンクリートの汚染にかかわる D/C の試算  
(非放射性物質が事故に伴い汚染、廃棄物記号 cC、95%ile 値に基づく)

核種	濃度 (Bq/t)		D/C		
	幾何平均	95%ile		相対値	汚染水重量の寄与
Cs-137	$7.41 \times 10^9$	$1.60 \times 10^{10}$	110,000	1	+ 2.9%
Co-60	$2.25 \times 10^7$	$5.12 \times 10^9$	7,100	0.063	+ 0.2%
Cs-134	$1.46 \times 10^{10}$	$3.16 \times 10^{10}$	2,100	0.018	+ 2.9%
Sb-125	$7.20 \times 10^8$	$2.38 \times 10^9$	550	0.0049	+ 0.0%
Sr-90	$2.45 \times 10^7$	$5.08 \times 10^8$	350	0.0031	+ 140%
Ru-106	$3.62 \times 10^8$	$8.24 \times 10^{10}$	30	0.00027	+ 0.1%
Pu-238	$2.47 \times 10^4$	$1.97 \times 10^6$	17	0.00015	+ 160%
Eu-154	$5.30 \times 10^4$	$4.23 \times 10^6$	13	0.00011	+ 160%
Pu-241	$1.24 \times 10^6$	$9.89 \times 10^7$	4.8	$4.2 \times 10^{-5}$	+ 160%
Pu-240	$5.33 \times 10^3$	$4.25 \times 10^5$	4.2	$3.8 \times 10^{-5}$	+ 160%
Pu-239	$4.17 \times 10^3$	$3.32 \times 10^5$	3.3	$2.9 \times 10^{-5}$	+ 160%
Tc-99	$1.27 \times 10^4$	$2.89 \times 10^6$	2.9	$2.6 \times 10^{-5}$	+ 0.1%
Ni-63	$1.23 \times 10^6$	$2.80 \times 10^8$	2.5	$2.2 \times 10^{-5}$	+ 0.2%
Am-241	$3.14 \times 10^3$	$2.51 \times 10^5$	2.4	$2.2 \times 10^{-5}$	+ 160%
C-14	$2.13 \times 10^5$	$8.37 \times 10^5$	0.84	$7.4 \times 10^{-6}$	+ 1.0%
Cm-244	$1.63 \times 10^4$	$1.30 \times 10^6$	0.73	$6.5 \times 10^{-6}$	+ 160%
I-129	$1.41 \times 10^3$	$5.55 \times 10^3$	0.56	$4.9 \times 10^{-6}$	+ 1.0%
H-3	$3.54 \times 10^6$	$7.72 \times 10^7$	0.33	$2.9 \times 10^{-6}$	+ 1.4%

### 3.6 研究推進

#### 3.6.1 人材育成

若手研究者として研究を分担した、北海道大学・植松慎一郎においては、課題項目①の研究推進のためメンバー内の情報交換を図るとともに、成果の取りまとめにおいても中心的な役割を果たすことで能力の向上に努めた。特に、国際会議 Migration 2023（フランス、ナント、令和5年9月24～29日）に参加しセメント中の核種移行挙動に関する情報収集を行うとともに、同国際会議開催直前にフランスで開講された熱力学データベースの講座（Thermochemical Database (TDB) Project course - 7th edition: Thermodynamic data collection and assessment）を受講した。さらに、台湾国立清華大学を訪問し、同大・Shin-Chin Tsai 博士、Chuan-Pin Lee 博士ならびに東京工業大学名誉教授・大貫敏彦博士と核種移行挙動に関する情報交換を行った他、台湾国立放射光研究センターを訪問し、放射光を用いたセメント中の核種収着構造解析に関する情報収集を行った（令和5年10月2～3日）。

同じく、若手研究者として研究を分担した電力中央研究所・森永祐加においては、課題項目④の研究責任者として、研究推進のためメンバー内の情報交換を図るとともに、試料の提供などを精力的に進めた。また、成果の取りまとめにおいても中心的な役割を果たすことで、能力の向上に努めた。なお、参加を予定していた、スイスにおけるモンテリ・テクニカルミーティングについては先方の都合により令和6年度に延期となった。

#### 3.6.2 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして研究を進めた。PO および JP0 による中間フォロー会議を令和6年1月17日に実施した。英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業・令和5年度福島リサーチカンファレンス／ワークショップ（令和5年12月5日）に研究代表者等が参加した。英知事業の課題紹介動画を作成し、CLADS のHPより公開した。

研究成果の一部を、国際学会で3件（国外2件、国内1件）、日本原子力学会2024年春の年会にて2件、発表した。また、査読付き論文を一報、発表した。

以上、3カ年計画の初年度である令和5年度の研究項目を実施し、所期の目標を達成した。

#### 4. 結言

1F の建屋構造物の解体により大量の放射性コンクリート廃棄物が発生することが見込まれる。1F の廃炉作業を円滑かつ合理的に進めるためには、放射性コンクリート廃棄物の減容・減量化が重要である。放射性コンクリートを骨材とセメントに分離・分別し（限定）再利用することは、放射性コンクリート廃棄物を大幅に減容するうえで有効な方法の一つと考えられる。本研究では、このような方法を現場に適用するための技術的な課題を検討するとともに、クリアランスの運用や廃棄体の制約などを整理し、解体から再利用・再資源化、最終処分までの全工程を俯瞰して、放射性コンクリート廃棄物の合理的な処理・処分方法を検討する。

本研究では、放射性核種のセメントー骨材間の移行・分配挙動や遷移帯におけるイオンの移動などを実験的に明らかにするとともに、それらの現象を組み込んだランダムウォーク粒子追跡法による 3 次元核種濃度分布の計算モデルを構築する。また、コンクリート廃棄物再利用・再資源化のための処理方法を調査するとともに、加熱条件下での骨材分別実験を行い、条件の最適化ならびに発生する放射性ダスト量の評価を行う。さらに、処理物の品質に応じた再利用法を検討し、また、廃棄体化した放射性廃セメントの固相分析ならびに放射性核種の浸出試験を行い、その特性を評価する。一方、再利用ならびにセメントの廃棄体化におけるクリアランスの運用条件や廃棄体の制約などの 1F 固有の要件を検討する。また、以上の結果を総合し、解体から最終処分までを考慮して、コンクリートの再利用・再資源化を行う利点・課題を抽出し、放射性廃棄物管理シナリオを評価する。

初年度である令和 5 年度には、解体時の汚染コンクリートの特性把握として、放射性核種およびイオンの移行挙動への遷移帯の寄与を解明することを目的に、コンクリート、モルタル試料中の  $^{137}\text{Cs}$  の拡散試験、遷移帯を有する試料中のイオンの移動試験、Ca の溶脱試験を実施した。モルタル試料中の  $^{137}\text{Cs}$  拡散試験結果からは、HCP 中の拡散と、それより 1 桁拡散係数の大きい遷移帯の拡散の二つの異なるプロセスの可能性が考えられた。コンクリート試料中の移行挙動については、 $^{137}\text{Cs}$  の収着・濃集が見られ、今後、詳細な検討が必要であることがわかった。また、セメントペーストー骨材の境界層で Ca イオンの拡散係数が大きくなり、骨材の有無により Ca イオンおよび Mg イオンの移行挙動に差異が生じた。電気泳動試験の結果から、海水成分の浸透により移動度が小さくなること、骨材寸法が小さく、境界層の比表面積が大きくなるほど、物質移行性が高くなることが確認された。ランダムウォーク粒子追跡法による核種濃度計算手法を改良し、遷移帯を含む核種移行モデルを構築するため、界面を挟む二つの媒体の拡散特性を考慮した確率分布をモデル化し、このサンプリング手法をランダムウォーク粒子追跡法の濃度計算に実装した。

再資源化・再利用に向けた処理方法の検討としては、コンクリート供試体を非放射性の Cs 溶液に浸漬し、1 wt%前後の Cs 濃度をもつ模擬汚染コンクリートを調製し、その特性を蛍光 X 線分析、原子吸光分光分析、X 線回折により評価した。また、骨材分離試験および熱分析試験の環境整備を行い、粉塵の発生量、サイズ、Cs 濃度などの分析を開始した。なお、解体時の汚染コンクリートの特性把握、再資源化・再利用に向けた処理方法の検討では、電力中央研究所が調製した共通のコンクリート試料を使用した。このコンクリート供試体は、微小領域のヤング率、一軸圧縮強度、水銀圧入法の結果より、標準的なコンクリートの範囲であることが確認された。

再資源化物の性状評価として、 $\text{CsCl}$  あるいは  $\text{SrCl}_2$  水溶液にコンクリート試料を浸漬し、模擬汚染骨材を調製した。また、セメントペーストで模擬汚染骨材を被覆した模擬再生コンクリートおよび実構造物と同じ配合で模擬汚染骨材を使用した模擬再生コンクリートを調製した。模擬汚染骨材をイオン交換水に浸漬した結果、汚染を模擬する濃度が高いほど核種イオンの浸水暴露環境への溶出量は多くなることがわかった。一方で、被覆したセメントペーストへの核種イオンの移行は確認されなかった。



廃棄体の性状評価のため、コンクリート供試体を骨材分離してセメント微粉模擬試料を調製し、その微粉を用いて模擬廃棄体を調製した。微粉模擬試料は未反応セメント鉱物、セメント反応生成物ならびに骨材で構成されていること、模擬廃棄体のセメント水和率は微粉の含有率の増加に伴い高くなることが確認された。模擬廃棄体の一軸圧縮強度試験では微粉の含有率が高いほど強度が低下したが、これは微粉の含有率の上昇に伴い空隙量が増加しているためであると考えられた。セメント固化体からの U 浸出実験のための基礎データとして、U の炭酸錯体をサイズ排除クロマトグラフィーと ICP-MS を連結して分析した。また、U を添加した C-S-H 平衡水、セメント平衡水および U 添加前の平衡水を分析した結果、平衡水試料の U のほとんどは炭酸錯体であることがわかった。さらに、模擬セメント固化体からの FP の浸出挙動を解明することを目的とし、 $^{137}\text{Cs}$  の浸出実験に着手した。模擬セメント固化体粉末からの浸出試験の手法確立のため、微粉を含まないセメントに  $^{137}\text{Cs}$  を添加して硬化させた試料を粉砕して用いた浸出試験を行った。浸出の分配係数は、収着分配係数よりも 1~3 桁高くなることがわかった。

再利用・再資源化を組み込んだ放射性コンクリート廃棄物管理シナリオ評価のため、コンクリート汚染状況に関する知見を収集、整理し、汚染特性に基づいて原子炉施設を領域に区分した。また、建屋内の空間線量率から汚染密度を概算すると、おおまかにはサービス建屋 1 階は L3 相当、原子炉建屋 1 階は L2 相当となることがわかった。放射化による核種濃度は、事故による汚染に由来する  $^{137}\text{Cs}$  濃度と比較すると数桁から 8 桁小さいことが確認された。クリアランスの際に重要となる放射化核種は、コンクリートの場合には親元素の濃度にかかわらず、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{154}\text{Eu}$  であり、これら 3 核種で  $\Sigma D/C$  の 9 割以上を占めた。特に運転停止後 30 年以降は  $^{152}\text{Eu}$  が支配的となった。再利用・再資源化量、廃棄物量を推計するため、単一の汚染コンクリートを対象に、その核種濃度分布を考慮したうえで、想定される処理（表面研り、骨材／セメント分離）を施した際に発生する放射性廃棄物や再利用対象物の物量や核種濃度を算出するモデルを構築した。事故による汚染のみを考慮した場合、コンクリート中の放射性核種としては、 $^{137}\text{Cs}$  が 9 割程を占め支配的であり、次いで、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  と続き、これらの核種で 99%を占めることがわかった。さらに、処分に影響しうる重要な核種として、Pu 等のアクチノイド核種その他、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{63}\text{Ni}$ 、 $^{14}\text{C}$  が挙げられた。

令和 5 年度には、五つのサブテーマそれぞれで手法確立や環境整備を図った。令和 6 年度には、令和 5 年度の成果をもとにデータを取得するとともに、サブテーマ間の連携を図りつつ研究を推進する計画である。



## 参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター，北海道大学；溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討（委託研究），令和2年度成果報告書，JAEA-Review 2021-070，2022. DOI:10.11484/jaea-review-2021-070
- [2] 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター，北海道大学，溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討（委託研究），令和3年度成果報告書，JAEA-Review 2022-038，2023. DOI:10.11484/jaea-review-2022-038
- [3] 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター，北海道大学，溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討（委託研究），令和4年度成果報告書，JAEA-Review 2023-027，2024. DOI:10.11484/jaea-review-2023-027
- [4] Evans, J.C., Lepel, E.L., Sanders, R.W., Wilkerson, C.L, Silker, W., Thomas, C.W., Abel, K.H., Robertson, D.R., Long-Lived Activation Products in Reactor Materials, NUREG/CR-3474, 1984.
- [5] Parsons, R., Handbook of Electrochemical Constants, Butterworths Scientific Publications, London, 1959, p.79.
- [6] 羽原俊祐，沢木大介，硬化コンクリートの空隙構造とその物性，石膏と石灰，no.240, 1992, pp.314-323. DOI:10.11451/mukimate1953.1992.314
- [7] Tan, Y., Sugiyama, T., Hashimoto, K., Evaluation of transport properties of deteriorated concrete due to calcium leaching with coupled CT image analysis and random walk simulation, Construction and Building Materials, vol.369, 2023, 130526. DOI:10.1016/j.conbuildmat.2023.130526
- [8] Webb, D.A., The Sodium and Potassium Content of Sea Water. Journal of Experimental Biology, vol.16, no.2, 1939, pp.178-183.
- [9] Nguyen, T.H.Y., Yokota, H., Hashimoto, K., Effects of Electrochemical Chloride Extraction on Hydrated Products of Various Cement Paste Systems. Journal of Advanced Concrete Technology, vol.13, no.12, 2015, pp.564-582.
- [10] Tan, Y., Sugiyama, T., Hashimoto, K., Evaluation of transport properties of deteriorated concrete due to calcium leaching with coupled CT image analysis and random walk simulation, Construction and Building Materials, vol.369, 2023, 130526.
- [11] 橋本拓実，辻埜真人他，ナノインデンテーション法を用いた弾性率測定に基づく骨材の違いが遷移帯形成に及ぼす影響評価，日本建築学会大会学術講演梗概集，2021, pp.23-24.
- [12] Gao, Y., Hu, C., Zhang, Y., Li, Z., Pan, J. et al., Characterisation of the interfacial transition zone in mortars by nanoindentation and scanning electron microscope. Mag Concr Res., vol.70, 2018, pp.965-972.
- [13] 五十嵐豪，丸山一平他，セメント硬化体の若材齢時におけるポアソン比の経時変化，コンクリート工学年次論文集，vol.32, 2010, pp.281-286.
- [14] 小川浩太，丸山一平他，コンクリートのポアソン比の乾燥による影響に関する実験的検討，セメント・コンクリート論文集，vol.69, 2015, pp.349-354.
- [15] 吉野利幸，鎌田英治他，空隙指標で表したコンクリート強度式の提案とその検証，コンクリート工学論文集，vol.7, 1996, pp.65-77.
- [16] 五十嵐心一，細孔構造の可視化（画像データからの細孔情報の抽出），コンクリート工学，vol.53, no.5, 2015, pp.388-393.

- [17] 日本産業規格, JIS A 1132:2020 コンクリートの強度試験用供試体の作り方.
- [18] 石森健一郎, 原賀智子, 島田亜佐子, 亀尾裕, 高橋邦明, セメント固化体および焼却灰試料の放射化学分析と標準試料の作製, JAEA-Technology 2010-016, 2010, pp.3-4. DOI:10.11484/jaea-technology-2010-016
- [19] 古賀康男, 井上敏克, 立屋敷久志, 助清満昭, 岡本雅道, 浅野闘一, 原子力発電所解体コンクリートからの骨材の分離技術, 原子力バックエンド研究, vol.3, no.2, 1997, pp.17-25.
- [20] 日本カノマックス株式会社, 【2】エアロゾルが人体に及ぼす影響について, <https://www.kanomax.co.jp/technical/detail2026/> (Accessed : 2024/3/20) .
- [21] 菊地普, 仮想的過酷事故条件下におけるナトリウム冷却高速炉構造コンクリートの熱化学的挙動に関する研究, 博士論文, 2019.
- [22] 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター, 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 (委託研究), JAEA-Review 2022-057, 2023. DOI:10.11484/jaea-review-2022-057
- [23] 丸山一平, 山田一夫, 五十嵐豪, 芳賀和子, 駒義和: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, 文部研究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」, JPMX 17D17948568, 2021.
- [24] 木下哲一他:コンクリートへの Sr と Cs の浸透挙動とその予測, 日本原子力学会秋の大会予稿集, 1A09, 2021.
- [25] 島裕和, 立屋敷久志他, 加熱すりもみ法によるコンクリート塊からの高品質骨材回収のLCA 評価 (骨材), コンクリート工学年次論文, vol.22, no.2, 2001, pp.67-72.
- [26] Rietveld HM, A profile refinement method for nuclear and magnetic structures, J Appl Crystallogr., vol.2, 1969, pp.65-71.
- [27] Elakneswaran, Y., Noguchi, N. et al., Characteristics of Ferrite-Rich Portland Cement: Comparison With Ordinary Portland Cement, Frontiers in Materials, vol.6, 2019. DOI:10.3389/fmats.2019.00097
- [28] 胡桃澤清文, 名和豊春, 反射電子像及びエネルギー分散型 X 線分析により測定した元素分布像による硬化セメントペーストの観察, 日本建築学会構造系論文集, vol.70, 2005, pp.9-15.
- [29] 胡桃澤清文, 村上祐翔, 石垣邦彦, 名和豊春, セメント硬化体の塩化物イオン吸着に及ぼすカルシウム溶脱の影響, セメント・コンクリート論文集, vol.67, 2013, pp.137-143.
- [30] Andersen, M.D., Jakobsen, H.J. et al., Characterization of white Portland cement hydration and the C-S-H structure in the presence of sodium aluminate by  $^{27}\text{Al}$  and  $^{29}\text{Si}$  MAS NMR spectroscopy, Cem Concr Res., vol.34, 2004, pp.857-868.
- [31] 安田僚介, 田原和人, 高温炭酸化により合成した炭酸カルシウムを少量混合成分として用いたセメントの品質評価, セメント・コンクリート論文集, vol.77, 2023, pp475-482.
- [32] Zajac, M., Skibsted, J. et al., Kinetics of enforced carbonation of cement paste, Cem Concr Res., vol.131, 2020, 106013.
- [33] 吉野利幸, 鎌田英治, 桂修, 空隙指標で表したコンクリート強度式の提案とその検証, コンクリート工学論文集, vol.7, 1996, pp.65-77.
- [34] JAEA, 収着・拡散データベースシステム (JAEA-SDB/DDB system ; Web 版) , <https://migrationdb.jaea.go.jp/japanese.html> (Accessed : 2024/2/10) .
- [35] 東京電力ホールディングス株式会社 福島第一廃炉推進カンパニー, 福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の分析結果, サーベイマップ, 2023 年 9 月 <https://www.tepco.co.jp/decommission/data/surveymap/> (Accessed : 2024/3/20) .

- [36] Sakamoto, Y., Tanaka S., QAD-CGGP2 AND G33-GP2, Revised Versions of QAD-CGGP AND G33-GP, JAERI-M 90-110, 1990, 95p.
- [37] 日本原子力研究開発機構廃炉国際共同研究センター, 福島第一原子力発電所事故廃棄物に関する分析データ集, Fukushima Daiichi Radwaste Analytical Data Library (FRAnDLi), <https://frandli-db.jaea.go.jp/FRAnDLi/view.php> (Accessed : 2024/3/20) .
- [38] 一般財団法人 電力中央研究所, 統計的インベントリ推算方法の適用性向上に関する研究, 令和 6 年 1 月 31 日.
- [39] 工場等において用いた資材その他の物に含まれる放射性物質の放射能濃度が放射線による障害の防止のための措置を必要としないものであることの確認等に関する規則, 令和二年原子力規制委員会規則第十六号, 別表 (第 2 条関係) .
- [40] 東京電力ホールディングス, 廃炉中長期実行プラン 2024, 2024 年 3 月 28 日.
- [41] 東京電力ホールディングス, 東京電力ホールディングス (株) 福島第一原子力発電所の固体廃棄物の保管管理計画, 2023 年 2 月版, 2023 年 2 月 20 日.

This is a blank page.



