平成 30 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

汚染コンクリートの解体および
そこから生じる廃棄物の
合理的処理・処分の検討

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立大学法人　北海道大学

本報告書は、文部科学省の「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平成 28－30 年度「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」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ v

1. はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-1

2. 業務計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-1

3. 実施内容および成果

3.1 変質コンクリートの調製 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-1

3.1.1 コンクリート材料の事故時温度解析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-1

3.2 核種移行特性の評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-1

3.2.1 微細構造評価 ・ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-1

3.2.2 化学状態変化（再委託先：日本原子力研究開発機構）・・・・・・・・・・ 3.2-16

3.2.3 拡散挙動、収脱着挙動（北海道大学および再委託先:日本原子力研究開発機構）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-17

3.3 廃棄物管理シナリオ評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-1

3.3.1 廃棄物物性、物量評価（北海道大学および再委託先:日本原子力研究開発機構、福井大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-1

3.3.2 廃棄体の性状評価（北海道大学および再委託先:福井大学）・・・・・・・・ 3.3-13

3.3.3 廃棄物管理シナリオ構築・評価（北海道大学および再委託先:日本原子力研究開発機構、福井大学）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-20

3.4 研究推進 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-1

4. 結言 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4.1

5. 参考文献・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5.1

表一覧

頁

表 3.1-1　STAR-CCM 解析に使用した個体物性値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-14
表 3.2-1　セメント試料中の Cs の拡散試験の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-39
表 3.2-2　セメント試料中の Na の拡散試験の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-40
表 3.2-3　セメント試料中の Sr の拡散試験の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-40
表 3.2-4　セメント試料中の HTO の拡散試験の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-40
表 3.2-5　セメント試料中の U の拡散試験の結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-40
表 3.2-6　蛍光 X 線分析(XRF)によるセメント試料の元素組成・・・・・・・・・・・・ 3.2-41
表 3.2-7　セメント試料への U 収着実験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-42
表 3.2-8　推定される水溶液中の U 化学種・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-43
表 3.2-9　U 収着実験後のセメント試料の SEM-EDX 分析・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-44
表 3.2-10　Cs 収着実験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-45
表 3.2-11　Cs 脱離実験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-45
表 3.2-12　Sr 収着実験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-46
表 3.2-13　Sr 脱離実験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-46
表 3.3-1　1F コンクリート物量推計・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-9
表 3.3-2　1F 原子炉建屋、タービン建屋のコンクリート物量分布の推定・・・・・・・・ 3.3-9
表 3.3-3　セメントペースト中の見かけの拡散係数・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-10
表 3.3-4　各領域における汚染コンクリートの分類と物量・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-10
表 3.3-5　環境条件の組み合わせに基づくコンクリート中の拡散モデルの体系・・・・ 3.3-11
表 3.3-6　滞留水中の ^{137}Cs 濃度の設定・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-11
表 3.3-7　セメント中の拡散に関するパラメータの設定・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-12
表 3.3-8　建屋地上部の空間線量率および気中コンクリート解体廃棄物のレベル区分 3.3-12
表 3.3-9　廃棄物量推計結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-12
表 3.3-10　瓦礫の濃度分布から仮定して推計した区分別廃棄物量・・・・・・・・・・ 3.3-20
表 3.3-11　気中コンクリートの解体によって生じる L2 廃棄体数・・・・・・・・・・・ 3.3-20
表 3.3-12 瓦礫類の管理状況・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-33

図一覧

図 2-1　全体計画図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2.1
図 3.1-1　STAR-CCM+にて作製した 1F 建屋計算領域・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-5
図 3.1-2　福島第一原子力発電所（1F）建屋計算領域・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-6
図 3.1-3　格納容器内の計測値と計算値の比・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-7
図 3.1-4　MAAP コードによる格納容器温度履歴・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-7
図 3.1-5　事故直後の温度履歴推算式・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-8
図 3.1-6　PCV 外壁部における事故直後コンクリート温度履歴・・・・・・・・・・・ 3.1-8
図 3.1-7　1 F 格納容器（PCV）周囲コンクリートにおける計算領域・・・・・・・・・ 3.1-9

図 3.1-8　MAAP 解析結果からの事故直後崩壊熱算出値・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-10
図 3.1-9　崩壊熱値 69.3MW 条件での 1F 温度分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-11
図 3.1-10 崩壊熱値 10MW 条件での 1F 温度分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-11
図 3.1-11　崩壊熱値 2.5MW 条件での 1F 温度分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-12
図 3.1-12　高度 H=15m における PCV 外壁コンクリート内部温度・・・・・・・・・・・・ 3.1-12
図 3.1-13　高度 H=25m における PCV 外壁コンクリート内部温度・・・・・・・・・・・・ 3.1-13
図 3.1-14　高度 H=37.5m における PCV 外壁コンクリート内部温度・・・・・・・・・・・ 3.1-13
図 3.2-1　各継続時間で加熱した供試体の断面画像・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-6
図 3.2-2　各継続時間で加熱した供試体の断面画像・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-7
図 3.2-3　各最高温度に加熱した供試体の断面画像・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-8
図 3.2-4　関心領域および骨材とひび割れ幅の三次元画像・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-8
図 3.2-5　最高温度と平均ひび割れ幅の関係・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-9
図 3.2-6　供試体の断面画像・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-9
図 3.2-7　骨材とひび割れの抽出・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-10
図 3.2-8　加熱前後の XRD プロファイル ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-10
図 3.2-9　各供試体の浸漬前後の断面画像・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-11
図 3.2-10　各供試体の浸漬前後の GSV ヒストグラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-12
図 3.2-11　各供試体の浸漬前後の XRD プロファイル(1)・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-13
図 3.2-11　各供試体の浸漬前後の XRD プロファイル(2)・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-14
図 3.2-12　供試体の断面画像・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-14
図 3.2-13　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法、200℃加熱試料）・・3.2-15
図 3.2-14　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法、300℃加熱試料）・・3.2-15
図 3.2-15　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法、400℃加熱試料）・・3.2-16
図 3.2-16　U の XAFS 分析・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-18
図 3.2-17　セメント試料の Sr K 吸収端 XAFS スペクトル・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-19
図 3.2-18　セメント試料中の Cs^{+}の濃度分布の一例・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-29
図 3.2-19　セメント試料中の Cs^{+}の見かけの拡散係数の拡散温度依存性 ・・・・・・・ 3.2-29
図 3.2-20　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法） ・・・・・・・・・・3.2-30
図 3.2-21　再水和後セメント試料の積算細孔容積（ガス吸着法）・・・・・・・・・・・ 3.2-30
図 3.2-22　セメント試料中の Na^{+}の濃度分布の一例・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-31
図 3.2-23　セメント試料中の U の濃度分布の一例・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-30
図 3.2-24　粉末化したセメント試料の X 線回折分析・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-32
図 3.2-25　粉末化したセメント試料の熱重量示差熱分析・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-33
図 3.2-26　粉末化したセメント試料の溶解変質実験における主要元素の溶出・・・・ 3.2-34
図 3.2-27　粉末化したセメント試料の X 線回折分析・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-35
図 3.2-28　セメント試料に収着した U の SEM 像および SEM-EDX による元素マッピング
・・ 3.2-36
図 3.2-29　セメント試料に収着した U の SEM 像および SEM-EDX スペクトルの例・・・ 3.2-37
図 3.2-30　セメント試料への ^{22}Na の収着試験における液相中の ^{22}Na 濃度の経時変化・ 3.2-38

図 3.2-31　脱離試験時における液相中の Na 濃度経時変化・・・・・・・・・・・・・・・3.2-38
図 3.2-32　収着試験時における液相中の HTO 濃度の経時変化・・・・・・・・・・・・・ 3.2-39
図 3.3-1　原子炉建屋内および周辺で採取した瓦礫試料から検出された核種の濃度
・・ 3.3-5
図 3.3-2　瓦礫の局所的な汚染分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-5
図 3.3-3　ひび割れのない体系（A・B）における核種濃度分布・・・・・・・・・・・・ 3.3-6
図 3.3-4　滞留水中の ^{137}Cs 濃度・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-6
図 3.3-5　地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度・・・・・・・・・・・・・ 3.3-7
図 3.3-6　地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度によるレベル区分の変遷・ 3.3-8
図 3.3-7　1～4 号機における地下部（水中）のコンクリートの物量とレベル区分・・ 3.3-9
図 3.3-8　瓦礫試料の ^{137}Cs 濃度の累積分布と政令濃度上限値・・・・・・・・・・・ 3.3-16
図 3.3-9　対数正規分布を仮定した場合の廃棄物量割合の経時変化・・・・・・・・・ 3.3-16
図 3.3-10　瓦礫試料の放射性核種の濃度分布と政令等による埋設濃度上限値・・・・ 3.3-17
図 3.3-11　地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度分布・・・・・・・・・・・ 3.3-18
図 3.3-12　厚さ 1m のコンクリート中の ^{137}Cs の平均濃度・・・・・・・・・・・・・ 3.3-19
図 3.3-13　1～4 号機地下部のコンクリート解体によって発生する L2 廃棄体数・・・ 3.3-19
図 3.3-14　福島第一原子力発電所における瓦礫等の分類・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-25
図 3.3-15　瓦礫等発生量の予測値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-25
図 3.3-16　燃料デブリ取り出しに係る排出物の想定・分類の例・・・・・・・・・・・ 3.3-26
図 3.3-17　遮へい壁穴開け技術の実規模要素試験のイメージ・・・・・・・・・・・・ 3.3-26
図 3.3-18　見かけの拡散係数に対する表面線量率の応答特性・・・・・・・・・・・・ 3.3-27
図 3.3-19　事故からエンドステートまでの流れ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-27
図 3.3-20　検討対象シナリオ①即時解体・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-28
図 3.3-20　検討対象シナリオ②安全貯蔵・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-29
図 3.3-21　シナリオごとの廃棄物発生量と発生タイミング・・・・・・・・・・・・・ 3.3-30
図 3.3-22　シナリオごとの廃棄物発生量と減衰を考慮した例・・・・・・・・・・・・ 3.3-31
図 3.3-23　廃棄物管理シナリオ評価ツール概念図・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-32

略語一覧

CT-XRD: Computed Tomography-X ray Diffraction（断層観察-X線回折連成法）

SEM-EDX: Scanning Electron Microscope / Energy Dispersive X-ray Spectroscopy（走査型電子顕微鏡/エネルギー分散型X線分光分析）

XAFS: X-ray absorption fine structure　(X線吸収微細構造)

概略

福島第一原子力発電所（1F）の廃炉では、多様な放射性核種による高いレベルの汚染が広範囲にあることから、大量の放射性コンクリート廃棄物の発生が予想される。このため、コンクリートの汚染状況をより厳密に把握し、その情報に基づき解体法を決定するとともに、そこから生じる放射性コンクリート廃棄物量を推定した上で、適切な廃棄物の保管管理、処理・処分法を検討する必要がある。そこで本研究は、

1. 変質コンクリート試料に対して汚染分布の経時変化に関する現象理解を図ること、および
2. この現象理解に基づいたコンクリート中の汚染分布の将来予測を行い、その結果を用いて解体から最終処分までの廃棄物管理の異なる選択肢を評価する手法を確立すること

を目標とし、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処するための一連の研究を行った。まず、三次元熱流動計算によって原子炉建屋内コンクリートの事故時の温度分布解析を行い、コンクリートの変質条件を評価するとともに、実験室内でその条件で熱処理を加えた模擬変質コンクリート試料を調製した。次に、変質コンクリート材料の汚染分布の経時変化に関する現象理解を図ることを目的とし、これらの模擬変質試料に対して微細構造等の特性評価、拡散・収着試験を実施した。また、この現象理解に基づき、1F の廃炉で生じる放射性コンクリート廃棄物の放射能レベル区分および物量等の将来予測を行った。さらに、解体から最終処分に至るまでの各工程における異なる選択肢に対し、廃棄物の区分ごと物量等を評価することで、最適な解体、処理・処分方法を明らかにする手法について検討した。

コンクリート材料の事故時温度解析では、1F 構造物をコンピューター上にて作製した上で、汎用三次元数値流体力学（CFD）解析コード Star-CCM+を用いて、過酷事故時に生成された溶融デブリ崩壊熱を熱源とした三次元熱流体解析を実施した。事故直後に生成された溶融デブリからの崩壊熱により顕著な伝熱が懸念される部位は格納容器（PCV）周辺領域のコンクリートと下部コンクリート部位であることから、PCV 周囲ならびに下部のコンクリートに着目し、局所的に温度分布を評価した。その結果、堆積したデブリ近傍は 3000℃近くにまで達し、放射状に減熱していく傾向にあること、PCV エアギャップと隣接するコンクリート壁 5cm 内においては、最高温度が 350℃近くまで達し、その温度はコンクリートの厚さ方向に 5cm 当たり約 25℃ずつ減少することが確認された。なお、高熱伝導率値を有する鉄筋がコンクリート内部に存在する場合、熱伝導率は大きいものと考えられ、コンクリート温度も 350 ℃以上に上昇するものと考えられる。一方、PCV 周囲のコンクリートは 350～500℃近くまで達し、PCV 外壁から離れるにつれ徐々に減熱していく傾向が確認された。最高到達温度はデブリ位置からの高さに依存しており、デブリとサプレッションチェンバー部に近い高度 15m（H=15m）においては 500℃近傍までの温度上昇が確認された。PCV 外部に隣接するコンクリート部は最高温度 350～500℃の範囲で 50 時間以上維持されていたと考えられる。また、下部コンクリートにおいては 8 割強の領域で 1500℃以上の熱に曝されており、292～1800℃の範囲の温度分布であることが本計算により明らかになった。

温度解析の結果を参考に、水セメント比（w/c 比）0.36 および 0.6 のセメントペースト試料、モルタル試料、鉄筋を模擬したピアノ線を挿入したセメントペースト(鋼線ペースト)試料に対し、事故時を模擬した劣化作用を与えた。様々な加熱条件(温度 80～1000 ℃、加熱時間 2、6、12、24、72 時間)で熱変質試料を調製し、さらに、浸漬(溶解変質)、炭酸化(中性化)等の変質処理を施した。

これらのセメント系材料に対して、非破壊 CT-XRD 連成法を用いた微細構造評価を行った。セメントペースト試料では、温度の上昇、加熱時間の継続に伴いポルトランダイト(Portlandite)の分解反応が進むが、加えて 600℃ではライム(Lime)、カルサイト(Calcite)の生成、800 ℃以上の高温では、CaO、ケイ酸二カルシウム($2CaO \cdot SiO_2$、C_2S)、鉄アルミン酸四カルシウム C_4AF($4CaO \cdot Al_2O_3 \cdot Fe_2O_3$、$C_4AF$)の生成が認められた。また、炭酸化したセメントペーストでは 800℃加熱でケイ酸カルシウム水和物(C-S-H)の分解によって生じたと考えられるエーライト、ビーライトが検出された。また、セメントペースト試料では、加熱によるポルトランダイトの分解、脱水反応に伴いセメントペーストが収縮してひび割れが生じた。モルタル試料では、セメントペースト部でのひび割れに加えて、加熱によるセメントペーストの収縮を骨材等が内部で拘束するため、骨材周辺にもひび割れが生じた。骨材周辺のひび割れ幅は、セメントペースト部よりも大きかった。これらのひび割れは、加熱温度が高いほど、また加熱時間が長いほど大きく、外縁部から内部に進行した。一方、鋼線ペーストのように異なる熱膨張係数に起因するひび割れは、外縁部ではなく、異なる材料が接する面に発生した。さらに、加熱後に試料を浸漬させると、試料内部でもカルサイトが検出され、加熱により生じたひび割れを通じて中心部まで変質が起きることが明らかになった。

このようなセメントペーストの物理的変化(空隙構造等)や化学的変化(構成鉱物や結晶構造の変化等)が核種の移行に与える影響を検討するため、拡散および収脱着実験を行った。収着実験終了後のコンクリート試料中の U、Cs および Sr の化学状態を XAFS 等により分析した結果、U の主要なホスト相は炭酸カルシウムではなく、また、収着後イオン交換水を用いて U を脱離させたセメント試料のスペクトルに変化がなかったことから、特定の相の U が脱離したわけではないことが明らかになった。なお、Cs に関しては、セメント試料の Cs 収着量が少なく、また、K 吸収端の EXAFS 振動が弱いため僅かなノイズであっても解析において大きな障害となるため、解析に耐えうる EXAFS スペクトルを得ることができなかった。Sr については、Sr を収着前後の未加熱、200℃および 400℃加熱粉末試料のスペクトル全てがいずれも互いに良く類似していることから、セメントの加熱条件は、セメント固相中での Sr の化学状態（配位数、原子間距離）に影響を及ぼしていないこと、セメントに元々入っていた Sr の化学状態とセメントに収着した Sr の化学状態とは類似していることが示唆された。

加熱・再水和したセメントペースト試料中の Cs^+の拡散試験の結果、80～400℃加熱で Cs^+の見かけの拡散係数は未加熱試料に対し約 3～10 倍に増加し、また、拡散の活性化エネルギーは、未加熱試料においては自由水中の Cs^+の拡散の活性化エネルギーよりも高かったのに対し、加熱試料では減少して自由水中の値に近づいた。水銀圧入試験による細孔容積のピーク位置は加熱により増大したことから、セメント試料中の Cs^+イオンは、未加熱試料ではゲル空隙内の水のような束縛された水を介した拡散が支配的であったが、加熱に伴う細孔の増大により、毛細管空隙を介した拡散の割合が増加し、拡散の活性化エネルギーが減少したことが示唆された。また、空隙サイズの拡大に伴い、拡散経路の屈曲度あるいは収斂度が低下し、見かけの拡散係数が増加したと考えられた。

Na においても加熱試料では見かけの拡散係数は 5～6 倍増加し、これは、Cs と同様に加熱に伴う毛細管空隙の増大に起因すると考えられた。また、拡散の活性化エネルギーは、加熱の有無によらず自由水中の Na^+の活性化エネルギーとほぼ同等であったことから、セメントペースト中には相当量の Na^+イオンが存在することから、セメント平衡水を内部に有する毛細管空隙が Na^+イオンの支配的な拡散経路となったことが示唆された。一方、HTO については加熱により見かけの拡散係数が約 3 倍に増加したが、これは、比較的狭隘なゲル空隙への HTO の進入に伴う移行遅延である可能性が考えられた。

以上の結果に対して、未加熱および 400℃加熱試料に対して実施した U の拡散試験ではいずれの試料においても、U は塗布面の極近傍に留まった。U は、加熱、未加熱にかかわらず、セメント試料への収着が大きく、拡散係数が 10^{-16} m^2 s^{-1} オーダー程度と見積もられ、他の核種と比較して移行遅延が顕著であることが明らかとなった。

粉砕したセメントペースト試料に対して、U、Cs、Sr を対象とした収着実験を行い、収着分配係数を取得した。水/セメント比、加熱の有無、加熱温度の違いに関わらずセメントペースト試料の XRD 結果はいずれもほぼ同一で、すべての試料でポルトランダイト($Ca(OH)_2$)が主たる結晶相で、カルサイト ($CaCO_3$)を含むことがわかった。また、溶解変質させたセメントペースト試料の鉱物相はいずれもカルサイト が主要な相であった。初期濃度 1ppm、10ppm の条件下で実施した U の収着実験では、過熱の有無に関わらず 99.9%以上の U が収着し、いずれの場合も U の分配係数は 1×10^5 mL/g 以上となった。また、収着は非常に早く 2 時間以内に定常に達し、温度依存性が無く、海水濃度の塩化ナトリウムに吸着が妨害されることは無かった。収着試験後の SEM-EDX 分析では、U は検出されず、U が特定の鉱物相に濃集せず、広く薄く収着したことが考えられた。また、Cs、Sr については、溶解変質前のセメントの収着能は小さく、加熱による差は見られなかった。一方、溶解変質後の試料に対しては、Cs の分配係数は約 5～6×10^3 mL/g、Sr は約 2×10^3 mL/g と 2 桁増大した。溶解変質後の主な固相であるカルサイトへの Cs、Sr の収着はほとんど認められず、溶解変質により生成したカルサイト以外の微量成分に収着した可能性が示唆された。Na、HTO の収着、脱離試験では、液相濃度がほぼ一定となり、収着や同位体交換(同位体希釈)の拡散・収着時の影響は小さいことが示唆された。

事故の影響を受けた 1 から 4 号機のコンクリート廃棄物量は、原子炉建屋、タービン建屋合わせて約 80 万 t 程度と推計された。このうち、平成 31 年 2 月までに約 26 万 m^3 の瓦礫類が固体廃棄物として保管されている。これらのコンクリートを熱変質の有無、周辺環境(気中、水中)に分類し、

- 気中では建屋内の壁面には事故時、放射性核種が水滴等とともに付着
- 水没した領域では、水中に溶解した放射性核種とコンクリート壁面が接触

した初期状態から、コンクリート内部への放射性核種の拡散が始まると想定した。また、本検討では建屋内壁のコンクリート表面のコーティングはその機能を喪失し、コンクリート表面が放射性核種で直接汚染することを想定した。滞留水中および壁面に付着している ^{137}Cs 濃度としては公開されているデータを基にした。概算結果では、発生するコンクリート廃棄物の約 9 割がクリアランス対象となり、L2 相当が約 10 万 t、L3 相当が約 3 万 t と推計された。

廃炉のエンドステートとして、地下構造物を残存させるシナリオを検討した結果、総廃棄物量を約半分に放射性廃棄物量を約 3 分の 1 に減量できることがわかった。また、安全貯蔵期間を設定すると、本検討の条件では滞留水から浸入する ^{137}Cs の影響で放射性廃棄物量が増加することがわかった。廃炉のシナリオを検討する上では、総物量、放射性廃棄物量ともに地下構造物の影響が大きく、地下における ^{137}Cs 等の放射性核種の挙動を把握することが重要であることがわかった。

1. はじめに

福島第一原子力発電所（1F）の廃炉では、多様な放射性核種による高いレベルの汚染が広範囲にあることから、大量の放射性コンクリート廃棄物の発生が予想される。このため、コンクリートの汚染状況をより厳密に把握し、その情報に基づき解体法を決定するとともに、そこから生じる放射性コンクリート廃棄物量を推定した上で、適切な廃棄物の保管管理、処理・処分法を検討する必要がある。

しかし、コンクリート材料の汚染状況の把握には困難が予想される。例えば、放射線量率の高い現場における実試料の採取と分析には限界がある上に、汚染はコンクリート表面から深部へ拡散等により徐々に浸透し、その深度分布は時間とともに変化することから、常に実測データの更新が求められる。実測データの不足を、移行モデルに基づく浸透計算によって補うことも可能ではあるが、これに必要な拡散・浸透現象の理解と基礎データ（拡散係数、収着係数等）は現状では十分ではない。これは、特に、事故初期の高温環境下での脱水和反応や、汚染水との接触による溶脱反応によって変質が進んだコンクリート試料において大きな課題となる。

1F では、すでに瓦礫として相当量の放射性コンクリート廃棄物が発生している。今後、燃料デブリ取り出しに付随した作業における発生がある他、建屋解体作業が本格化すると、放射性コンクリート廃棄物の発生量は激増すると予想される。それらの最終処分までには長期間を要すると考えられることから、解体作業から最終処分までの放射線被ばくリスクを考慮に入れた管理シナリオ検討が不可欠である。さらに最終処分の実施に向けては、コンクリート廃棄物の処分時の安定性に関する知見も整備する必要がある。

本研究では、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処するための一連の研究を行った。まず、三次元熱流動計算によって原子炉建屋内コンクリートの事故時の温度分布解析を行い、コンクリートの変質条件を評価するとともに、実験室内でその条件で熱処理を加えた模擬変質コンクリート試料を調製した。次に、変質コンクリート材料の汚染分布の経時変化に関する現象理解を図ることを目的とし、これらの模擬変質試料に対して微細構造等の特性評価、拡散・収着試験を実施した。また、この現象理解に基づき、1F の廃炉で生じる放射性コンクリート廃棄物の放射能レベル区分および物量等の将来予測を行った。さらに、解体から最終処分に至るまでの各工程における異なる選択肢に対し、廃棄物の区分ごと物量等を評価することで、最適な解体、処理・処分方法を明らかにする手法について検討した。

2. 業務計画

本業務の全体計画図を図 2-1 に示す。

区　　分	28 年度		29 年度				30 年度			
	3 期	4 期	1 期	2 期	3 期	4 期	1 期	2 期	3 期	4 期
(1) 変質コンクリートの調製										
①コンクリート材料の事故時温度解析（北海道大学）	←									→
②変質コンクリート試料の調製（北海道大学）	←						→			
(2) 核種移行特性の評価										
①微細構造評価（北海道大学）	←									→
②化学状態変化（日本原子力研究開発機構）	←									→
③拡散挙動、収脱着挙動（北海道大学、日本原子力研究開発機構）	←									→
(3) 廃棄物管理シナリオ評価										
①廃棄物物性、物量評価（北海道大学、日本原子力研究開発機構、福井大学）	←									→
②廃棄体の性状評価（北海道大学、福井大学）	←									→
③廃棄物管理シナリオ構築・評価（北海道大学、日本原子力研究開発機構、福井大学）	←									→
(4) 研究推進（北海道大学）	←									→

図 2.1　全体計画図

3. 業務の実施内容および成果

3.1 変質コンクリートの調製

3.1.1 コンクリート材料の事故時温度解析

コンクリート材料の事故時温度解析業務においては、1F 構造物をコンピューター上にて作製した上で、過酷事故時に生成された溶融デブリ崩壊熱を熱源とした三次元熱流体解析を実施し、1F コンクリート材料における温度分布を調査することを目的とした。汎用三次元数値流体力学（CFD）解析コード Star-CCM+を用いて、1F コンクリート構造物における伝熱特性ならびに事故時の温度変化の検証を行った。初年度である平成 28 年度には 1F 構造の調査を実施した上で計算領域を作成、平成 29 年度には領域別の熱計算を実施し、平成 30 年度には前年度までの解析結果の妥当性確認と、より詳細な伝熱解析計算を行い、局所的なコンクリート構造物の温度分布を評価した。

図 3.1-1 に Star-CCM+にて作成した 1F 建屋計算領域を示す。この計算領域を基に、作成した 1F 建屋全域の計算格子点（メッシュ）を図 3.1-2 に示す。実際の 1F 設計図面より、サプレッションチャンバー部からオペフロまでの建屋全域を網羅するコンクリート構造物を計算領域（ジオメトリ）として構成し、構造物を構成する材料（コンクリート、鉄、等）の物性値を定義した。CFD 解析ではこの計算領域を格子状に切断し、網目状の帯域を構成した。1F のように、複雑な形状を有する領域においては非構造格子（Unstructured Mesh）を採用するのが一般であり、本計算領域においても任意の形状を持つコントロールボリュームを採用した。PCV 周囲コンクリートへの熱伝達には配管系や鉄筋構造物による影響が大きいと考えられるが、詳細な 1F 構造物レイアウト情報が入手できなかったため、コンクリート構造物以外による伝熱事象は評価対象外とした。

各格子点においては、式(1)の輸送方程式を基盤とした、質量保存、運動量保存、エネルギー式による温度計算を実施した。前述したメッシュが計算格子によって定義された計算すべき変数の離散位置となる。温度や圧力に依存する流体物性値は状態式によりタイムステップ毎に更新される仕組みとなっている。

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_{\tilde{V}} \boldsymbol{W} d\tilde{V} + \oint [\boldsymbol{F} - \boldsymbol{G}] \cdot d\tilde{a} = \int_{\tilde{V}} \boldsymbol{H} d\tilde{V} \tag{1}$$

左辺における ***W***, ***F***, ***G*** 項はそれぞれ、式(2)によって表され、質量・運動量・エネルギー保存式の計算が行われる。右辺にある *H*項は流体に働く力を現わしている。

$$\boldsymbol{W} = \begin{bmatrix} \rho \\ \rho v \\ \rho E \end{bmatrix}, \quad \boldsymbol{F} = \begin{bmatrix} \rho(v - v_g) \\ \rho(v - v_g) * v + P\boldsymbol{I} \\ \rho(v - v_g)H + p v_g \end{bmatrix}, \quad \boldsymbol{G} = \begin{bmatrix} 0 \\ \boldsymbol{T} \\ \boldsymbol{T} \cdot v + q'' \end{bmatrix} \tag{2}$$

式(2)中の *ρ, v, E, I, H, T, q"* はそれぞれ、流体密度、速度、単位質量におけるエネルギー量、単位行列、エンタルピー、粘性せん断応力、熱流束である。本解析において使用した汎用 CFD コード Star-CCM+においては、積分形の保存方程式式(1)より導出可能な有限体積法が採用され、解領域を有限個の隣接するコントロールボリュームに分割し、保存方

程式を各体積に対して計算する。本手法はどのような形状の格子にも適応可能なため、複雑形状に対しての使用に適した計算方法である。各コントロールボリュームの中央位置には格子点が定義され、計算されるべき変数値が与えられる。

工学分野における熱流体現象の多くは乱流である。PCV 内の熱伝達に影響を及ぼすと考えられる気相の対流を再現するために、K-epsilon 乱流モデルを採用した。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k)+\frac{\partial}{\partial x_j}(\rho k u_j)-\frac{\partial}{\partial x_j}\left[\left(\mu+\frac{\mu_t}{\sigma_k}\right)\frac{\partial k}{\partial x_j}\right]=\mu_t(P+P_B)-\rho\varepsilon-\frac{2}{3}\left(\mu_t\frac{\partial u_i}{\partial x_i}+\rho k\right)\frac{\partial u_i}{\partial x_i} \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\varepsilon)+\frac{\partial}{\partial x_j}(\rho\varepsilon u_j)-\frac{\partial}{\partial x_j}\left[\left(\mu+\frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon}\right)\frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j}\right]=\rho C_{\varepsilon 1}S_\varepsilon-\rho C_{\varepsilon 2}\frac{\varepsilon^2}{k+\sqrt{\nu\varepsilon}}+C_{\varepsilon 3}\frac{\varepsilon}{k}\mu_t P_B+C_{\varepsilon 4}\rho\varepsilon\frac{\partial u_i}{\partial x_i} \quad (4)$$

ここで k は乱流エネルギーであり、輸送方程式式(3)の解より、速度スケールが決定される。式(4)に表された ε はエネルギー散逸率である。気相の密度（ρ）は理想気体を仮定し、次式により各格子点にて算出した。

$$\rho=\frac{P_{abs}}{RT} \quad (5)$$

落下デブリの温度を定義するにあたっては、熱伝導および熱伝達が支配的な伝熱要因と仮定した。全核燃料がベースマット部に落下したと仮定し、サンプピットならびに周囲方向の一部へ広がった形状を仮定した。1 号機においては合計 120 トンの二酸化ウラン（UO_2）の物性値を使用した。本解析にて使用した個体物性値を表 3.1-1 に示す。

本研究にて使用する上述した計算手法の妥当性を検証するため、まずは、東京電力より公開されている 2015 年 5 月時点での実測値温度との比較を行った。図 3.1-3 に示された結果では、高度（Elevation）10-15m 近辺は制御棒案内管が位置しており、デブリが複雑な形態で付着していることが実測値との誤差要因と考えられるが、 21 の計測点において±8℃ の誤差範囲で 1F 温度予測が可能であることを確認した。

以上の結果を踏まえ、平成 29 年度にはコンクリート構造物内における計算領域を絞り込んだ上で伝熱解析を実施し、局所的なコンクリート構造物の温度分布を評価した。具体的には、溶融炉心落下直後に特に高温に曝されたと考えられる下部コンクリート近辺と、格納容器周辺の構造体における 2 箇所に分類し、構造物伝熱解析に着手した。1F 事故直後の温度履歴計算を困難にする根本的な不確かさ要因として、

(1)溶融デブリ熱流束値の不確かさ(既存の崩壊熱式適用範囲外)、
(2)炉心溶融過程の不確かさ、
(3)溶融デブリ形状の不確かさ、
(4)溶融デブリによる構造体への影響の不確かさ、

の 4 点が挙げられるが、これらの不確かさ要因は、熱流動解析初期値を決定する上で重要なパラメータであり、温度解析結果を大きく左右するものと考えられる。溶融デブリの発熱量および初期温度値に関しては、欧州等で実施された過去の溶融デブリ実験結果を基に

推察する必要がある。また、摂氏 2,000℃近くまで上昇したと考えられる溶融デブリがコンクリート等の構造物と接触する際にいかなる熱的、構造的反応が生じるかも現段階では明らかにされていない。以上の不確かさによる温度解析への影響を最小限に抑え、現時点で最も現実的な解析を実施するため、本解析においては世界的に認知されている一次元過酷事故解析コード MAAP (Modular Accident Analysis Program) 5.01 の結果を初期値として使用した。図 3.1-4 に MAAP より算出された事故直後の格納容器温度履歴を示す。事故直後から 2 日間の間で、時間軸とほぼ線形の最高温度に到達していることが前年度の計算結果より確認できており、事故直後の温度上昇は次式により線形近似が可能となる（図 3.1-5）。

$$T_{PCV}(t) = 0.003t + 21.584 \text{ for } 0 \le t \le 10^5 \quad (6)$$

ここで T_{PCV} は格納容器温度（℃）、t は事故経過時間(sec)であり、t = 0 sec は 3 月 11 日午後、最高温度到達時（t = 10^5sec）は 3 月 13 日 0 時に該当する。格納容器は厚さ 3 cm の鋼鉄で製造されており、高い熱伝導性を有する物質と考えられるため、格納容器外壁温度の温度上昇傾向も格納容器温度と同等であったと仮定した。1F 格納容器外壁と格納容器周囲を覆うコンクリート構造体の間には熱膨張等の考慮から約 5 cm の空洞(エアギャップ)が存在することで知られている。本解析においては、約 2 日間に及ぶ格納容器温度上昇経過を考慮し、エアギャップ温度と格納容器温度は同等であると仮定した。また、格納容器温度上昇時の圧力容器表面温度(T_{RPV})は MAAP コードからの計算結果から 2800℃とした。以上の値から、格納容器外部へ伝わる熱流束（q”）は以下式より算出可能となる。

$$q'' = \frac{q}{A_{RPV}} = h(T_{RPV} - T_{PCV}) \quad (7)$$

ここで、熱伝達係数 h が必要となるが、レイリー数(*Ra*)とプランドル数(*Pr*)の関数である Churchill-Chu 相関式を用い、ヌセルト数(Nu)より算出が可能となる。

$$Nu = \frac{hL}{k} = \left\{ 0.825 + \frac{0.387 Ra_L^{1/6}}{\left[1 + (0.492/\Pr)^{9/16}\right]^{8/27}} \right\}^2 \quad (8)$$

Ra 数と *Pr* 数の定義は下記式の通りであり、格納容器内の流体物性値(熱拡散係数α、動粘度ν)と温度差(T_{RPV}-T_∞)、発熱体長さ(L)の関数として表される。

$$Ra = \frac{g\beta(T_{RPV} - T_\infty)L^3}{\alpha\nu} \quad (9)$$

$$\Pr = \frac{\nu}{\alpha} \quad (10)$$

式(7)―(10)を用いることで格納容器内面から外壁への熱流束の導出が可能となり、コン

クリート内部における熱計算値への適用が可能となる。

図 3.1-6 に局所熱計算の解を図示する。PCV エアギャップと隣接するコンクリート壁 5 cm 内においては、最高温度 350 ℃近くまで上昇した結果が得られた。また、コンクリート厚さ 5 cm の上昇と共に温度は約 25 ℃ずつ減少する傾向が得られた。高熱伝導率値を有する鉄筋がコンクリート内部に存在する場合、熱伝導率は大きいものと考えられ、コンクリート温度も 350 ℃以上に上昇するものと考えられる。以上の、平成 28 年度ならびに 29 年度の計算結果から、事故直後に生成された溶融デブリからの崩壊熱により顕著な伝熱が懸念される部位は格納容器（PCV）周辺領域のコンクリートと下部コンクリート部位であることが明らかとなった。また、三次元熱流体計算は膨大な計算時間を必要とし、本研究により購入したワークステーションの性能にも上限があることから、PCV 周囲ならびに下部のコンクリートに着目し局所的な温度分布評価を実施することとした（図 3.1-7）。

溶融デブリから発生する崩壊熱値を本計算にて考慮するため、一次元過酷事故解析コード MAAP5.01 からの計算結果を使用した崩壊熱値を図 3.1-8 に示す。MAAP からの計算結果から、事故直後の最大崩壊熱値は 69.3 MW と推察され、時間とともに徐々に崩壊していくことで知られている。本解析においては、それぞれの崩壊熱値において定常計算（時間による変化を考慮しない）を採用し、コンクリートへの伝熱評価を実施した。

図 3.1-9 から 3.1-11 に、崩壊熱値 69.3、10、2.5 MW 時の温度分布コンター図を示す。堆積したデブリ近傍は 3000℃近くにまで達し、放射状に減熱していく傾向にあることが分かる。下部コンクリートにおいては 8 割強の領域で 1500℃以上の熱に曝されている。PCV 周囲のコンクリートは 350～500℃近くまで達し、PCV 外壁から離れるにつれ徐々に減熱していく傾向が確認された。最高到達温度はデブリ位置からの高さに依存しており、デブリとサプレッションチェンバー部に近い高度 15m（H=15m）においては 500℃近傍までの温度上昇が確認された。

図 3.1-12 から 3.1-14 に各 PCV 高さ（高度 15, 25, 37.5m ）におけるコンクリート厚さ方向に対する温度分布を示す。これらの結果から、PCV 外部に隣接するコンクリート部は最高温度 350～500℃の範囲で 50 時間以上維持されていたと考えられる。また、下部コンクリートにおいては前年度の成果より 292～1800℃の範囲の温度分布であることが本計算により明らかになった。

事故時に高温に曝されたコンクリート構造物を模擬した硬化セメントペーストおよびモルタル試料は、本項の検討を踏まえ、加熱温度、加熱時間等様々な条件下について調製した。さらに、経時変化を模擬した炭酸化や、冷却水による溶脱を模擬した溶解変質の核種移行への影響についても検討した。硬化セメントペーストおよびモルタル試料の調製方法については、3.2 節のそれぞれの項で詳細に述べる。

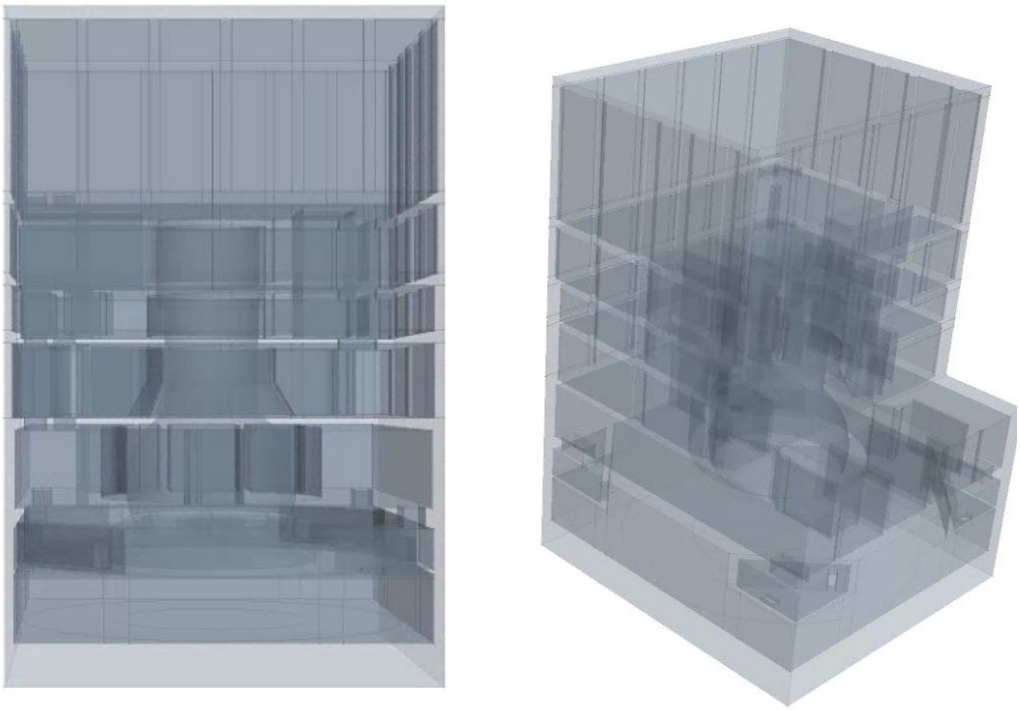


図 3.1-1　STAR-CCM+にて作製した１Ｆ建屋計算領域

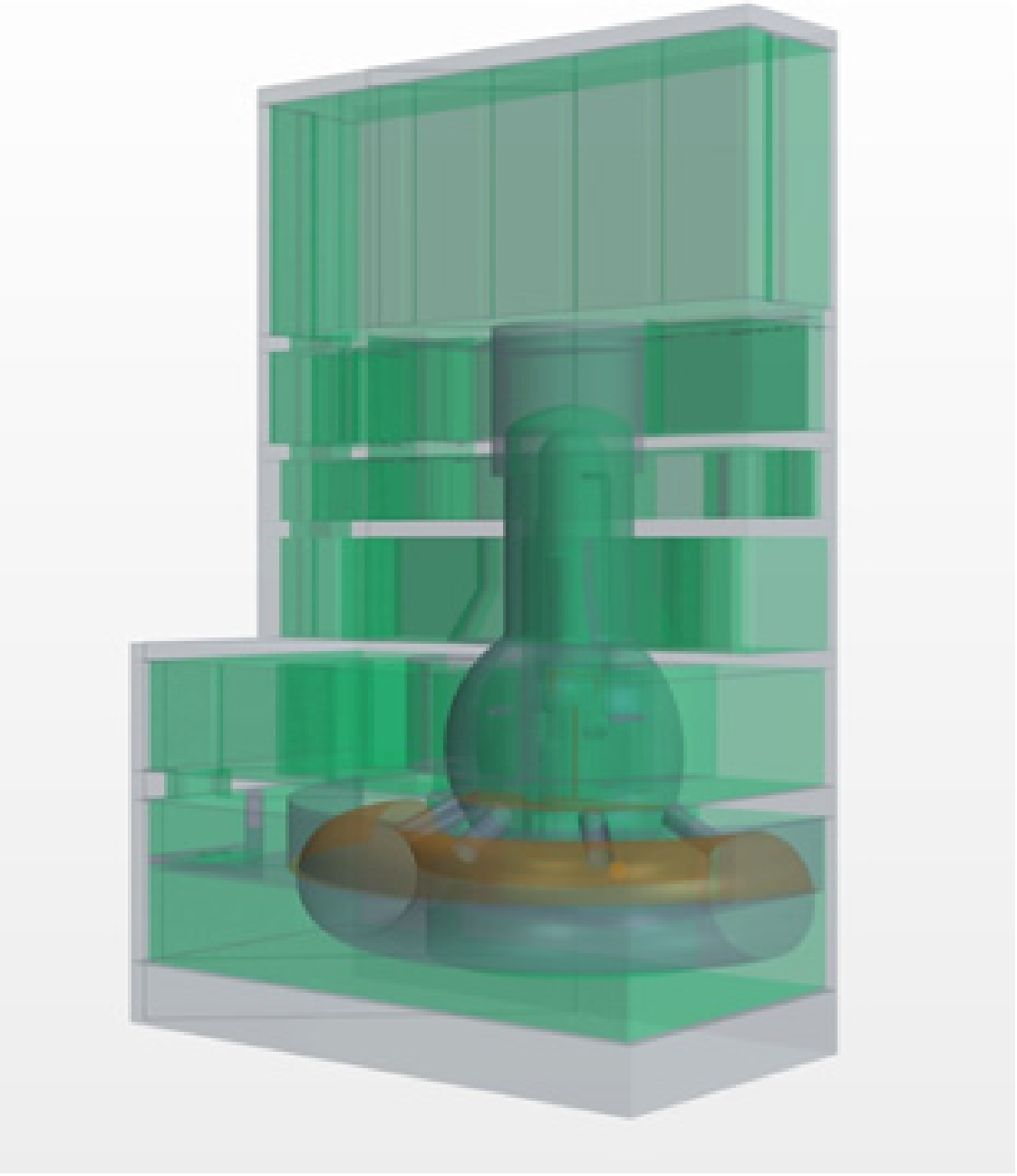


図 3.1-2　福島第一原子力発電所（1F）建屋計算領域

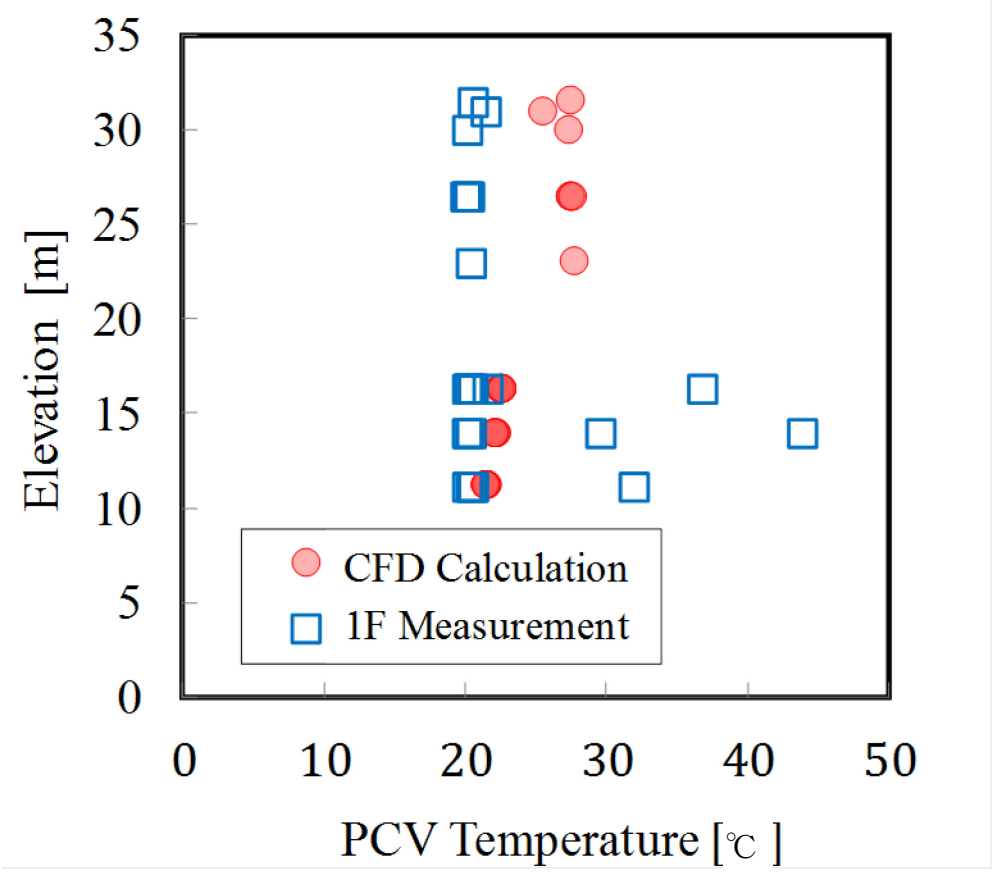


図 3.1-3　格納容器内の計測値と計算値の比

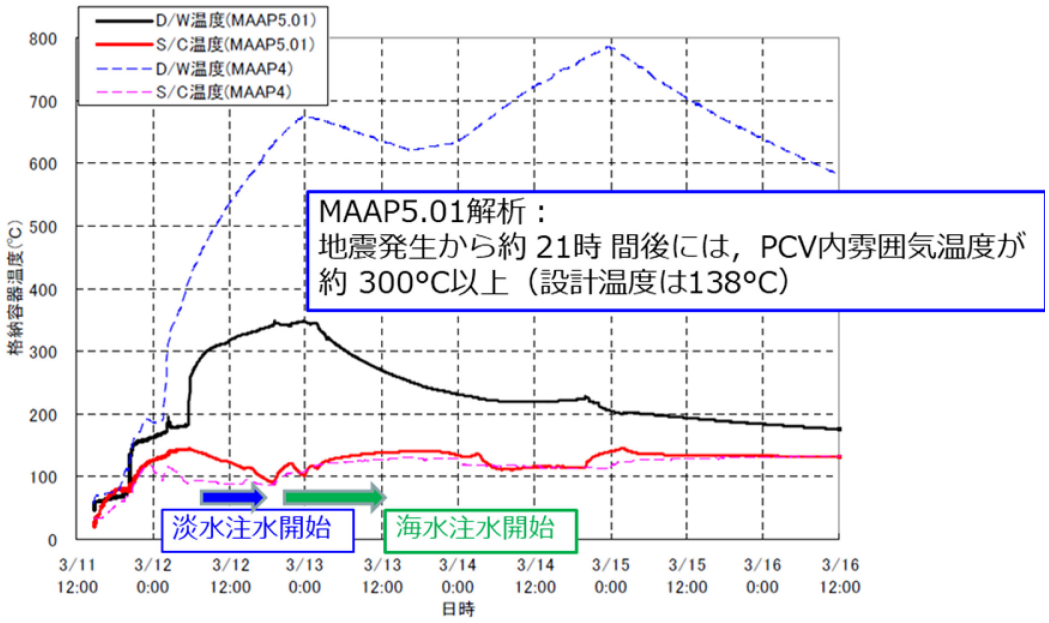


図 3.1-4　MAAP コードによる格納容器温度履歴

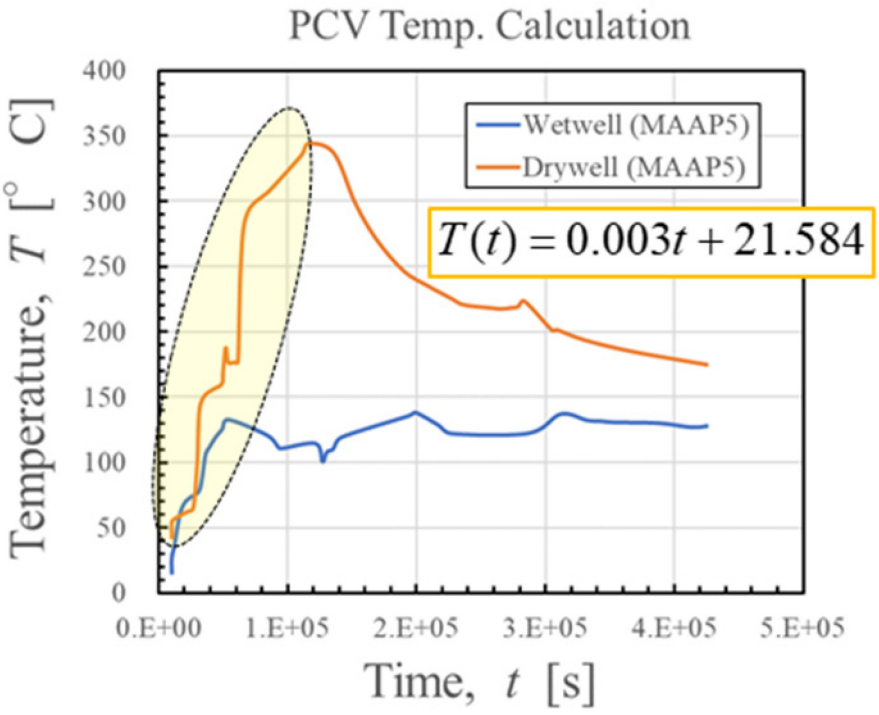


図 3.1-5　事故直後の温度履歴推算式

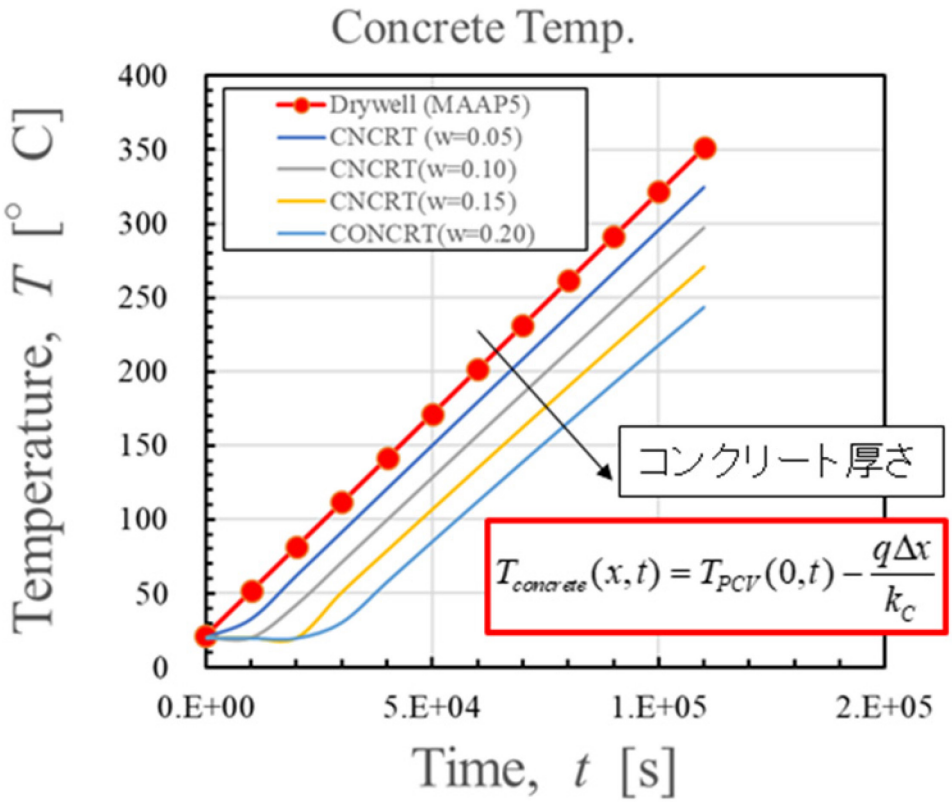


図 3.1-6　PCV 外壁部における事故直後コンクリート温度履歴

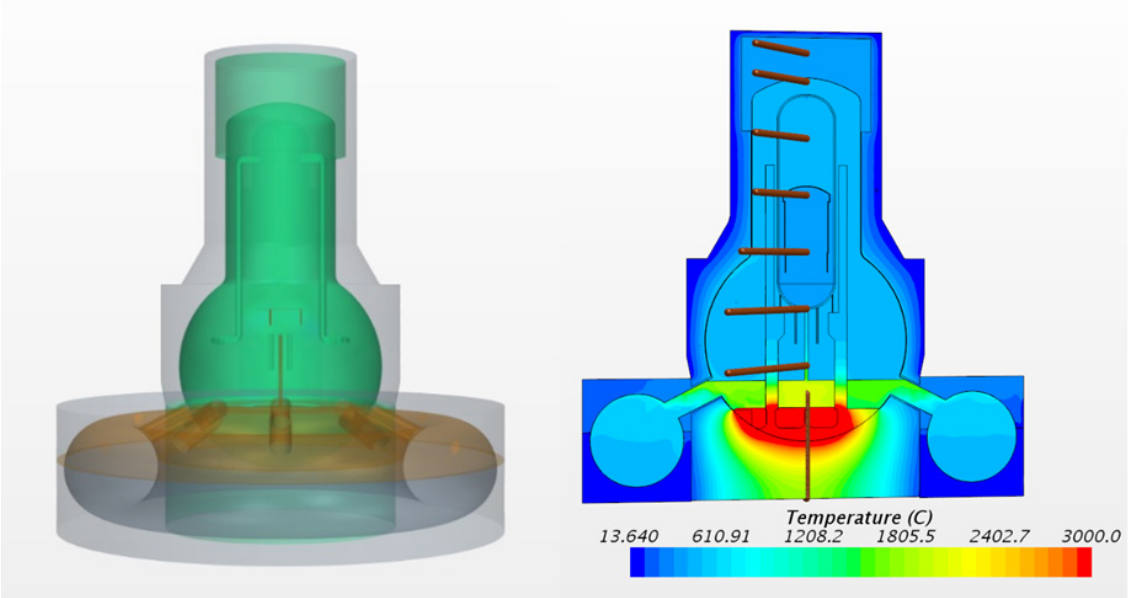


図 3.1-7　1F 格納容器（PCV）周囲コンクリートにおける計算領域

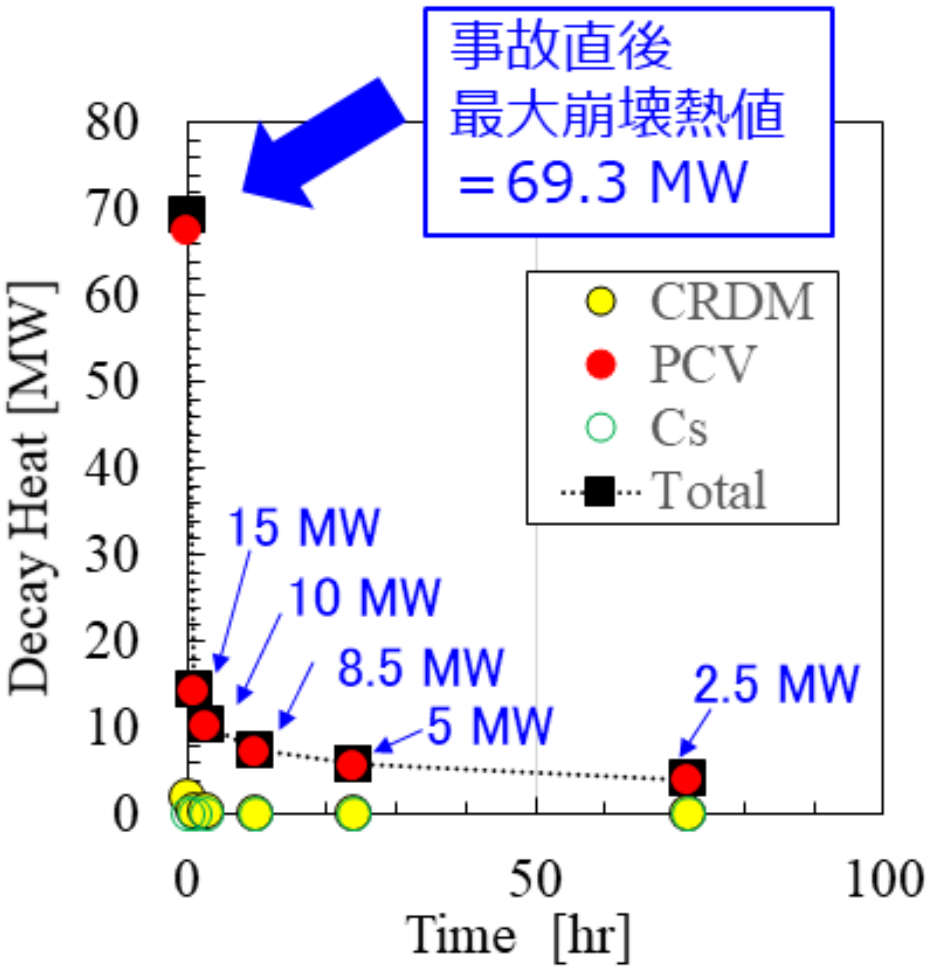


図 3.1-8　MAAP 解析結果からの事故直後崩壊熱算出値

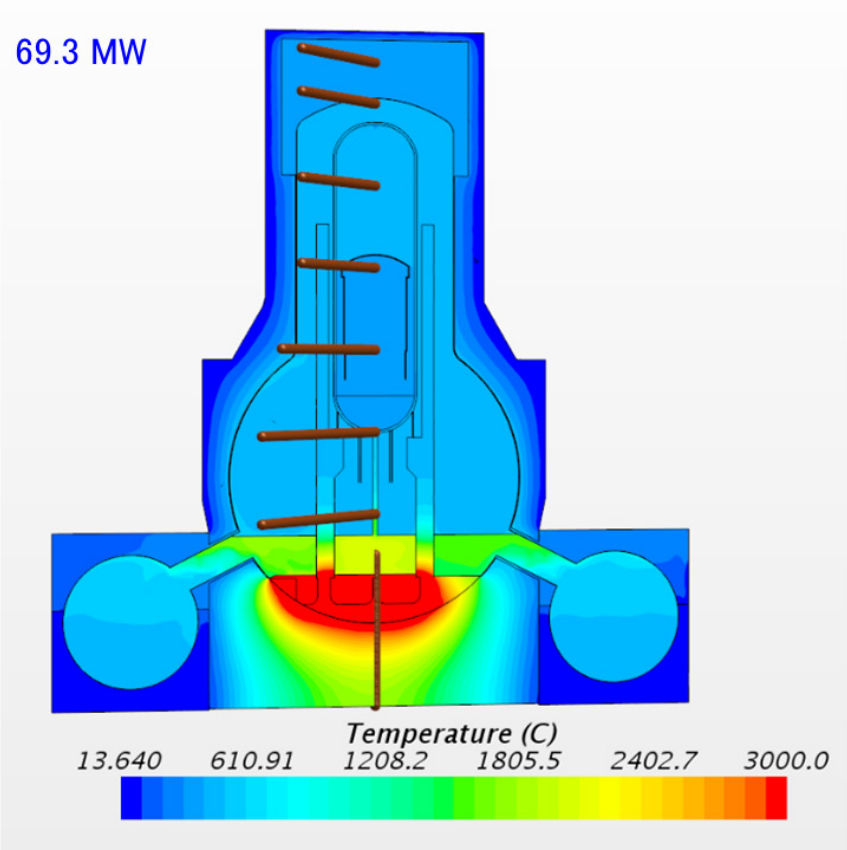


図 3.1-9　崩壊熱値 69.3MW 条件での 1F 温度分布

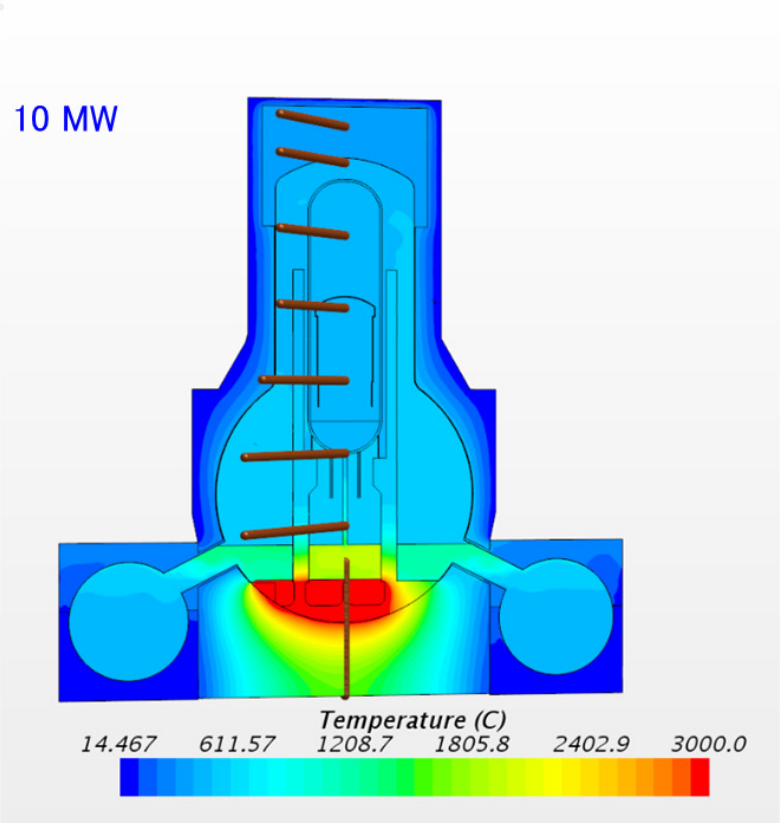


図 3.1-10　崩壊熱値 10MW 条件での 1F 温度分布

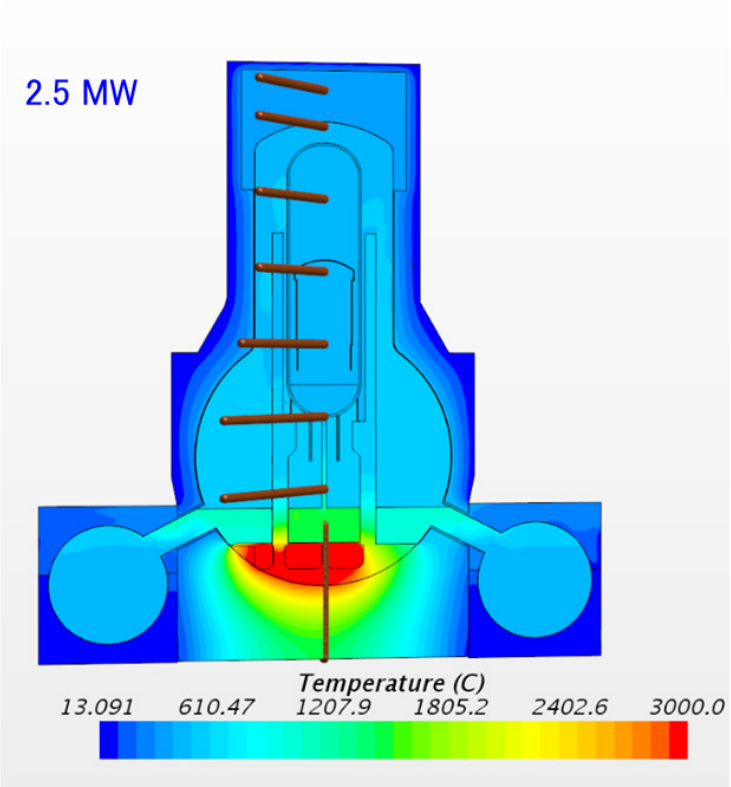


図 3.1-11　崩壊熱値 2.5MW 条件での 1F 温度分布

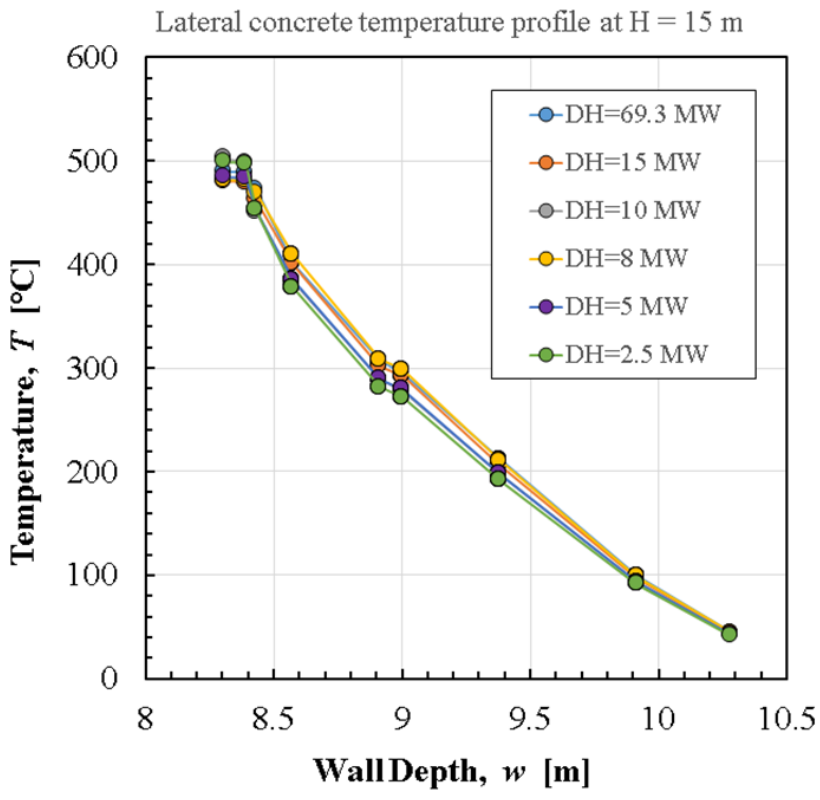


図 3.1-12　高度 H=15m における PCV 外壁コンクリート内部温度

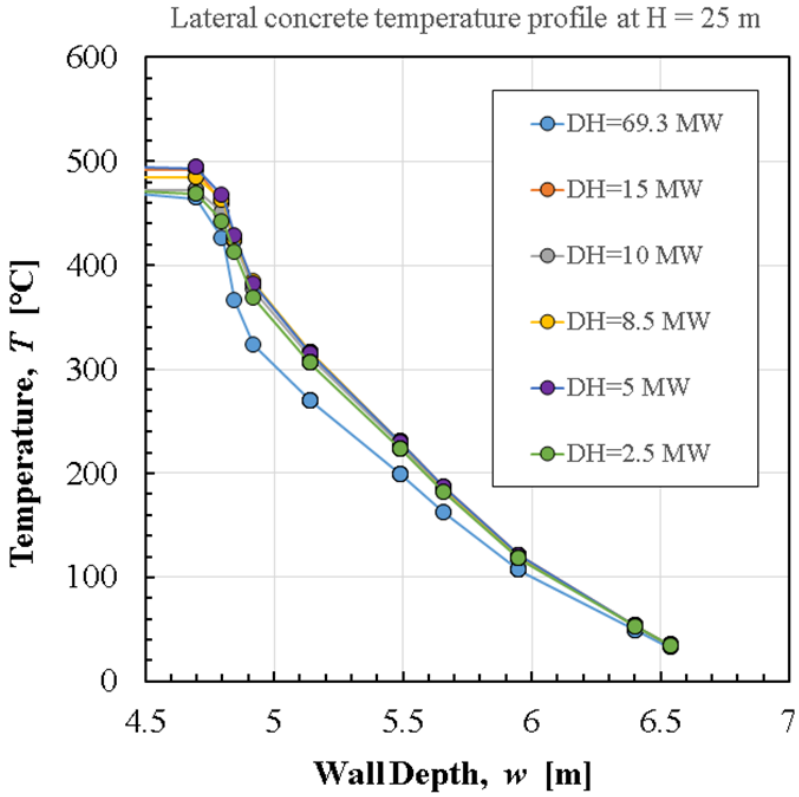


図 3.1-13　高度 H=25m における PCV 外壁コンクリート内部温度

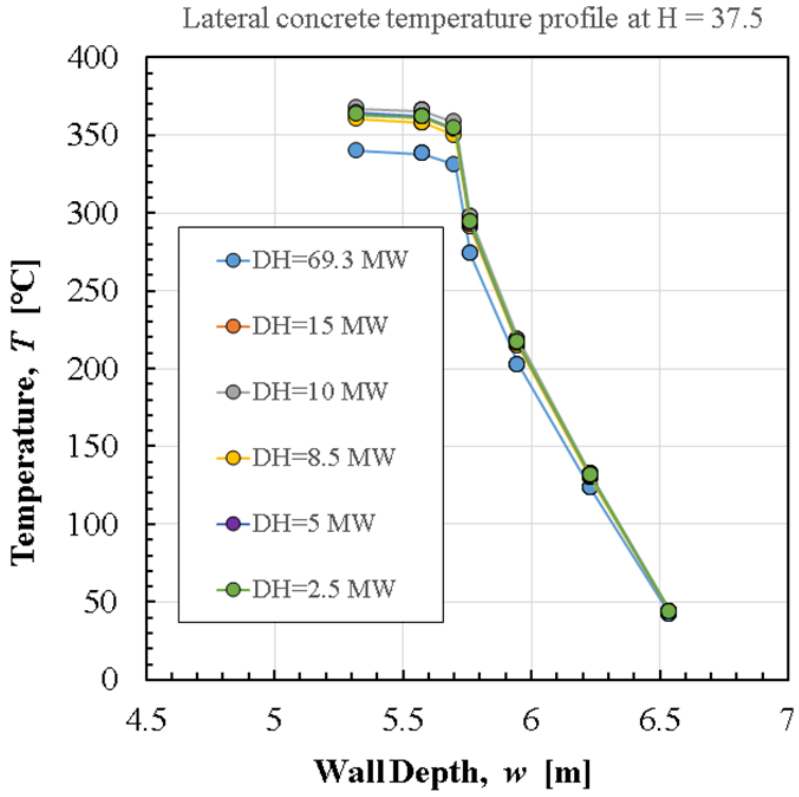


図 3.1-14　高度 H=37.5m における PCV 外壁コンクリート内部温度

表 3.1-1　STAR-CCM 解析に使用した個体物性値

固体名	密度 [kg/m^3]	比熱 [J/kg･K]	熱伝導率 [W/m･K]	使用した領域
炭素鋼	7832	434	63.9	RPV,PCV,ベント管,S/C
ステンレス	8050	480	15.1	シュラウド
コンクリート	2240	750	0.53	ペデスタル, PCV 下方コンクリート
UO_2	11000	280	10	燃料デブリ

3.2 核種移行特性の評価

3.2.1 微細構造評価

事故時の環境に曝されたコンクリート構造物を模擬した試料を調製し、非破壊 CT-XRD 連成法含む種々の手法で微細構造評価を行った。

(1) 加熱の継続時間による影響

①供試体の概要

普通ポルトランドセメント（密度：3.16g/cm^3）を用いたセメントペーストを作製した。水セメント比(w/c 比)が 0.6 になるように計量し、40×40×160mm の鋼製型枠に打設した。材齢 1 日後に脱枠し、材齢 28 日まで水中養生を行い、その後は気中放置した。約 1 ヶ月気中放置した後、測定用に 2.5×2.5×5mm の角柱状に加工したものに加熱試験を行い、非破壊 CT-XRD 連成法の測定を行った。なお加熱条件は昇温速度 10℃/min、最高温度 400℃を 12 時間継続させ、降温速度 10℃/min で行った。これを供試体 A と呼ぶ。また約 8 ヶ月気中放置した後に、上述と同様の大きさの角柱状に加工したものを 3 体作製して加熱試験を行い、非破壊 CT-XRD 連成法の測定を行った。なお加熱条件は昇温速度 10℃/min、最高温度 400℃を 2、6、24 時間継続させ、降温速度 10℃/min で行った。これを供試体 B～D と呼ぶ。一般的に、セメント水和物であるポルトランダイトは 450～500℃で分解すると言われているが、長時間加熱すれば 300～400℃でも徐々に分解するという報告もあり[1]、継続時間の影響を検討するため、このように設定した。

②非破壊 CT-XRD 連成法の測定条件

測定条件は、供試体 A の測定時において、CT 測定は X 線エネルギーが 45keV、投影数が 1500 枚、露光時間が 1.2s、解像度は 2.42μm/pixel および 2.42μm/slice で行い、XRD 測定は、ビームサイズ水平方向 0.05mm×高さ方向 0.3mm、回折角 2θ=10°、照射時間 300s で行った。

供試体 B～D の測定時において、CT 測定は X 線エネルギーが 25keV、投影数が 1500 枚、露光時間が 0.4s、解像度は 2.44μm/pixel および 2.44μm/slice で行い、XRD 測定は、ビームサイズ水平方向 0.05mm×高さ方向 0.3mm、回折角 2θ=10°、照射時間 300s で行った。

③測定結果と考察

1) CT 測定

図 3.2-1 に各供試体の CT 断面画像を示す。供試体 A と供試体 B～D では画像の鮮明度が異なって見えるが、これは CT 測定時の X 線のエネルギーが影響していると考えられる。またひび割れについて着目すると、供試体 B ではあまり見受けられなかったが、供試体 C では供試体の外縁部に微細なひび割れが見受けられる。また供試体 A でもひび割れが明確に確認でき、供試体 D では供試体外縁部に多数見受けられる。これは後述の XRD の結果とも照合すると、ポルトランダイトの分解が発生し、脱水反応により更にセメントペーストが収縮したためと考えられる。

2) XRD 測定

XRD の関心領域を供試体の外縁部と中心部に設定し、それぞれ点 X、点 Y とする。

図 3.2-2 に各供試体の XRD プロファイルを示す。供試体 A と供試体 B～D では、プロファイルのピーク幅の違いが見られた。これは違う実験期で行ったため、実験装置の配置の微差が影響したためと考えている。供試体 B では点 X、点 Y 共にポルトランダイトのピークが認められた。また供試体 C のプロファイルでも同様の結果であった。供試体 A において、点 X ではポルトランダイトのピークはほとんど見られず、ライムやカルサイトのピークが見られた。点 Y ではポルトランダイトのピークが多く見受けられた。ビーライトのピークも確認できたが、これは未水和のセメントが存在していることに起因していると考えられる。また供試体 D でも同様の傾向が見られ、点 X ではライムやカルサイトのピークが、点 Y ではポルトランダイトのピークがそれぞれ確認できた。一般に、ポルトランダイトが高温に曝されることによって以下の反応が起きることが知られている。

$$Ca(OH)_2 \Leftrightarrow CaO + H_2O \uparrow$$

本実験でも 2 時間および 24 時間加熱した供試体において点 X でポルトランダイトのピークが消失したのは、12 時間と長時間加熱したため分解反応が進行したと考えられる。またライムの他にカルサイトが生じたのは、供試体外の空気中の CO_2 とライムが反応したためと考えられる。また分解して生じたライムは、冷却中に水蒸気と再水和して結晶性の低いポルトランダイトが生成するという報告もある[2]。点 Y で確認されたポルトランダイトは、供試体内に滞留した水蒸気と化合して生じたと考えられる。以上より、本実験の範囲内では 400℃で 12 時間以上セメントペーストを加熱することにより、ポルトランダイトの分解が見られることが明らかになった。またその分解に起因して、ひび割れが増加することが示唆された。

(2) 骨材が高温後の変質に与える影響

異なる骨材種を用いた供試体に生じるひび割れに与える最高温度の影響を調べた。

①供試体の概要

使用した材料は、普通ポルトランドセメント（密度：3.16 g/cm^3）、および細骨材として石灰石砕砂（密度：2.59 g/cm^3）、天然硅砂（密度：2.64 g/cm^3）を使用し、それぞれ C、S と呼ぶこととする。粒径は 0.6～1.0mm に調整した。また水については、上水道水に加えて気泡の混入を防ぐために消泡剤を加えた。モルタルは w/c 比が 0.5 および骨材体積比が 0.05 になるように計量、練り混ぜし、40×40×160mm の鋼製型枠に打ち込んだ。材齢 1 日後に脱枠し、材齢 14 日まで水中養生を行い、測定用に 2.5×2.5×5mm の角柱状に切断加工したものに加熱試験を行い、非破壊 CT-XRD 連成法の測定を行った。なお加熱条件は昇温速度 10℃/min、最高温度 400℃、600℃、800℃を 2 時間継続させ、降温速度 10℃/min で行った。

②非破壊 CT-XRD 連成法の測定条件

測定条件は、CT 測定は X 線エネルギーが 25keV、投影数が 1500 枚、露光時間が 0.4s、解像度は 2.45μm/pixel および 2.45μm/slice で行い、XRD 測定は、ビームサイズ水平方向 0.05mm×高さ方向 0.3mm、回折角 2θ=10° 、照射時間 300s で行った。

③測定結果と考察

図 3.2-3 は各供試体の骨材が視認できる断面の CT 断面画像である。なお C-800℃の供試体については、測定前に崩壊した。これは予備試験として行った骨材のみでの粉末 XRD 試験において、石灰石砕砂の主成分であるカルサイトが分解したためと考えられる。図 3.2-3 の断面画像から、S-400℃の供試体を除いて、全ての供試体において骨材に起因するひび割れが確認された。また C-600℃では骨材内部にひび割れが見受けられた。これは石灰石の硬度が硅石よりも低いためと考えられる[3]。

関心領域を供試体の中央高さの 400 層とし、画像処理により骨材の抽出と平均ひび割れ幅および最大ひび割れ幅を算出した。図 3.2-4 に骨材とひび割れ幅の分布の三次元像の一例を、図 3.2-5 に最大温度と平均ひび割れ幅の関係を示す。図 3.2-4 によると、供試体外縁部、および骨材近傍で生じたひび割れの幅が大きいことがわかる。図 3.2-5 によると平均ひび割れ幅は 400℃については C では 0.022mm であったのに対し、S では 0.015mm であった。600℃については C が 0.026mm であったのに対し、S は 0.025mm と S-400℃と比較すると大きくなった。

また、図は掲載していないが、骨材を関心領域とした XRD 測定では、加熱による鉱物の変化は見られず、骨材の熱膨張とセメントペーストの収縮からひび割れが発生していると考えられる。

(3) 加熱後に水の作用を受けた場合の影響

①供試体の概要

セメントペーストを調製した。使用した材料は、普通ポルトランドセメント（密度：3.16 g/cm^3）で、w/c 比が 0.6 になるように計量、練り混ぜし、40×40×160mm の鋼製型枠に打ち込んだ。材齢 1 日後に脱枠し、水中で約 12 ヶ月の養生を行った。これは十分な水和反応を促すためである。その後、セメントペーストを 2.5×2.5×5mm の角柱に切断加工した。養生後、長期間供用されたコンクリートを模擬するため、促進中性化試験を行った。100℃の恒温槽内の容器に試料を静置し、その容器内に 99%CO_2 ガスを 1 日毎、計 7 日間注入した。次に、加熱試験を行った。昇温速度 10℃/min に設定し、最高温度まで上げた。設定最高温度は 200、400、600、800℃であり、12 時間継続させた。その後、室温まで 10℃/min に設定して温度を低下させた。また非加熱の供試体も用意した。非破壊 CT-XRD 連成法で初期測定した後、浸漬試験を行った。浸漬はイオン交換水中で 28 日間行い、その間に 7 日毎に水を交換した。

②非破壊 CT-XRD 連成法の測定条件

CT 測定は X 線エネルギーが 25keV、投影数が 1500 枚、露光時間が 0.4s、解像度は 2.44μm/pixel および 2.44μm/slice で行い、XRD 測定はビームサイズ水平方向 0.05mm×高さ方向 0.3mm、回折角 2θ=10°、照射時間 300s で行った。

③測定結果と考察

1)CT 測定

図 3.2-9 に各供試体の浸漬前後の断面画像を示す。断面画像は供試体の中央高さである。浸漬後の画像から、非加熱、200℃、400℃で加熱した供試体の外縁部が疎になっていることが見受けられる。

図 3.2-10 に各供試体の関心領域における GSV のヒストグラムを示す。関心領域は供試体中央高さに存在する連続した 300 層の断面画像である。浸漬前のヒストグラムを比較すると、各供試体で GSV が 51、160 程度でピークが見られるが、これらはそれぞれ空気とセメントペーストを表していると考えられる。浸漬後のヒストグラムを比較すると、非加熱ではセメントペーストのピーク位置が 148 程度へと移動しているのがわかる。また 200℃では 155 程度へと若干移動しており、400℃ではあまり変化は見られない。非加熱よりも、200℃、400℃でピークの移動が少なかったことに関しては、中性化したセメントペーストは細孔構造が密になり、加熱することで内部の未水和のセメントの水和が促進されたためと考えられる[4]。

2)XRD 測定

図 3.2-9 に示すように、XRD の関心領域を供試体の隅角部から中央部へ等間隔な 4 点に設定した。図 3.2-11 に各供試体の浸漬前後の XRD プロファイルを示す。非加熱において、浸漬前では全ての点において弱いポルトランダイトのピークの他、カルサイトのピークが見受けられた。これは加熱前の促進中性化試験で生じたものと考えられる。浸漬後は全ての点においてカルサイトのピークが認められたが、ポルトランダイトのピークが消失していた。これは浸漬によりポルトランダイトが溶脱したためと考えられる。200℃では、浸漬前は非加熱と同様にポルトランダイトとカルサイトのピークが確認された。浸漬後は、点 1、点 2 ではカルサイトのピークのみが見受けられたが、点 3、点 4 では弱いポルトランダイトのピークも確認された。

(4) 蛍光エポキシ含浸法による微細構造解析

①供試体の概要

普通ポルトランドセメント（密度：3.16g/cm^3）および静内川産の川砂（密度：2.71g/cm^3）を使用し、w/c 比 0.6、砂セメント比 2.5 で調製したモルタル試料を使用した。試料のサイズは、後述の管状電気炉の炉内直径に合致するように、φ50×100mm とした。打込み後、材齢 1 日後に脱枠し、約 3 ヶ月間の水中養生を行った。

加熱実験には炉内寸法φ50×300mm の管状電気炉を使用した。試料を炉心中央に設置し、プログラム運転による加熱を行った。試料を水中養生槽から取り出し、24 時間気中に放置した後、試料内部の自由水を脱水し、加熱時の爆裂を防ぐため、最高温度 105℃で 24 時間の加熱を行った。その後、室温まで徐冷をした試料を、最高温度 400℃で 72 時間、および 800℃で 36 時間の加熱処理を行い、室温まで徐冷した。昇温速度は 10℃/min に設定し、徐冷は加熱終了後に電気炉の電源を消し、炉内を開放して自然冷却とした。

②蛍光エポキシ樹脂含浸法

加熱後の試料に対し、手塚らの手法を参考に蛍光エポキシ樹脂含浸法による微視的断面観察を行った[6]。これは加熱後に試料を冷却した真空容器内に設置し、蛍光剤を添加した超低粘度エポキシ樹脂に浸漬させ、減圧状態と大気圧状態を繰り返して含浸させる手法である。本実験ではエポキシ樹脂が硬化後に、供試体の中央高さを切り出し、暗室内でブラックライトを照射し、試験体表面をデジタルカメラで撮影した。

③測定結果と考察

図 3.2-12 は各供試体の断面画像である。これによると 400℃では、エポキシの含浸が供試体外縁部にのみ見受けられたが、800℃加熱においては内部まで含浸が見られた。これは 3.2.1(1)で検討したように、400℃の加熱では外縁部はポルトランダイトの分解が起こりその部分が含浸したと考えられ、800℃の加熱では、ポルトランダイトおよび C-S-H が分解し細孔構造が疎になり、エポキシが含浸したと考えられる。また骨材周囲のひび割れは観察されなかったが、これは作製した供試体がモルタルと骨材の粒径が小さいこともあり、可視できる大きなひび割れが生じるほどの膨張が生じなかったことによると考えられる。

積算温度は双方ともに同じ 28800(℃・h)であるが、蛍光エポキシ塗料の含浸深さは大きく異なる結果となった。したがって、最高温度が大きいほど、含浸深さは増加しており、空隙構造や含水率分布に大きな影響を与えることが示唆された。

(5)水銀圧入法による微細構造解析

①供試体の概要

硬化セメントペースト試料は、w/c 比が 0.36 となるように普通ポルトランドセメントとイオン交換水を混ぜ、ミキサー（HOBART 社製、N50）を用いてブリージング水が現れなくなるまで混錬した。得られた混合物を、内径 24.5 mm、高さ 54.5 mm のポリプロピレン製の型枠（ニッコーハンセン株式会社製、プッシュバイアル PV-20）に注ぎ入れ、気泡を除去し、蓋をして 1 日間静置した後、容器から取り出し、セメント平衡水中で 28 日間、50 ℃で養生した。セメント平衡水は、セメント粉末 200g とイオン交換水 2 L を容器に入れ混ぜた後、2 日間以上静置したものを使用した。

養生が終了した硬化セメントペースト試料は、真空にした 60℃のオーブンで 3 日間乾燥させた後、電気炉（ヤマト社製 FO 100 マッフル炉）を用いて加熱した。目的温度（80, 200, 300, 400）まで昇温速度は 1℃/min とし、質量が恒量になるまで（72 時間）温度を維持した後に、炉内にて自然冷却した。加熱処理硬化セメントペーストは、セメント平衡水中にて 5 日間静置して再水和させた。未加熱試料、加熱試料、および加熱・再水和試料を対象として水銀圧入試験を実施した。

②測定結果と考察

図 3.2-13 から図 3.2-15 に、水銀圧入法によって得られた加熱および再水和による細孔容積分布の変化を加熱温度ごとに示す。全ての加熱温度において、加熱処理により細孔容積のピーク位置は細孔直径が増加する方向にシフトした。未加熱試料においては、細孔直径～10nm に細孔容積のピークがあるのに対し、200℃および 300℃加熱では 30～40nm に、400℃加熱では～50nm に増大した。これらの加熱試料を再水和処理すると、細孔容積のピークは～20nm 前後に減少した。加熱による脱水・脱水和により細孔直径は増大し、再水和によりこの影響が緩和するが、未加熱試料と同じ状態には戻らないことがわかった。また 400℃加熱の場合には、細孔直径の増大に加えて、再水和の際に全細孔容積が大幅に減少することが明らかになった。

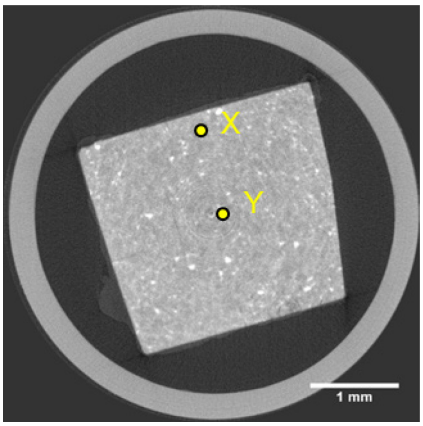
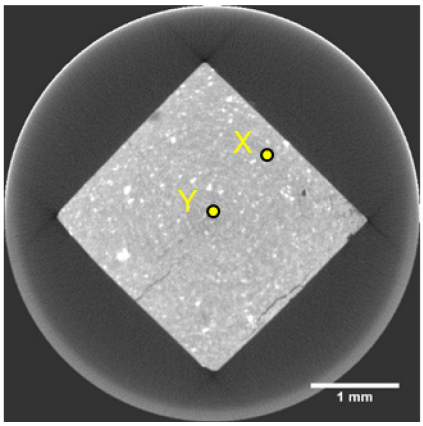
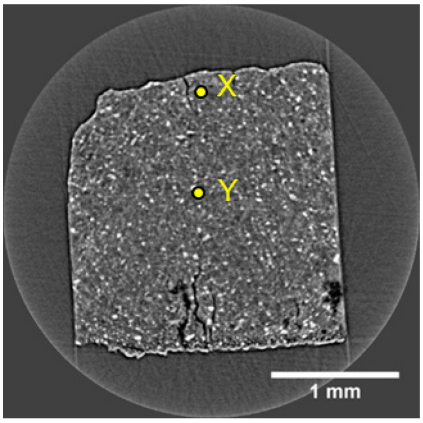
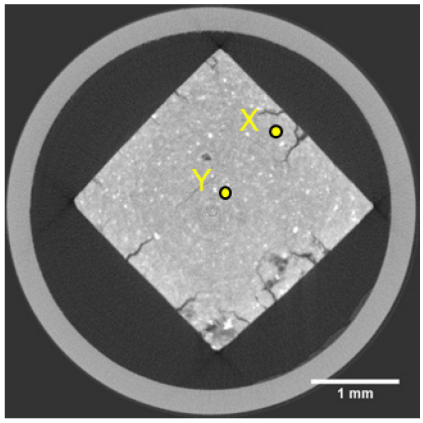
供試体 B:　400℃-2 時間	供試体 C:　400℃-6 時間
	
供試体 A:　400℃-12 時間	供試体 D:　400℃-24 時間
	

図 3.2-1　各継続時間で加熱した供試体の断面画像

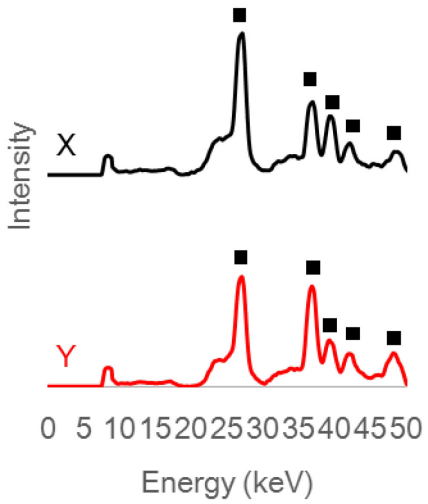
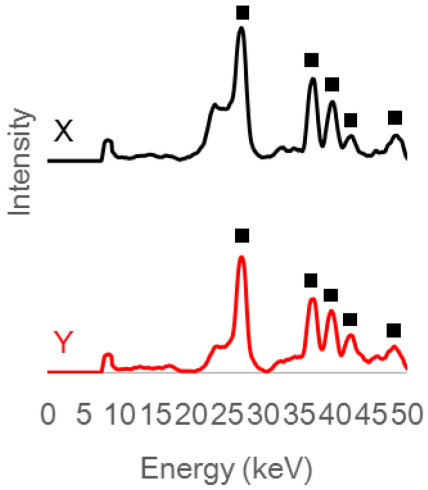
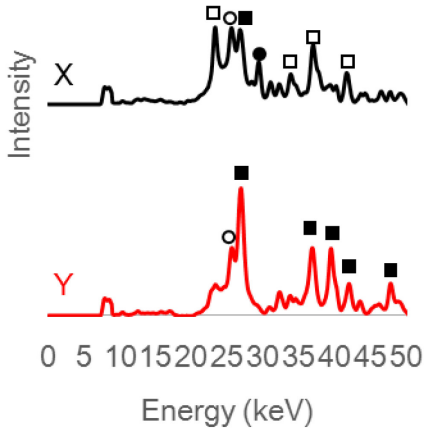
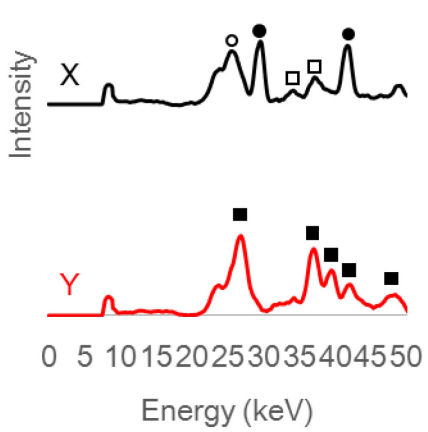
<table>
<tr><td>供試体 B:　400℃-2 時間</td><td>供試体 C:　400℃-6 時間</td></tr>
<tr><td> 
</td><td> 
</td></tr>
<tr><td>供試体 A:　400℃-12 時間</td><td>供試体 D:　400℃-24 時間</td></tr>
<tr><td> 
</td><td> 
</td></tr>
</table>

図 3.2-2　各継続時間で加熱した供試体の断面画像

(belite: ○, portlandite: ■, calcite: □, lime: ●)

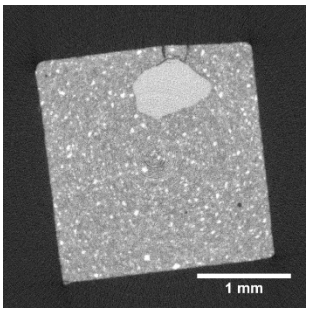
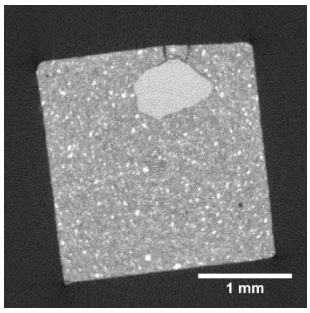
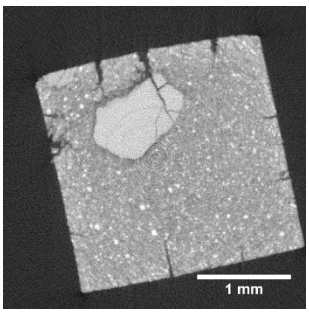
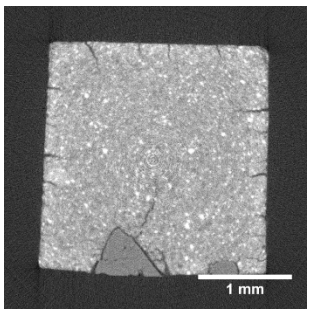
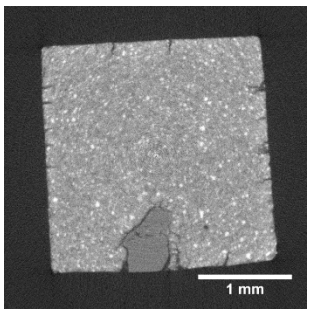
C(石灰石砕砂-)400℃	S(硅砂)-400℃
	
C(石灰石砕砂)-600℃	S(硅砂)-600℃
	
C(石灰石砕砂)-800℃	S(硅砂)-800℃
※測定前に崩壊	

図 3.2-3　各最高温度に加熱した供試体の断面画像

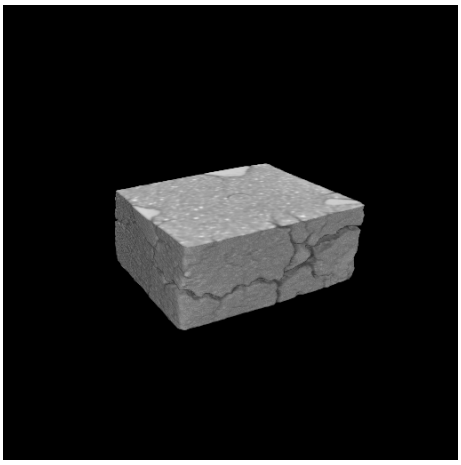
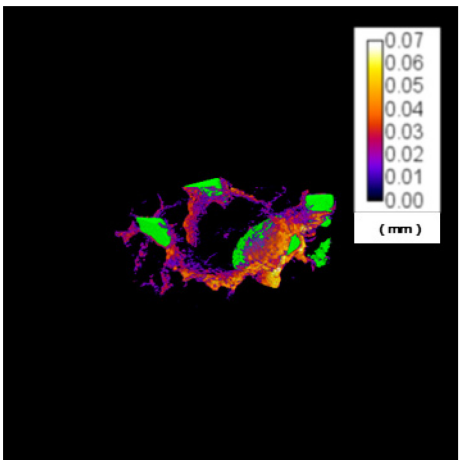
関心領域	骨材およびひび割れ幅
	

図 3.2-4　関心領域および骨材とひび割れ幅の三次元画像

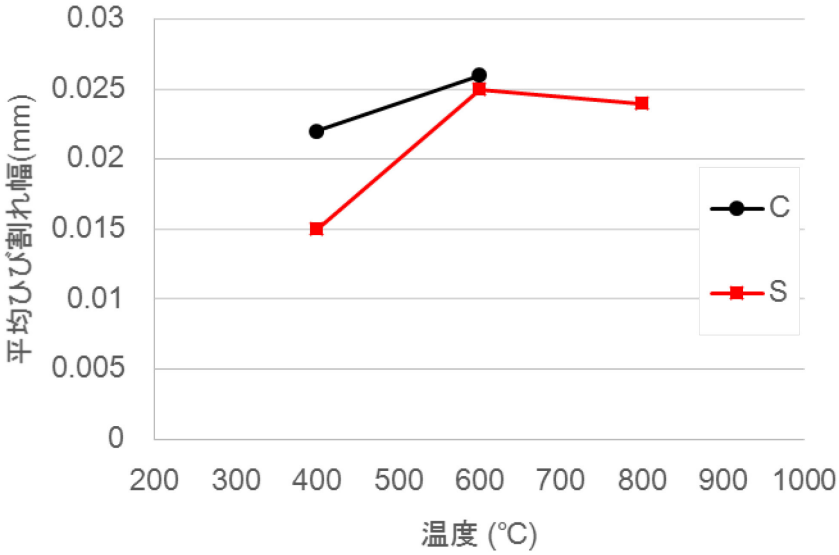


図 3.2-5　最高温度と平均ひび割れ幅の関係

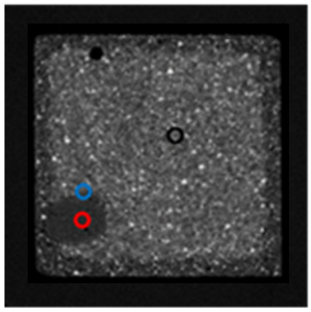
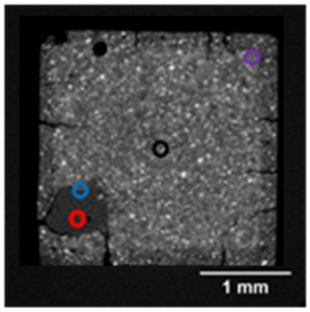
加熱前	加熱後
	

図 3.2-6　供試体の断面画像（400℃-24 時間加熱前後）

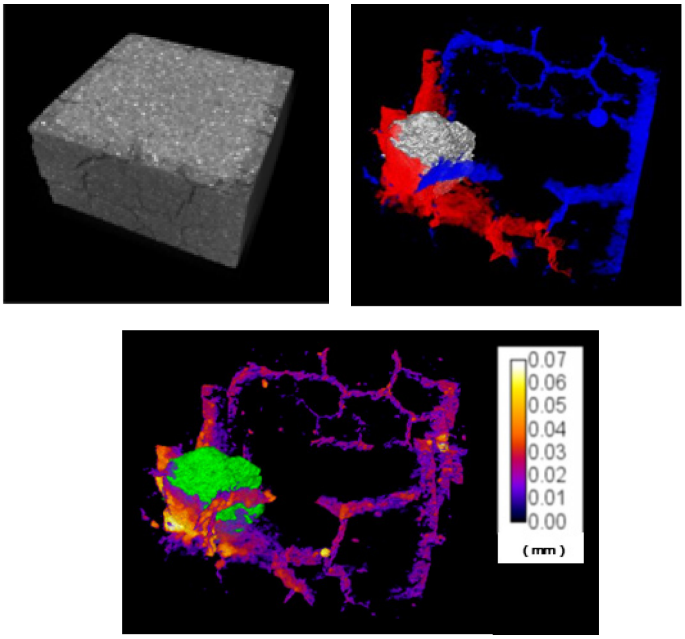


図 3.2-7　骨材とひび割れの抽出
（骨材ひび割れ：赤、ペーストひび割れ：青）

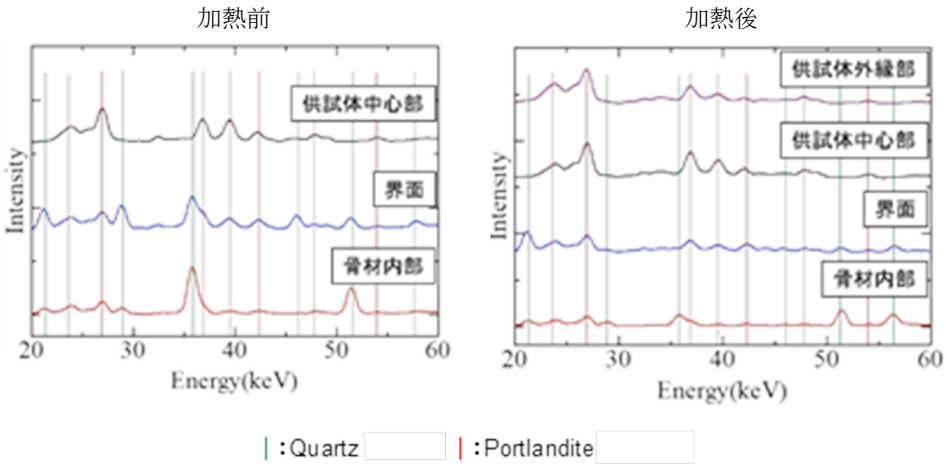


図 3.2-8　加熱前後の XRD プロファイル

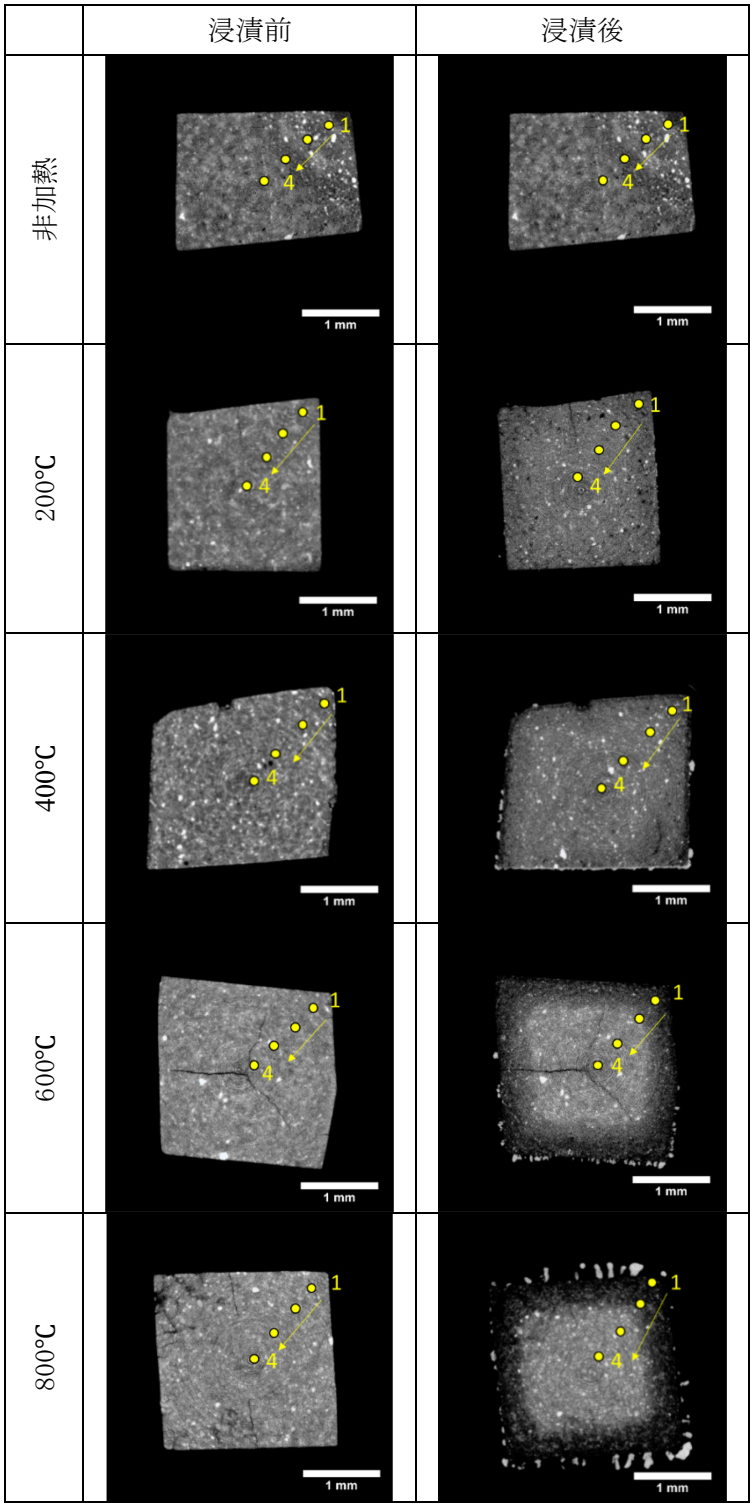


図 3.2-9　各供試体の浸漬前後の断面画像

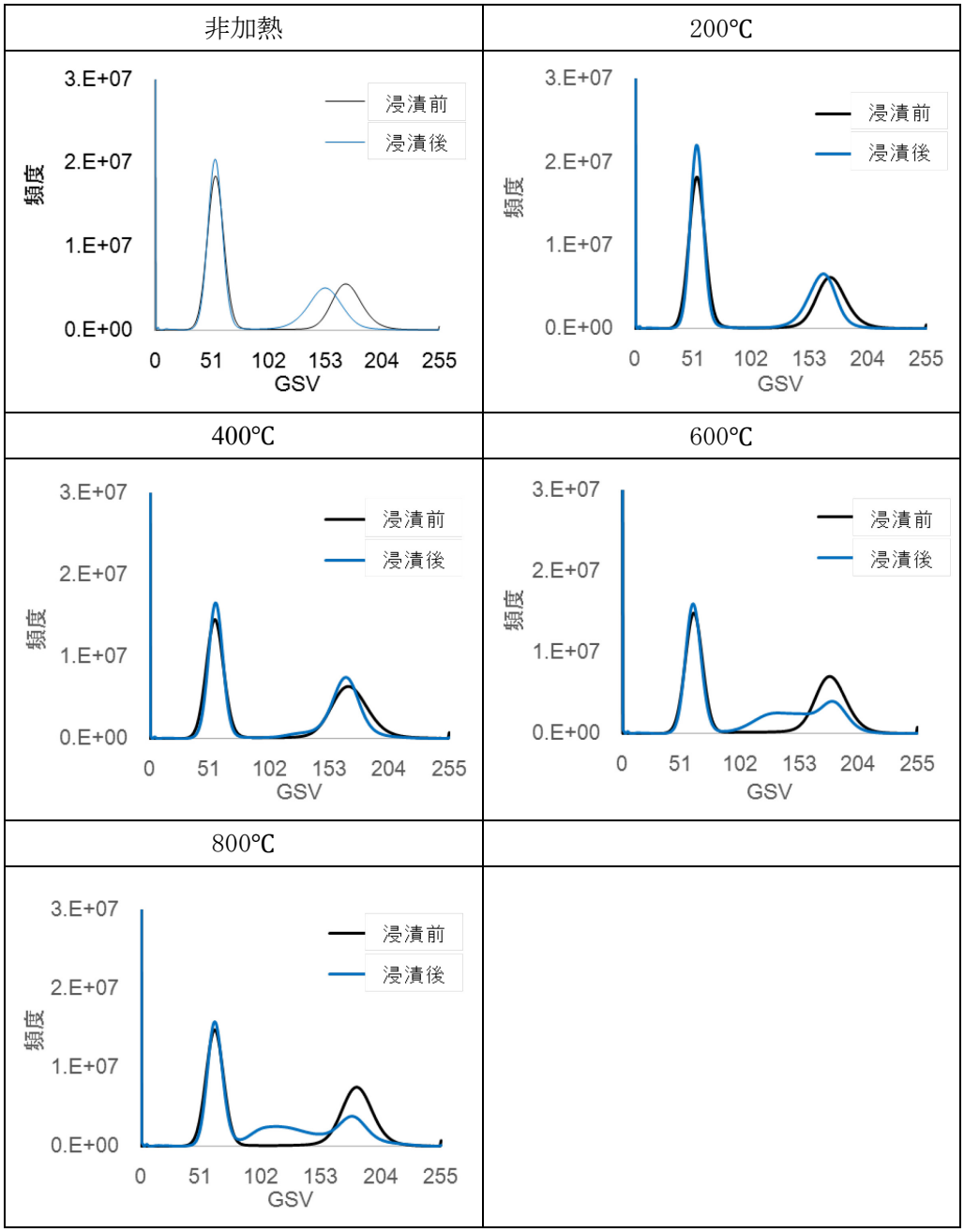


図 3.2-10　各供試体の浸漬前後の GSV ヒストグラム

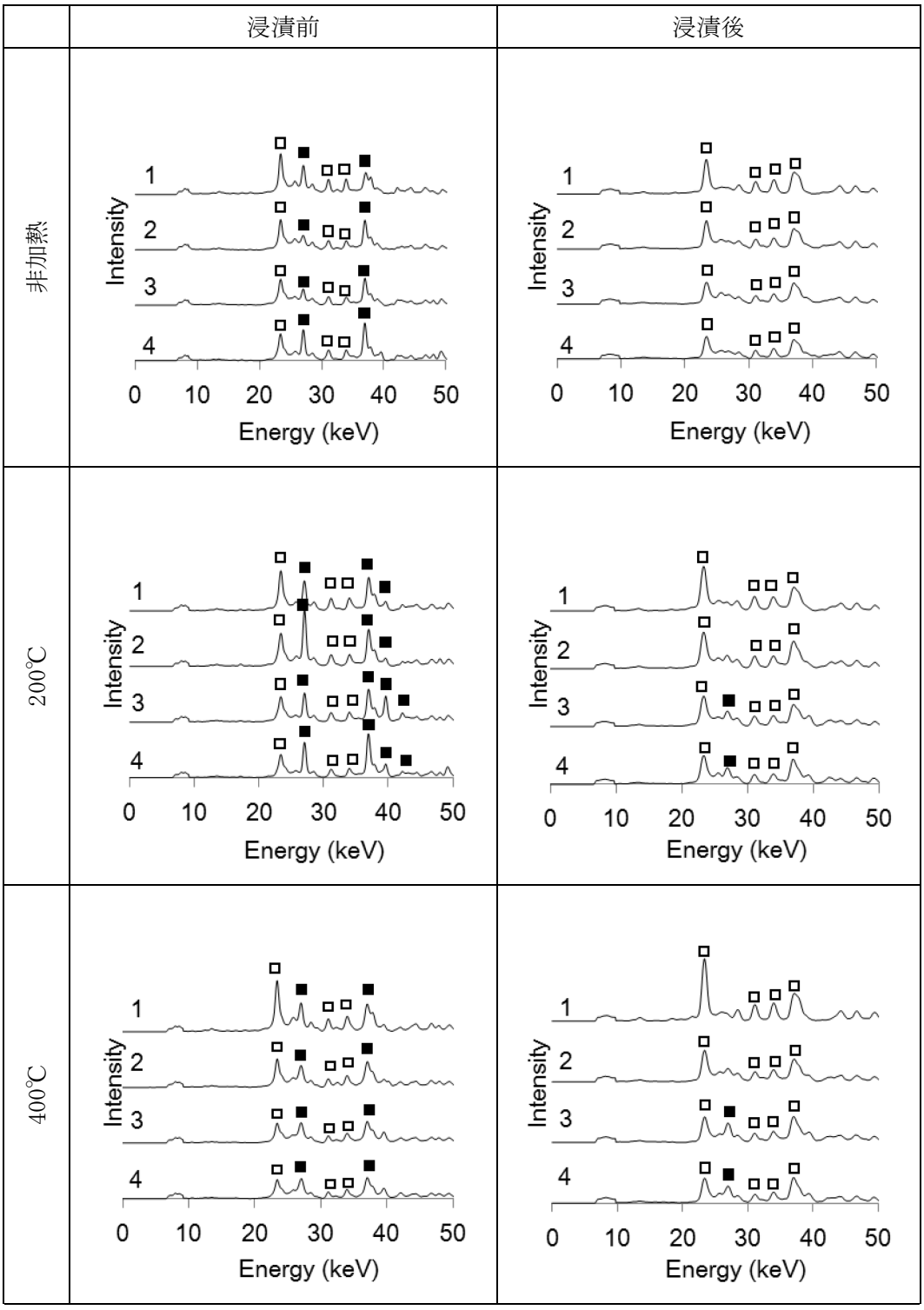


図 3.2-11　各供試体の浸漬前後の XRD プロファイル(1)

(alite: ▲, belite: ○, portlandite: ■, calcite: □, lime: ●)

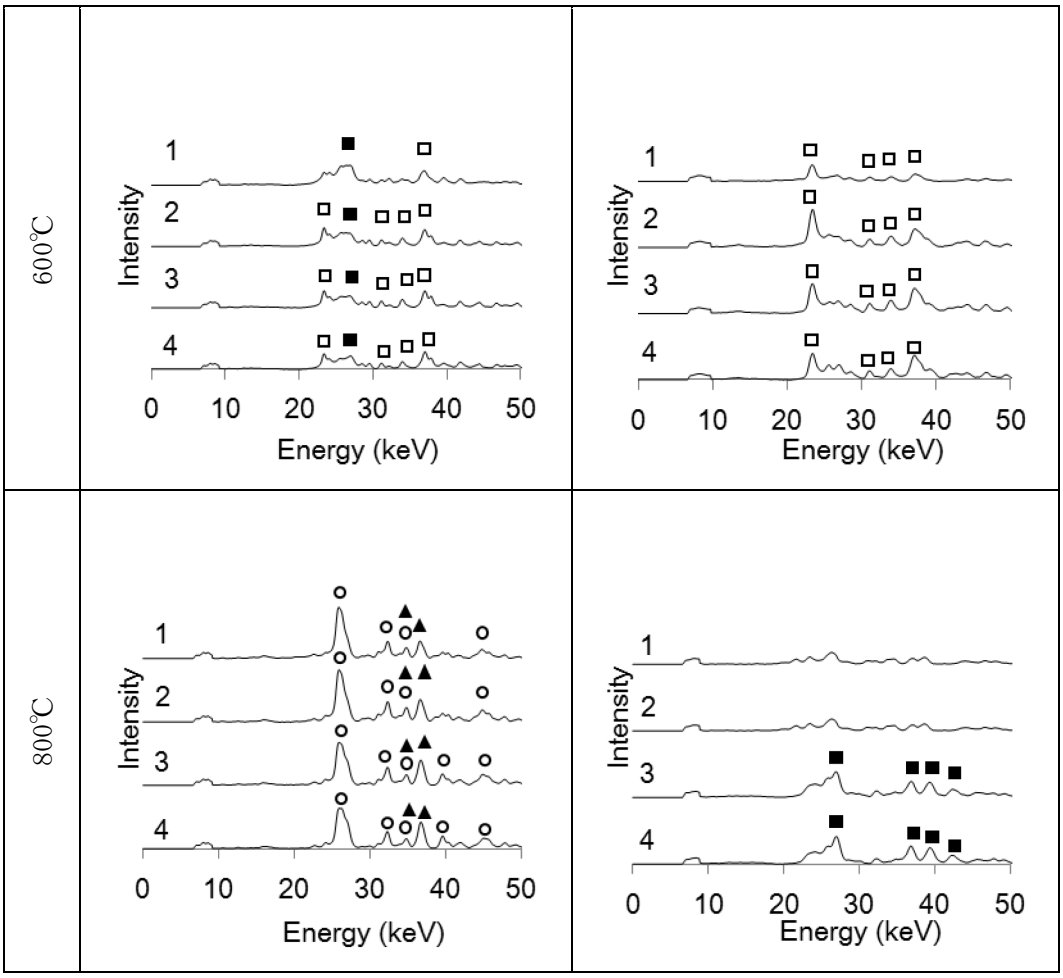


図 3.2-11　各供試体の浸漬前後の XRD プロファイル(2)

(alite: ▲, belite: ○, portlandite: ■, calcite: □, lime: ●)

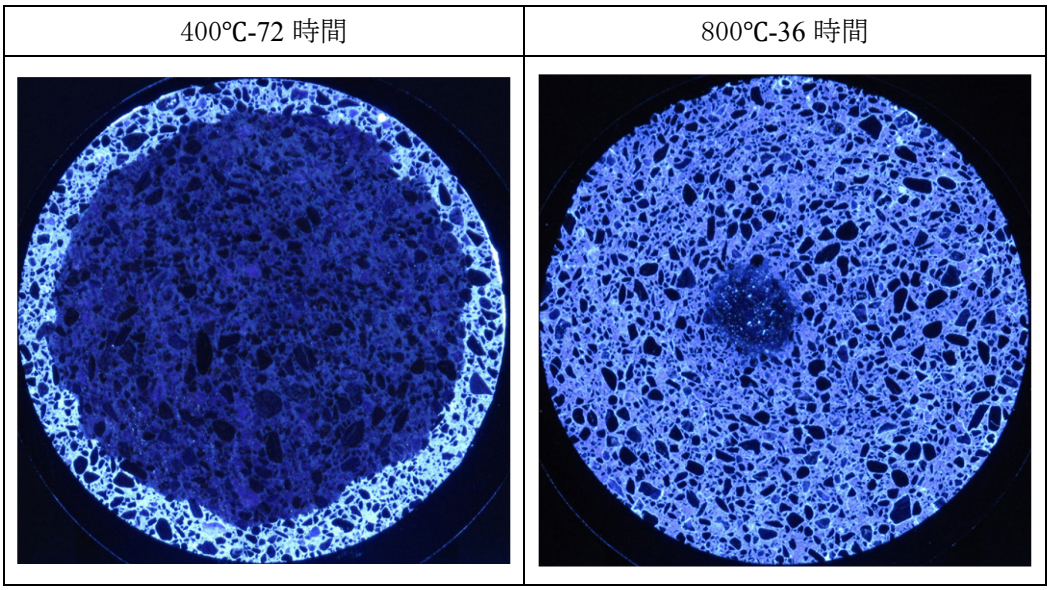


図 3.2-12　供試体の断面画像

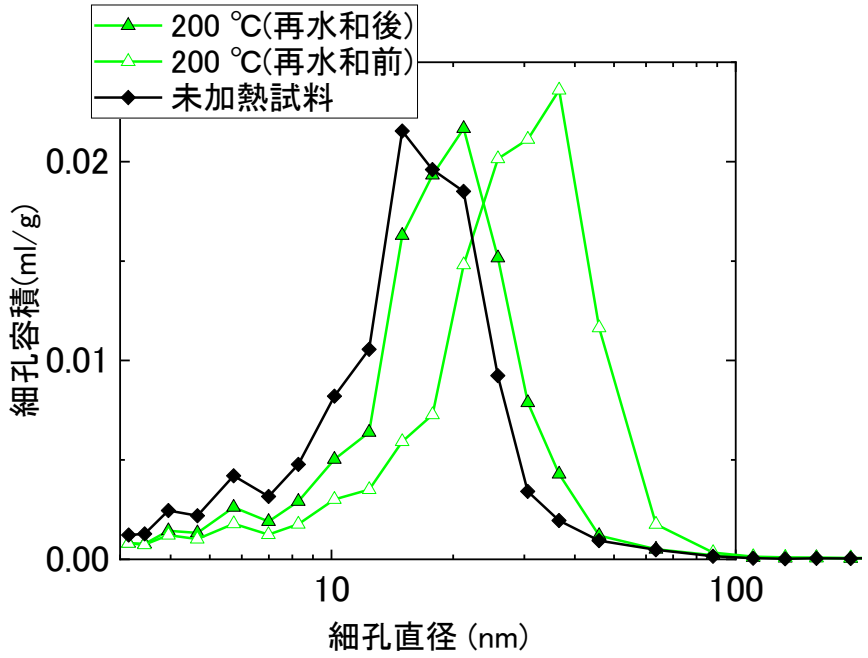


図 3.2-13　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法、200℃加熱試料）

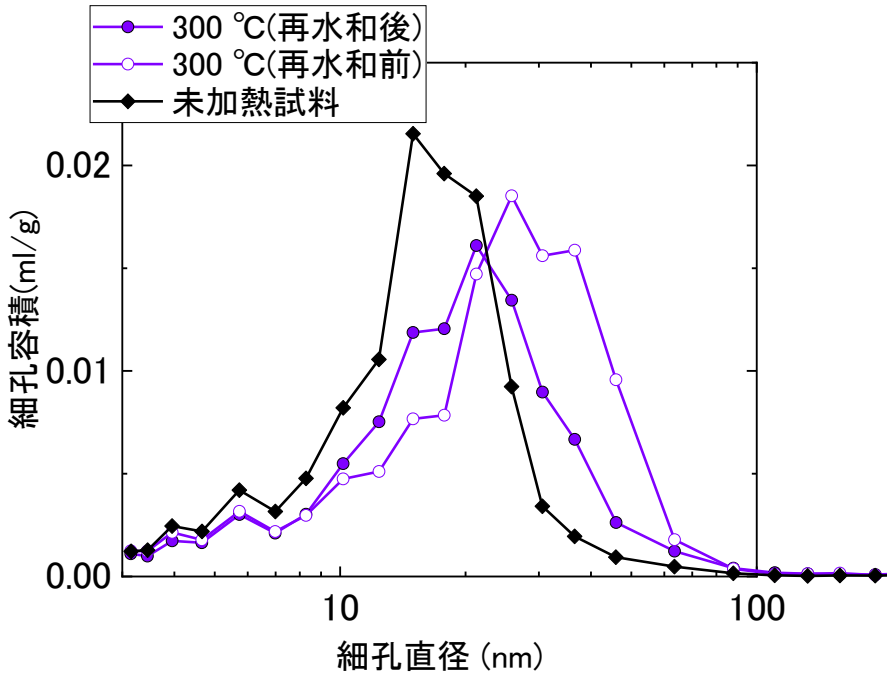


図 3.2-14　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法、300℃加熱試料）

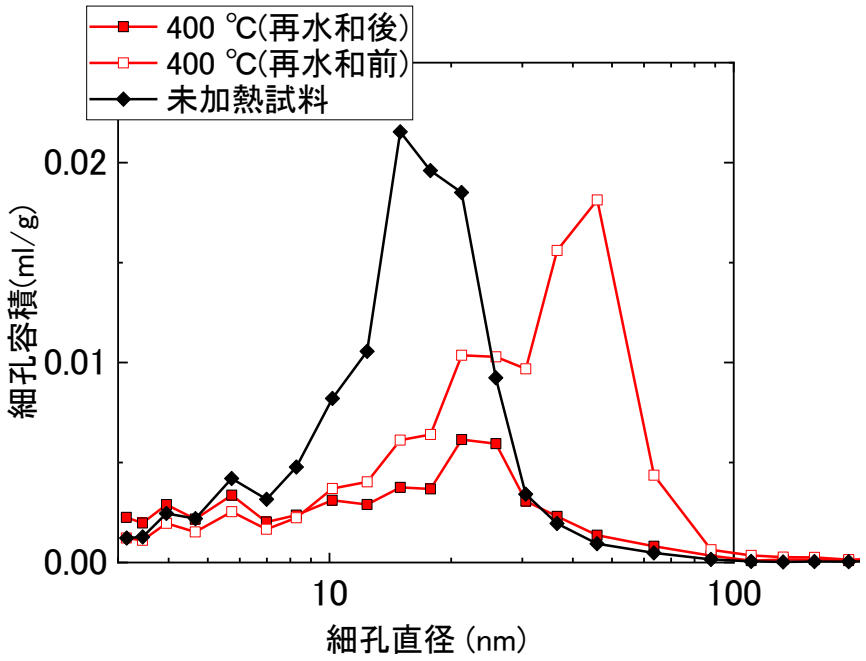


図 3.2-15　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法、400℃加熱試料）

3.2.2 化学状態変化(再委託先：日本原子力研究開発機構)

収着実験終了後のコンクリート試料中の U、および北大にて行う Cs および Sr の収着実験後のコンクリート試料中の Cs および Sr の化学状態を XAFS 等により分析した。また、拡散過程での化学状態変化の有無を調べるため、拡散実験終了後のコンクリート試料についても粉末化した後、XAFS 等の分析を行うことで、核種の化学状態変化と拡散挙動との関係を検討した。XAFS 測定は Spring-8 の BL01B1 において行った。

(1)試験方法

セメント固化体試料の調製は次のように行った。普通ポルトランドセメントと水を w/c 比 0.36 または 0.60 で混合し、樹脂製容器(24 mmφ×54 mmH)に充填して 1～2 日間静置した。次に容器から取り出し、50℃のセメント平衡水中に入れ室温で 28 日間養生した。これを基本セメント固化体試料とする。

模擬熱変質セメント固化体試料の調製は次のように行った。固化体試料を 60℃で約 3 日間真空乾燥させて恒量とした後、電気炉中で 200℃または 400℃で 72 時間加熱した。それぞれ、200℃加熱固化体試料、400℃加熱固化体試料とする。なお、目的温度までの昇温は 1℃/min、目的温度からの冷却は自然冷却とした。

基本固化体試料、200℃加熱固化体試料、400℃加熱固化体試料をそれぞれ粉砕し、ふるい分けして 75μm 以下の部分を実験に用いた。それぞれ、基本粉末試料、200℃加熱粉末試料、400℃加熱粉末試料とする。

XAFS 測定用の試料の調製は次のように行った。固相として、セメント試料と模擬熱変質試料 2 種類の他に、セメントの構成成分を模擬した試料（$CaCO_3$（純正化学株式会社））を用いた。U 水溶液は、米国 SPEX 社製 U 標準液（10ppm）をホットプレート上で

加熱して濃縮し 100ppm とした水溶液を用いた。Cs 水溶液として、CsCl 試薬（和光純薬工業株式会社）を純水に 100mM となるように溶解した水溶液を用いた。これら固相試料と水溶液を遠沈管に固液比 1：100 となるように入れ 20℃（U)または 60℃（Cs)で静置した。24 時間後、遠心分離により固液分離し、液相は 0.2μmのフィルターでろ過してから液相の元素濃度測定を行った。遠心分離後に液相を取り除いた固相をそのままポリエチレンの袋に封入し、XAFS 測定を行った。液相の元素濃度測定は、ICP-OES (Agilent 社製 720)または ICP-MS（Agilent 社製 7500)で行った。

(2)結果および考察

L_{III}吸収端 EXAFS スペクトルの解析結果を図 3.2-16 に示した。①は U を収着させたセメント試料、②はイオン交換水を用いて①から U を脱離させたセメント試料、③は U を収着させた炭酸カルシウム試料を示す。EXAFS 振動スペクトルを比較すると①と②は非常によく類似しており（左図）、フーリエ変換して得られた動径構造関数もほぼ一致した。このことから②の脱離試料では特定の相の U が脱離されたわけではないことを示している。③は①、②と類似しているものの k = 9 (Å-1)付近で EXAFS 振動スペクトルの僅かな違いが認められる。すべての試料の動径構造関数には R + R = 1.5 Å にピークが認められる。これは U の最近接酸素原子に由来するピークである。また、③の動径構造関数には R + R = 2.1 Å 付近にショルダーピークが見られる。これは炭酸カルシウムの C に由来するピークであると考えられる。U が炭酸カルシウム構造内に取り込まれているのか、それとも表面に吸着しているのかは今後の詳細な解析が必要である。セメント中には、炭酸カルシウム($CaCO_3$)、水酸化カルシウム($Ca(OH)_2$)、ケイ酸カルシウム($CaSiO_3$)、アルミン酸カルシウム($CaAl_2O_4$)等多様な固相が含まれる。①、②は、③と比べて異なるスペクトルであることから、炭酸カルシウムはセメント中の U の主要なホスト相ではないと考えられる。ただし、本分析結果は、セメント中で U が炭酸カルシウム相に収着することを否定するものではない。

Cs に関しては解析に耐えうる EXAFS スペクトルを得ることができなかった。これはセメント試料の Cs 収着量が少ないこと、および K 吸収端の EXAFS 振動が弱いため僅かなノイズであっても解析において大きな障害となるためである。

Sr 収着試料については、Spring-8 において K 吸収端の XAFS スペクトルを測定した。図 3.2-17(a)と 3.2-17(b)にその結果を示す。図 3.2-17(a)から、Sr を収着させた室温粉末試料、200℃加熱粉末試料および 400℃加熱粉末試料のスペクトルは互いに良く類似した。このことは、セメントの加熱条件は、セメント固相中での Sr の化学状態（配位数、原子間距離）に影響を及ぼしていないことを示している。これらセメント試料のスペクトルと、Sr を収着させた $CaSiO_3$ 試料のスペクトルは良く類似しているが、$CaCO_3$ と $CaAl_2O_4$ のスペクトルとは幾分異なっている。このことは、セメント中で Sr を保持している相が $CaSiO_3$ である可能性を示唆している。図 3.2-17(b)では、Sr を収着させた室温粉末試料と、Sr を収着させる前の室温粉末試料、200℃加熱粉末試料および 400℃加熱粉末試料のスペクトルを比較している。いずれのスペクトルも互いに良く類似している。Sr を収着させる前の室温粉末試料、200℃加熱粉末試料および 400℃加熱粉末試料には固相 1kg 当たり 6.4×10^2 ～ 7.0×10^2 mg の Sr が含まれていた。Sr を収着させ

た試料の Sr 濃度は収着前より 5～6 倍高い。したがって、これらの結果から、セメントに元々入っていた Sr の化学状態とセメントに収着した Sr の化学状態とは類似していることが明らかとなった。

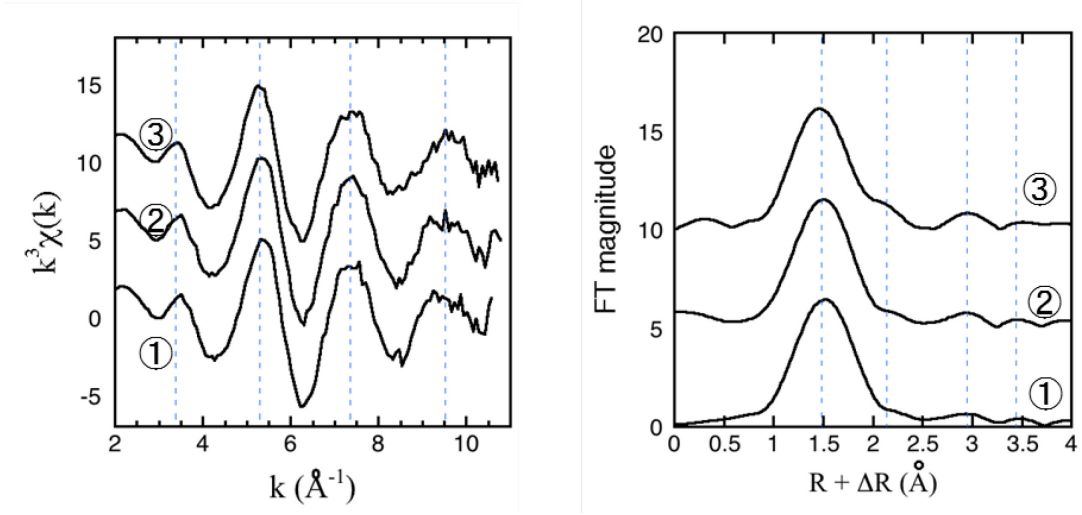
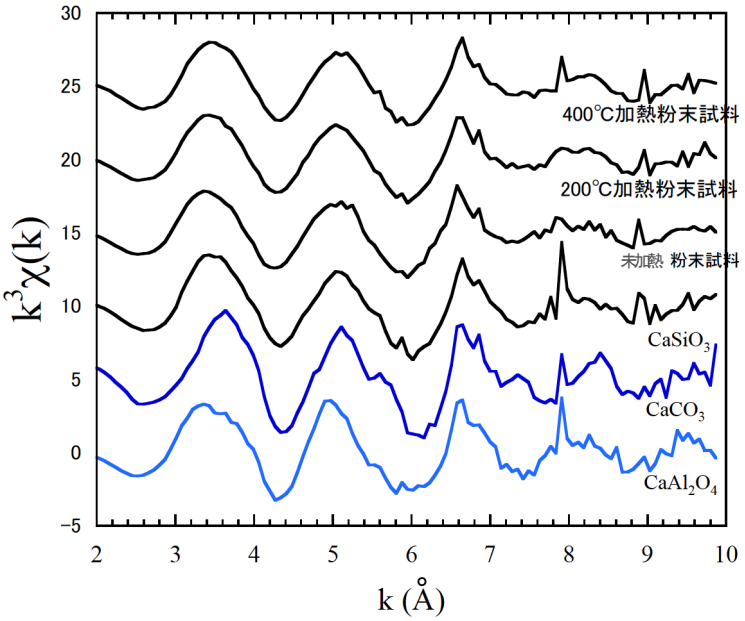


図 3.2-16　U の XAFS 分析

（①ウランを収着させたセメント試料、②イオン交換水でウランを脱離させたセメント試料、③U が収着した $CaCO_3$）

(a) Sr を収着させた固相試料の比較



(b) Sr 未添加試料と添加試料の比較

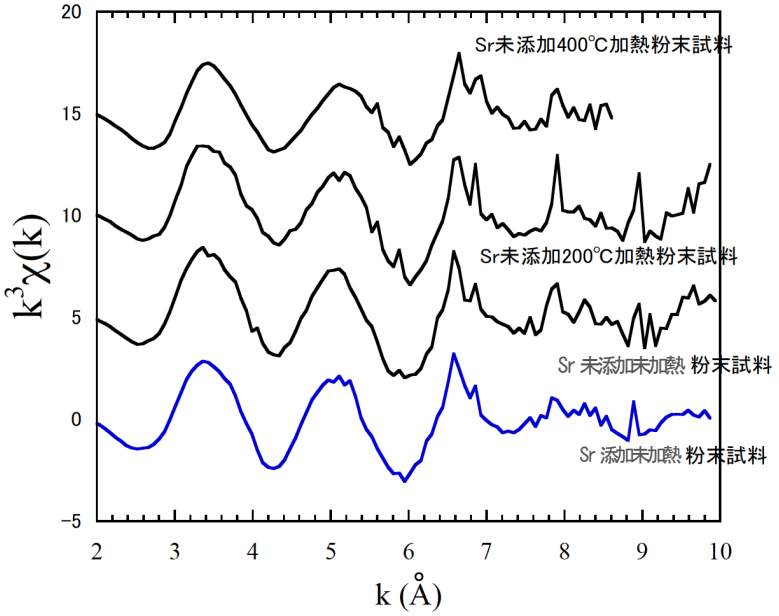


図 3.2-17　セメント試料の Sr K 吸収端 XAFS スペクトル

3.2.3 拡散挙動、収脱着挙動（北海道大学および再委託先：日本原子力研究開発機構）

調製した模擬変質コンクリート試料に対し、^{22}Na、^{85}Sr、^{137}Cs、HTO、U 等を対象とした拡散実験を行い、拡散係数を決定した。また、粉砕したコンクリート試料に対して、^{22}Na、^{85}Sr、^{137}Cs、HTO、U 等を対象とした核種収着および核種浸出実験を行い、現象理解を進めた。なお、Sr については、当初使用を予定していた ^{90}Sr に代えて ^{85}Sr を使用した。これは、両放射性同位体において拡散および収着挙動に差はなく、^{90}Sr の放射能測定では娘核種 ^{90}Y の影響を排除した上でβ線計測を行う必要があるのに対して、^{85}Sr では簡便なγ線計測を適用できる利点を考慮して決定した結果である。

(1) 拡散試験

①方法

拡散実験用の基本セメント固化体試料および模擬熱変質セメント固化体試料の調製は、3.2.2（1）に記述した方法と同じである。なお、w/c 比は 0.36 のみとした。また、Cs の拡散試験向けに加熱温度 80℃および 300℃の試料も調製した。加熱処理後のセメントは、セメント平衡水中にて 5 日間再水和させ、次に 60℃で 3 日間真空乾燥させた後に、加熱の際に発生した亀裂へエポキシ樹脂を注入した。さらに、樹脂が固化した試料全体にシリコンを塗布して、ダイヤモンドカッターで中央部を輪切りにした後に、試料をセメント平衡水中に 5 日浸漬して、試料内部の空隙をセメント平衡水で満たした。

固化体試料中の放射性核種の一次元非定常拡散試験は、あらかじめ恒温槽に入れて所定の温度（288～323 K）とした 2 個の固化体試料のそれぞれ片面に数 kBq の放射能を含む稀薄なトレーサー溶液を 10μl ずつ塗布し、塗布面を密着させて、再び恒温槽中で所定温度にて放射性核種を拡散させる方法で行った。^{137}Cs、^{22}Na、^{85}Sr、HTO はいずれも日本アイソトープ協会を介して購入した溶液を水で希釈して使用した。また、U 溶液は米国 SPEX 社製 U 標準液（10ppm）を蒸発乾固したのちに希硝酸を加えて溶解し 1000 ppm としたものを用いた。

放射性トレーサーを塗布し所定の拡散時間（1 日～4 ヶ月）を経た後、^{137}Cs、^{22}Na、^{85}Sr を用いた試験では、所定厚さ毎に試料を研磨紙で削り出し、それらの放射能を測定することで、放射性核種の濃度分布を得た。また、HTO を用いた試験では、研磨中の水分の蒸発に伴う HTO の散逸を低減するため、ダイヤモンドカッターで固化体試料を所定厚さに切り出し、切断片を粉砕して水に浸漬することで抽出した HTO の放射能を測定した。放射能の測定には、NaI シンチレーションカウンター（^{137}Cs、^{22}Na、^{85}Sr）、あるいは液体シンチレーションカウンター（HTO）を用いた。一方、U を用いた試験では、棒やすりを用いて塗布面から 1mm までは 0.1mm、1mm 以降は 0.3mm ずつ固化体試料を削ったのち、その切削粉を希硝酸に溶かし、その溶液中の U 濃度を ICP-OES を用いて定量することで、塗布面から 3.1mm までの深さ方向に対する U の濃度分布を得た。

セメント試料内部の拡散経路に関する情報を得るため、基本セメント固化体試料および模擬熱変質セメント固化体試料を粉砕し、水銀圧入法およびガス吸着法による細孔径分布測定を行った。

②結果および考察

一次元の実験体系において、極めて微量のトレーサーが無限媒体中を拡散する場合、すなわち、Fick の第 2 法則における初期条件および境界条件が、

初期条件： $C(0,0)=\infty, C(x,0)=0\ (|x|>0)$

境界条件： $C(\pm\infty,t)=0$

となる場合、一般に「薄膜拡散源からの拡散」と呼ばれ、見かけの拡散係数がその位置に依存しない定数であるとの条件の下では、Fick の第 2 法則の解は、以下の式となる。

$$C(x,t)=\frac{M}{2\sqrt{\pi D_a t}}exp\left(-\frac{x^2}{4D_a t}\right)$$

ここで、D_a は見かけの拡散係数(m^2 s^{-1})、M はトレーサーの総量（mol）、 t は拡散時間（s）、x は拡散源からの距離(m)である。

本研究の拡散試験では、極微量の放射性トレーサーをセメント試料に塗布しており、また拡散媒体であるセメント試料が実質的に無限長となるように、拡散時間を調整したことから、基本的にこの式による解析を行った。すなわち、縦軸を拡散試験で得られた放射性核種の放射能濃度の自然対数値、横軸を拡散源からの距離の 2 乗（m^2）としたグラフにおいて、放射能濃度分布は直線性を示し、その直線の傾き（$-1/(4D_a t)$）から見かけの拡散係数を導出した。

Cs の拡散試験において得られた濃度分布の一例を図 3.2-18 に示す。いずれの試験においても濃度分布は良い直線性を示した。得られた見かけの拡散係数を表 3.2-1 に示す。同じ拡散温度条件下の見かけの拡散係数を比較すると、未加熱試料に比べて加熱試料では Cs の見かけの拡散係数は 3～10 倍増加した。このうち、加熱温度が 400℃では見かけの拡散係数の増加は 2.5 倍程度と、加熱温度が 80℃～300℃の条件に比べて、加熱の影響が顕著ではないことが明らかになった。一方、それぞれのセメント試料において、見かけの拡散係数は拡散温度とともに増加する傾向にあった。一般に、見かけの拡散係数と拡散温度は次のアレニウスの式で関係付けられる。

$$D_a=A\,exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$$

ここで、D_a は見かけの拡散係数(m^2 s^{-1})、A は定数（-）、E_a は活性化エネルギー(kJ mol^{-1})、R は気体定数(kJ mol^{-1} K^{-1})、T は拡散温度(K)である。

本研究で得られた Cs の見かけの拡散係数の拡散温度依存性（アレニウスプロット）を図 3.2-19 に示す。拡散温度の逆数に対して見かけの拡散係数の自然対数値は良い直線性を示しており、この直線の傾きから、上式を用いて拡散の活性化エネルギーを決定した。得られた活性化エネルギーを表 3.2-1 に示す。活性化エネルギーは、未加熱試料において 37±2.0 kJ mol^{-1}、加熱試料において 18.3±5.4 kJ mol^{-1} (80℃)、26.1±2.6 kJ mol^{-1} (200℃)、15.4±4.5 kJ mol^{-1} (300℃)、25.5±3.6 kJ mol^{-1} (400℃)となった。これは、自由水中の Cs^+の拡散の活性化エネルギーが 16.4 kJ mol^{-1} [7]であることから、未加熱試料において認められた自由水中よりも高い活性化エネルギーが、試料を加熱することによって減少し、自由水中の値に近づいたと考

えることもできる。

図 3.2-20 に未加熱および再水和処理後の加熱セメント試料に対して実施した水銀圧入試験の結果を示す。細孔容積のピーク位置は、未加熱試料では細孔直径が 15 nm の付近にあるのに対して、加熱試料では全ての加熱温度において 25 nm 付近となった。また、全細孔容積は、未加熱試料では 0.120 ml/g であったのに対して、80～300℃での加熱試料ではほぼ同じ値（0.112～0.116ml/g）を、400℃での加熱試料では約半分の値（0.058ml/g）を示した。図 3.2-21 に、未加熱および加熱セメント試料に対して実施したガス吸着試験の結果を示す。水銀圧入試験と同様にガス吸着試験においても、未加熱試料に比べて加熱試料の方が積算細孔容積が大きいこと、しかしそれは 400℃で加熱した試料においては顕著ではないことが示された。

以上の各種試験によって得られた知見から、セメント試料中の Cs^+イオンは、未加熱試料の場合、比較的大きなサイズの空隙である毛細空隙内に存在する自由な水を介して拡散するものより、ゲル空隙内の水のような束縛された水を介して拡散する方が支配的であるために、拡散の活性化エネルギーは 37±2.0 kJ mol^{-1} という高い値になったと考えられる。一方、この試料を加熱すると、80～300℃での加熱温度では、細孔分布測定結果が示すように、空隙サイズは全体に拡大する傾向にあり、これは毛細管空隙を介した拡散の割合を増加させるとともに、セメント試料中に存在すると予想される拡散経路の屈曲度あるいは収斂度を低下させることで、見かけの拡散係数を増加させる方向に作用すると考えられ、拡散試験において観察された見かけの拡散係数の増大および活性化エネルギーの低下と整合する。なお、400℃加熱試料においては、水銀圧入法による細孔分布測定において細孔容積の低下が認められたことから、こうした変化に伴う拡散経路の屈曲度あるいは収斂度の増加が見かけの拡散係数を低下させたことが示唆された。

Na の拡散試験において得られた濃度分布の一例を図 3.2-22 に示す。未加熱試料を用いた試験では濃度分布はほぼ良い直線性を示した。一方、200℃にて加熱した試料では直線から外れるものが散見されたが、ここではそれらも直線性を有していると仮定して解析を行った。なお、直線性が低い実験データについては、今後データの再取得を行い、その再現性を確認するとともに、直線から外れることが明らかになった場合には、その原因究明を行う必要がある。本研究で得られた Na の見かけの拡散係数を表 3.2-2 に示す。同じ拡散温度条件下の見かけの拡散係数を比較すると、Cs の見かけの拡散係数と同様に、Na においても未加熱試料に比べて加熱試料では見かけの拡散係数は 5～6 倍増加した。また、拡散の活性化エネルギーは、自由水中の Na^+の活性化エネルギー(18.4 kJ mol^{-1})[7]とほぼ同等であり、未加熱試料で 18.6±6.9 kJ mol^{-1}、加熱試料では 14.4±7.6 kJ mol^{-1} となった。Na^+の拡散の場合、セメント平衡水中には相当量の Na^+イオンが存在していることから、拡散試験にて添加した放射性 $^{22}Na^+$イオンの多くもセメント平衡水中に存在し、そこを拡散したと考えられる。すなわち、加熱の有無にかかわらず、セメント平衡水を内部に有する毛細管空隙が支配的な拡散経路となったこと、また加熱に伴う毛細管空隙の増大が、Cs の拡散と同様に、拡散経路の屈曲度あるいは収斂度の増加となり、見かけの拡散係数を増加させたと考

えることができる。

Sr^{2+}イオンの拡散については、得られた濃度分布に良い直線性が認められなかったが、ここでは直線性を有していると仮定して解析を行った。得られた Sr の見かけの拡散係数を参考値として表 3.2-3 に示す。同一条件においても値が大きく異なる例があるため、これらのデータについては今後、再現性を確認するため再取得する必要がある。なお、未加熱試料における見かけの拡散係数は拡散温度とともに増加する傾向が認められたことから、そのアレニウスプロットから活性化エネルギーを求めた結果、16.9±12.0 kJ mol^{-1} との値が得られた。この値についても、誤差が大きいことから、今後検証が必要である。

HTO の拡散試験は、未加熱および 200℃加熱試料に対して拡散温度 25℃の条件下で実施した。拡散試験において得られた HTO の濃度分布はいずれも良い直線性が得られた。この濃度分布より求めた HTO の見かけの拡散係数を表 3.2-4 に示す。未加熱の試料では 8.4～8.5×10-12 m^2 s^{-1}、200℃加熱の試料では 2.8～3.1×10^{-11} m^2 s^{-1} となり、加熱により見かけの拡散係数は約 3 倍に増加した。一般に、HTO は固相との相互作用のない、収着による遅延がない放射性トレーサーとして考えられている。しかし、セメント試料の場合、毛細管空隙のみならず、比較的狭隘なゲル空隙にも進入すると考えられ、それに伴って移行に遅延が生じる可能性がある。拡散温度 298K における Cs、Na および HTO の見かけの拡散係数を比較すると、未加熱試料および 200℃にて加熱した試料の両方において、Na の見かけの拡散係数が最も大きくなった。また、Cs の拡散は加熱試料で HTO とほぼ同じ値に、未加熱試料で HTO の値の約 2 分の 1 となった。これらの相違は、Na は収着による遅延が低く、また主として毛細空隙を拡散している可能性を示唆するものであるが、Na の見かけの拡散係数のデータはまだ再現性を十分確認できていないことから、こうした拡散現象の基礎的な理解は今後の課題と言える。

U の拡散試験は、未加熱および 400℃加熱試料に対して拡散温度 50℃の条件下で実施した。濃度分布の一例を図 3.2-23 に示す。いずれの試料においても、U は塗布面の極近傍に留まっており、塗布面から 0.4mm 以深での U 濃度は検出限界(1.03ppm)以下となった。これらが薄膜拡散源からの拡散だと仮定して、塗布面の極近傍の 3 点のデータに対して解析した結果を表 3.2-5 に示す。得られた見かけの拡散係数はすべて 10^{-16} m^2 s^{-1} のオーダーとなった。この値については、試料研磨時にクロスコンタミを起こした可能性を否定できないこと、本試験が薄膜拡散源からの拡散とならない可能性があることから、参考値として示すもので、今後、その妥当性を検証する必要がある。ただし、U は、他の放射性核種と比べて、加熱、未加熱にかかわらず、セメント試料への収着が大きく、これによる移行遅延が顕著であることは明らかである。

(2) 収脱着試験

①方法

収着実験に用いたセメント粉末試料の調製は、3.2.2 (1) に記載した方法と同じである。なお、追加の固相試料として、汚染水に長期間曝されることにより、セメント中の水溶性成分が溶解し変質したことを想定した溶解変質粉末試料も一部の試験にお

いて用いた。この試料の調製は、まず、基本粉末試料、200℃加熱粉末試料、400℃加熱粉末試料を、純水に 1g:200mL の比で入れ、60℃で静置した。1 週間後遠心分離で固液分離し、固相には新しい純水を加え、同様に 1 週間静置した。この処理を 8 週にわたって行った。最後に、固相を乾燥させて 3 種類の溶解変質試料を得た。

Cs、Sr、U の収着実験は、溶解変質前の 3 試料に対してはセメント平衡水を、溶解変質後の 3 試料に対しては純水を液相として用いた。これは、溶解変質前の試料は、セメント固化体内部の状態および汚染水と接触していない状態を模擬しており、セメント固化体中の水はセメントと平衡状態であるからである。溶解変質後の試料は、セメント固化体表面近傍の汚染水と接触した状態を模擬しているので、汚染水同様にイオン強度が低い純水を液相として用いた。収着実験に用いた U 水溶液は、米国 SPEX 社製 U 標準液（10 ppm）をホットプレート上で加熱して濃縮し 1000ppm とした水溶液をセメント平衡水または純水で 100ppm に希釈したものである。Cs 水溶液は、CsCl 試薬（和光純薬工業株式会社）をセメント平衡水または純水に溶かして Cs 濃度を 10μM とした水溶液を調製し、そこにトレーサー量の $^{137}CsCl$ を添加して実験に用いた。Sr 水溶液は、$SrCl_2$ 試薬（和光純薬工業株式会社）をセメント平衡水または純水に溶かして Sr 濃度を 10μM とした水溶液を調製し、そこにトレーサー量の $^{90}SrCl_2$ を添加して実験に用いた。これら固相試料と水溶液を遠沈管に固液比 1：100 となるように入れ、室温で振とうした。24 時間後、遠心分離により固液分離し、液相は 0.2μmのフィルターでろ過してから液相の元素濃度測定を行った。収着実験は、各条件で 3 バッチずつ行った。

U 濃度の測定は ICP-MS で行った。セメント平衡水を用いた実験では、イオン強度が高いセメント平衡水中に非常に希薄な U が含まれる。ICP-MS 測定における共存イオンの影響を低下させるために水溶液を希釈すると U 濃度定量が困難になる。そのため、セメント平衡水を用いた実験では、液相に硝酸を加えたのち UTEVA レジン（Eichrom Technologies 社）を充填したカラムに通すことによってレジンに U を吸着させ、そののち、希硝酸をカラムに流してカラムから U を流出させることにより U を精製した。この精製 U 溶液中の U を定量した。

一方、Na の収着試験では、粉砕し、篩い分けした粒径 46～150μm の未加熱および 200℃加熱試料に対して、セメント平衡水を液相に用いた。固相試料と水溶液を遠沈管に固液比 1：20 となるように入れて約 1 日間静置した後、放射性トレーサーとして ^{22}Na を 200kBq/ml となるように投入し、室温で所定時間（2 時間～7 日）振とうした。その後、遠心分離により固液分離し、液相を採取し、0.45μmのフィルターでろ過してから液相中の ^{22}Na の放射能濃度を NaI シンチレーションカウンターで、また液相中の Na 濃度を ICP-AES で定量した。収着実験は、各条件で 3 バッチずつ行った。

HTO の収着試験は、粉砕した未加熱および 200℃加熱試料に対して、イオン交換水を液相に用いた。固相試料と HTO を 120 kBq/ml 含む水溶液を遠沈管に固液比 1：5（1g：5ml）または 1:1.2（5g：6ml）となるように入れて、室温で振とうし、所定時間（1、5、30、52、122 時間）後に固液分離し、液相から 0.1 ml を採取し、HTO の放射能濃度を液体シンチレーションカウンターで定量した。収着実験は、各条件で 4 バ

ッチずつ行った。

Cs と Sr を収着させた試料の一部について脱離・浸出実験を行った。収着実験後の遠沈管に残った固相に 1 mM $CaCl_2$ 水溶液 5mL を入れ 24 時間振とうさせた。脱離・浸出実験では本来多様な試薬溶液を用いて脱離・浸出挙動を比較することが必要であるが、本研究では、セメントに曝された水相に溶出する主要な元素が Ca であることから、収着した Cs および Sr と Ca イオンとのイオン交換に着目し $CaCl_2$ 水溶液を用いた。遠心分離後に液相を 0.2μm フィルターでろ過してから液相の放射能濃度を測定した。固相に新しい 1 mM $CaCl_2$ 水溶液 5mL を入れ、同様に処理をした。収着実験後に回収できた液相は平均で 4.3mL であった。0.7mL が遠沈管内に残ったとして濃度の補正を行った。

U 収着実験後のセメント試料の一部をグラッシーカーボンに分散させ、乾燥後にパラジウムでコーティングしてから走査型顕微鏡(SEM)による観察と元素分析(EDX)を行った。本分析には、Phenom-World 社製 Phenom ProX を用いた。比較のため、U 初期濃度 100mM の水溶液にセメント粉末試料（水/セメント比 0.36、加熱無し、溶解変質前）を入れ U を収着させた試料の SEM-EDX 分析も行った。

Na の脱離・浸出試験は、収着試験終了後の固相試料をセメント平衡水で洗浄した後、遠沈管に 20ml のセメント平衡水を入れて振とうし、所定時間(2 時間、6 時間、24 時間、3 日、7 日)後に固液分離を行い、液相を採取して ^{22}Na の放射能濃度および Na 濃度を定量した。

HTO の脱離・浸出試験は、収着試験終了後の遠沈管から所定量の液相を取り出し、そこに新たに所定量のイオン交換水を加えて攪拌の後に遠心分離を行う操作を 3 回繰り返した。その際、遠心分離後の液相を採取して、液相の HTO の放射能濃度を定量した。次に、液相採取後の遠沈管を攪拌し、約 1 日間振とうし、同様の溶液交換および遠心分離の操作を 2 回繰り返した。さらに、試験開始後 3 日後および 8 日後に、イオン交換水を加えずに、遠心分離および液相採取のみを行い、液相の HTO の放射能濃度を定量した。

②結果および考察

粉砕したコンクリート試料に対して、U、Cs、Sr、Na、HTO を対象とした収着実験を行い、収着分配係数を取得した。

平成 28 年度に行った U の収着実験では、初期 U 濃度を 1ppm として行った。基本粉末試料、200℃加熱粉末試料および 400℃加熱粉末試料の全てに対して、液相中の U の 99.9%以上が収着した。このときの U の分配係数は 1×10^5 mL/g 以上であり、固相中 U 濃度は 0.1 mg-U/g-固相であった。収着は非常に早く 2 時間以内に定常に達し、温度依存性が無く、海水濃度の塩化ナトリウムに吸着が妨害されることは無かった。収着実験後の固相を SEM-EDX 分析したところ、U は全く検出されなかった。これらの結果から、セメント成分の違いが U の収着挙動に及ぼす影響を調べるためには、高濃度の U を用いる必要があると考えられた。

平成 29 年度に行った Sr と Cs の収着実験では、初期 Sr, Cs 濃度を 1mM として行った。Cs と Sr の収着は非常に少なく、Cs の分配係数はセメント試料で 20～40 mL/g、

Sr で 6～14 mL/g であり、加熱温度が収着に及ぼす影響は無かった。セメント成分である $CaCO_3$、$CaAl_2O_4$、$CaSiO_3$ へは、Cs と Sr はほとんど収着しなかった。この結果から、セメント試料における Sr と Cs の収着サイト密度が小さいことが示唆され、初期 Sr, Cs 濃度を下げた実験が必要であると考えられた。

以上の結果を踏まえて、平成 30 年度は、U の収着実験では初期 U 濃度を 10ppm とし、Sr と Cs の収着実験では初期 Sr、 Cs 濃度を 10μM として実験を行った。

実験に用いたセメント粉末試料の特性評価結果について説明する。基本粉末試料、200℃加熱粉末試料、400℃加熱粉末試料それぞれの粉末 X 線回折（XRD）分析結果を図 3.2-24 に示す。セメント固化試料作製時の水/セメント比を 0.36 および 0.60 として調製した試料、およびそれぞれを 200℃と 400℃に加熱して得た試料の合計 6 試料の XRD 結果はいずれもほぼ同一であり、すべての試料でポルトランダイト($Ca(OH)_2$)が主たる結晶相で、カルサイト（$CaCO_3$)を含むことがわかる。この結果は熱重量示差熱分析結果と一致する。水/セメント比 0.36 の基本粉末試料に対する熱重量示差熱分析の結果を図 3.2-25 に示す。480℃付近に水酸化カルシウムの脱水による大きな吸熱反応と、700℃付近に炭酸カルシウムの分解による吸熱反応が認められた。

基本粉末試料、200℃加熱粉末試料、400℃加熱粉末試料それぞれを純水に入れて溶解変質させた。図 3.2-26 に、液相の交換回数と液相中の主要元素（Ca, Al, Si）濃度の関係を示す。w/c 比 0.36 と 0.60 の両方とも、液相に溶解した元素濃度変化には 3 種類の試料でほぼ同じであった。Ca の溶出は 4 回目の交換でほぼゼロになった。Al は 8 回目の交換でほぼゼロになった。8 回目の終了後に固相を回収し乾燥させた。蛍光 X 線分析(XRF)によって求めたこれらの試料の元素組成を表 3.2-6 に、XRD 分析結果を図 3.2-27 に示す。0.36 と 0.60 の両方とも、元素組成および XRD 分析結果はほぼ同じであった。鉱物相としてはすべての試料でカルサイト（$CaCO_3$)が主要な相であることがわかった。溶解変質前に存在した水酸化カルシウムが溶解変質後試料に認められないことは、熱重量示差熱分析でも確認できた。すなわち、図 3.2-25 に示すように、水酸化カルシウムの脱水による 480℃付近の吸熱反応が認められず、炭酸塩の分解に起因する吸熱反応と大きな重量減少が 700℃～800℃にかけて認められた。

したがって、セメント試料は、w/c 比にかかわらず加熱による変質は無く、溶解による変質に関しても w/c 比にかかわらず一様の変化をすることがわかった。

U の収着実験結果を表 3.2-7 に示す。すべての試料において、U 初期濃度 10ppm の条件でも 99.9%以上の U が吸着し、分配係数はすべて 10^5 のオーダーの高い値となった。この試料の SEM-EDX 分析では、U は検出されなかった。U が特定の鉱物相に濃集せず、広く薄く収着したことが示唆される。ここで、U の化学種を熱力学計算により求めるため、溶解変質後のセメント粉末試料に純水を入れて 24 時間後の液相の主要元素濃度を定量した。この条件(Ca 0.4 M、 Mg 0.02 mM、 Si 0.7 mM、 U 10ppm、pH 8.6) から U の化学種を Geochemist Workbench によって求めると、U の大部分は電気的中性または負電荷を持った炭酸錯体として存在することが示唆される（表 3.2-8）。同様にセメント平衡水の主要元素濃度等から U の化学種を Geochemist Workbench によって求めると、U の大部分は負電荷を持った水酸化物錯体として存在

することが示唆される（表 3.2-8）。したがって、溶解変質前の試料を用いた実験条件と溶解変質後の試料を用いた実験条件では、収着した U の化学種が大きく異なるため、収着機構が異なる可能性が示唆される。

U 初期濃度 100ppm とした試料の SEM-EDX 分析の一例を図 3.2-28 に示す。図に示した SEM 像の面分析では、U が濃集しているところが 2 箇所認められるが、U の濃集箇所に偏在しているセメント主要元素は認められない。この試料の点分析結果を図 3.2-29 に示す。4 箇所の分析で、U は 1.7～34 重量%と大きく変化した。U が 34 重量%検出した箇所では、U の特性 X 線が明らかに検出された。図 3.2-28 および図 3.2-29 に示した箇所以外を含め 60 箇所以上の点分析において、検出された U の重量%は 0.7～38%と大きな幅があった。U の mol%では 0.1～7.8%である。しかし、表 3.2-9 に示すように、U 以外の元素については、U の重量%に関わらず概ね一定であった。この結果は、固相の特性に関係無く U が収着したことを示す。セメント平衡水中の主要元素組成を元に U の化学種を Geochemist Workbench によって求めると、水溶液中 U の大部分は負電荷を持つ水酸化物錯体であることが示唆された（表 3.2-8）。水酸化物錯体は一般的に固相に収着しやすく、かつ重合しコロイドを形成しやすい。重合度が大きく異なる錯体が固相に収着したことによって、固相の U 濃度に大きな幅が生じた可能性が考えられる。U 初期濃度 10ppm の場合に U が検出されなかった理由としては、U 濃度が低いため水酸化物錯体の重合度が小さく、それが収着しても SEM-EDX で検出できなかったことが挙げられる。

Cs 初期濃度 10μM における収着実験結果を表 3.2-10 に示す。Cs では溶解変質前のセメント粉末試料に対しては約 30%の Cs が吸着し、分配係数は 50 mL/g 程度であり、水/セメント比の違いはなかった。これらの値は Cs 濃度 1mM のときの値と大きくは変わらない。溶解変質前のセメントの Cs に対する収着能は小さいことが明らかとなった。溶解変質後の試料に対しては、約 95%の Cs が吸着した。分配係数は約 5～6×10^3 mL/g である。実験後の液相の pH は、溶解変質前試料で 12.4～12.8、溶解変質後試料で 9.1～9.5 であった。水溶液中の Cs の化学種は pH により変化せず Cs^+である。平成 29 年度に行った実験では、溶解変質後の固相に生成するカルサイト（$CaCO_3$）へは Cs はほとんど収着しなかった。したがって、溶解変質により生成したカルサイト以外の微量成分に収着した可能性があるが、X 線回折分析では同定できなかった。脱離実験では、2 回の 1mM $CaCl_2$ 水溶液による処理で、水/セメント比 0.60、加熱無し、溶解変質後の試料からは、固相に収着した Cs の約 5%が、水/セメント比 0.60、400℃加熱、溶解変質後の試料からは約 8%の Cs が脱離した（表 3.2-11）。本脱離実験だけからは正しい判断はできないものの、収着した Cs の多くは静電的結合よりも強固に結合していることが示唆される。

Sr 初期濃度 10μM における収着実験結果を表 3.2-12 に示す。Sr では溶解変質前のセメント粉末試料に対しては約 30%の Sr が吸着し、分配係数は 44～51 mL/g 程度であり、水/セメント比の違いはなかった。これらの値は Sr 濃度 1mM のときの値より幾分高い。溶解変質後の試料に対しては、約 95%の Sr が吸着した。分配係数は約 2×10^3 mL/g であった。水溶液中の Sr は本実験 pH 範囲では Sr^{2+}として存在するので、液

相の Sr の化学形が変化したことにより収着が増加したものではない。平成 29 年度に行った実験では、溶解変質後の固相に生成するカルサイト（$CaCO_3$）へは Sr はほとんど収着しなかった。したがって、Cs と同様に、溶解変質により生成したカルサイト以外の微量成分に収着した可能性がある。

Sr の脱離実験結果を表 3.2-13 に示す。脱離実験では、2 回の 1mM $CaCl_2$ 水溶液による処理で、水/セメント比 0.60、加熱無し、溶解変質後の試料からは、固相に収着した Sr の約 10%が、水/セメント比 0.60、400℃加熱、溶解変質後の試料からは約 13%の Sr が脱離した。本脱離実験だけからは正しい判断はできないものの、収着した Sr の多くは静電的結合よりも強固に結合していることが示唆される。

Na の 200℃加熱試料に対する収着試験における液相中の ^{22}Na の放射能濃度の経時変化を図 3.2-30 に示す。液相濃度は試験開始直後から初期濃度とほぼ同じ値となり、収着係数はゼロか無視できるほど小さいことが示された。また、この試験期間の Na 濃度もほぼ一定であった。収着が極めて小さかったことから、脱離試験における液相の ^{22}Na の放射能濃度も極めて低い値となった。また、図 3.2-31 に示すように、脱離時の液相の Na 濃度もほぼ一定であった。

HTO の 200℃加熱試料に対する収着試験における液相中の HTO の放射能濃度の経時変化を図 3.2-32 に示す。固液比が異なる試験においても、液相濃度はブランク試料も含めて、試験期間中ほぼ一定の値であった。このことから、Na と同様に、見かけの収着係数はゼロか無視できるほど小さいことが確認できた。また、脱離試験においても、固相から脱離した HTO による液相中の HTO 濃度の増加は認められなかった。これは、セメント試料中の H_2O と HTO との間の同位体交換（同位体希釈）の程度は極めて低く、拡散・収着時への影響は低いことを意味している。

以上のことから、Na および HTO の見かけの拡散係数に及ぼす収着の影響は顕著ではなく、Na の見かけの拡散係数が HTO のそれを上回ったのは、Na は主に毛細管空隙を移行するのに対し、HTO は毛細管空隙に加えて、移行遅延を受けやすいゲル空隙も拡散することに起因する可能性が示唆された。

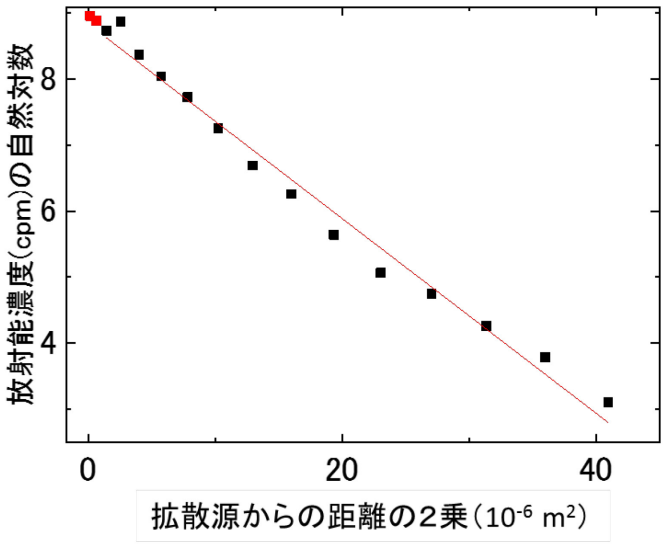


図 3.2-18　セメント試料中の Cs^+の濃度分布の一例

(w/c 比 0.36、養生温度 50℃、養生期間 28 日、加熱温度 400℃、拡散温度 50℃、拡散期間 21 h、見かけの拡散係数 2.2×10^{-11} m^2 s^{-1})

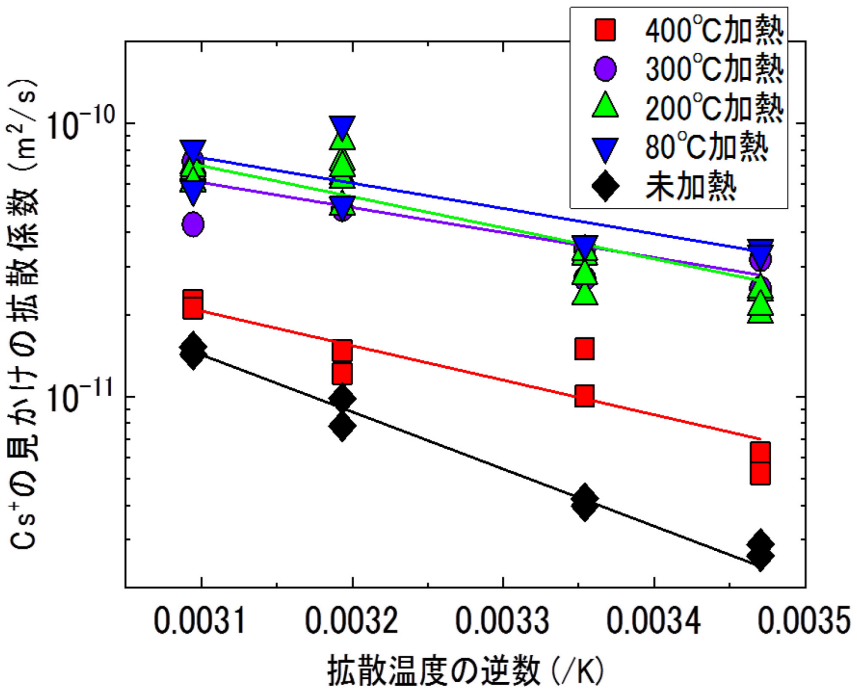


図 3.2-19　セメント試料中の Cs^+の見かけの拡散係数の拡散温度依存性

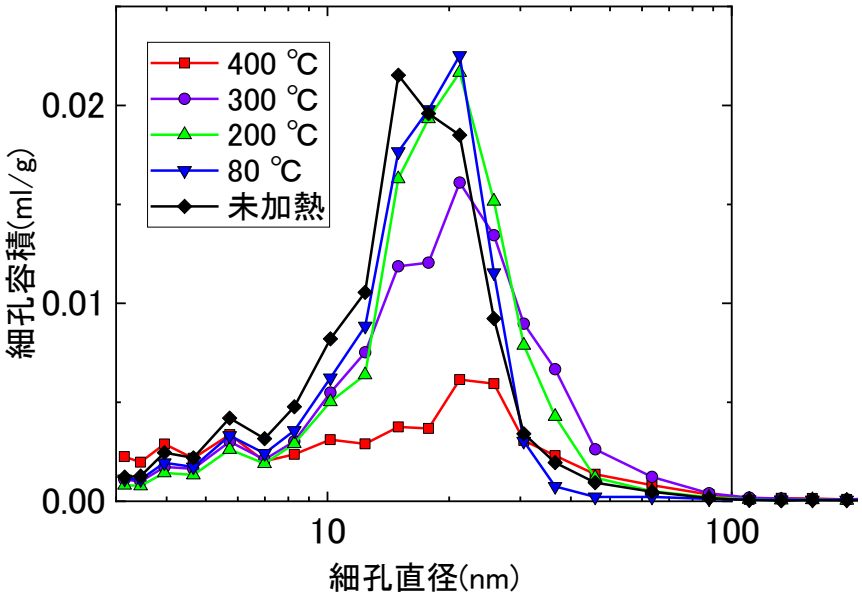


図 3.2-20　再水和後セメント試料の細孔容積分布（水銀圧入法）

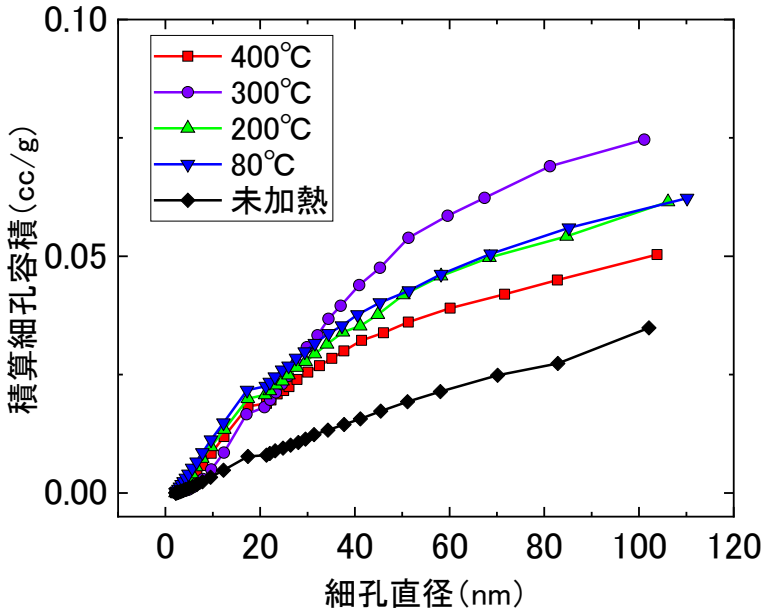


図 3.2-21　再水和後セメント試料の積算細孔容積（ガス吸着法）

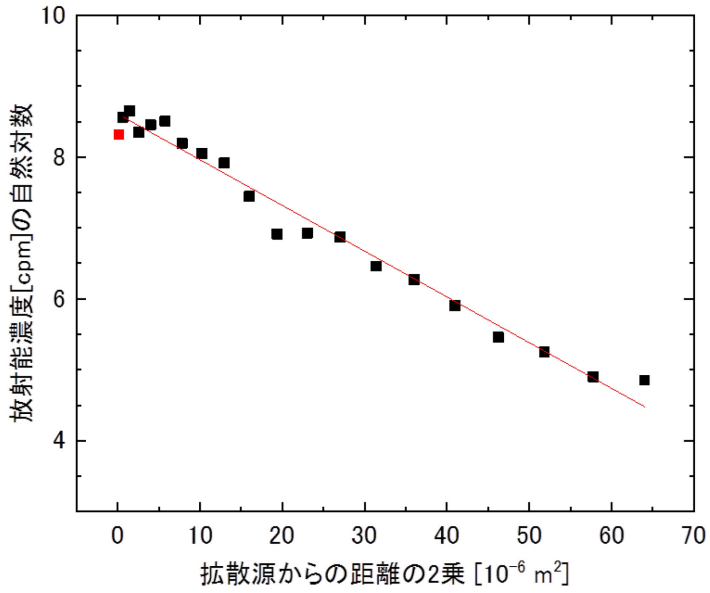


図 3.2-22　セメント試料中の Na^+の濃度分布の一例
（w/c 比 0.36、養生温度 50℃、養生期間 28 日、未加熱試料
拡散温度 50℃、拡散期間 56.3 h、見かけの拡散係数 1.9×10^{-11} m^2 s^{-1}）

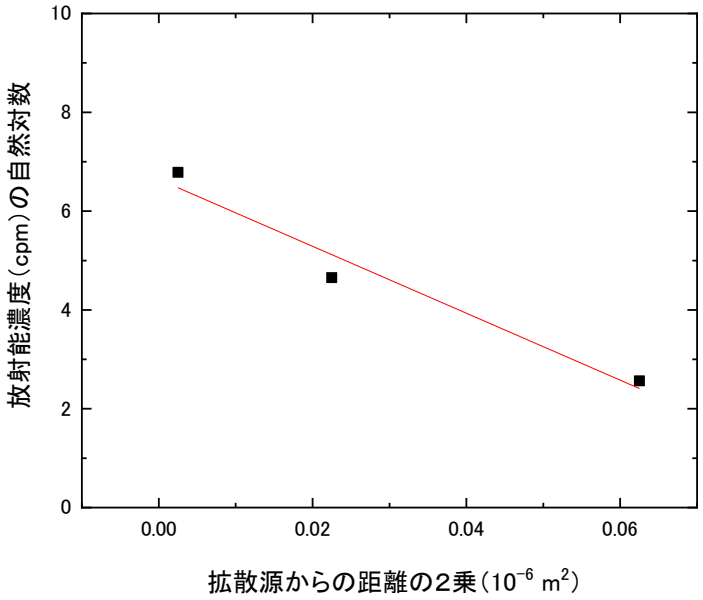


図 3.2-23　セメント試料中の U の濃度分布の一例

（w/c 比 0.36、養生温度 50℃、養生期間 28 日、400℃加熱試料、拡散温度 50℃、拡散期間 2928 h、見かけの拡散係数 3.4×10^{-16} m^2 s^{-1}）

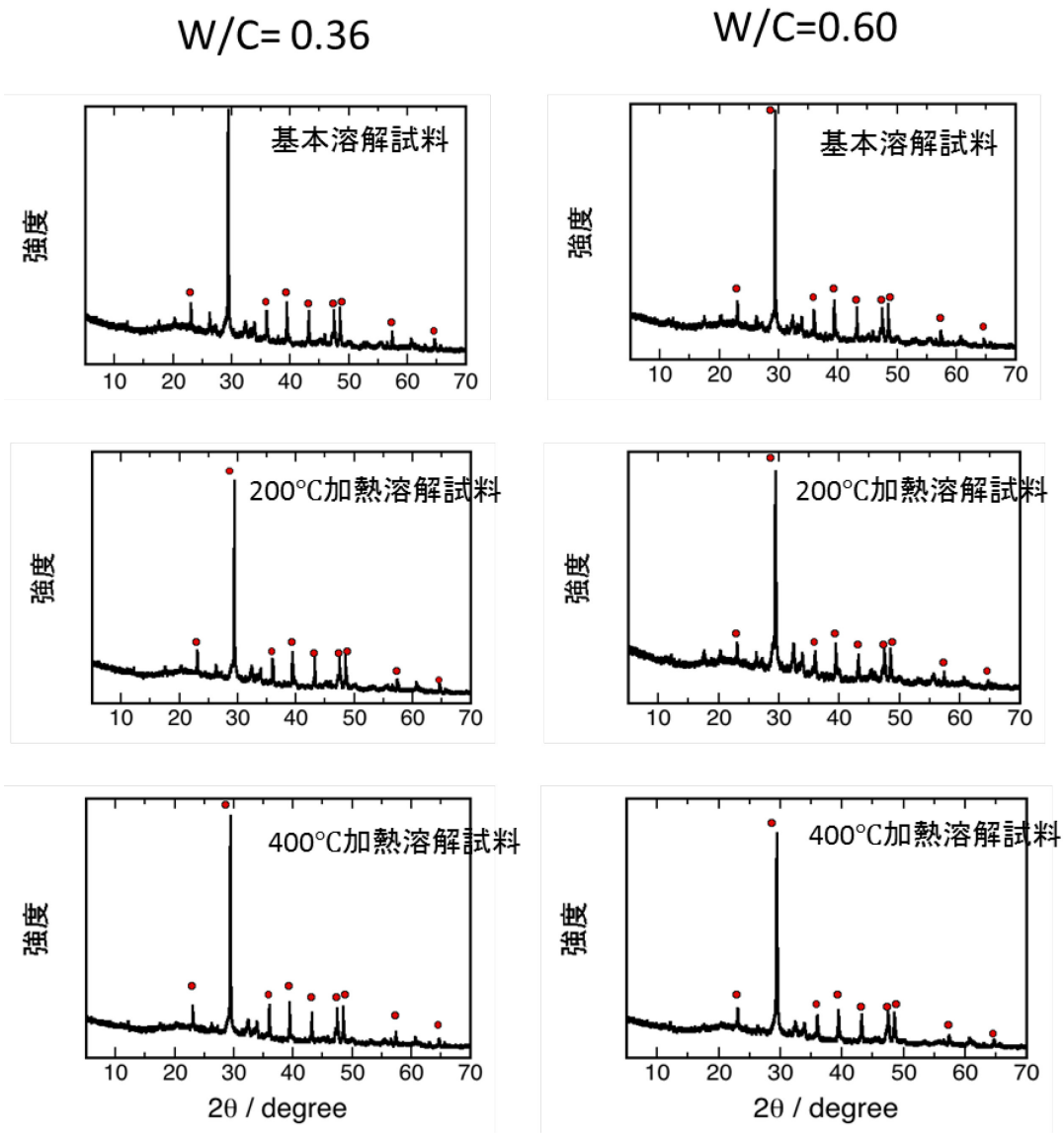


図 3.2-24　粉末化したセメント試料の X 線回折分析

（左列：w/c 比 0.36、右列：w/c 比 0.60、●$CaCO_3$）

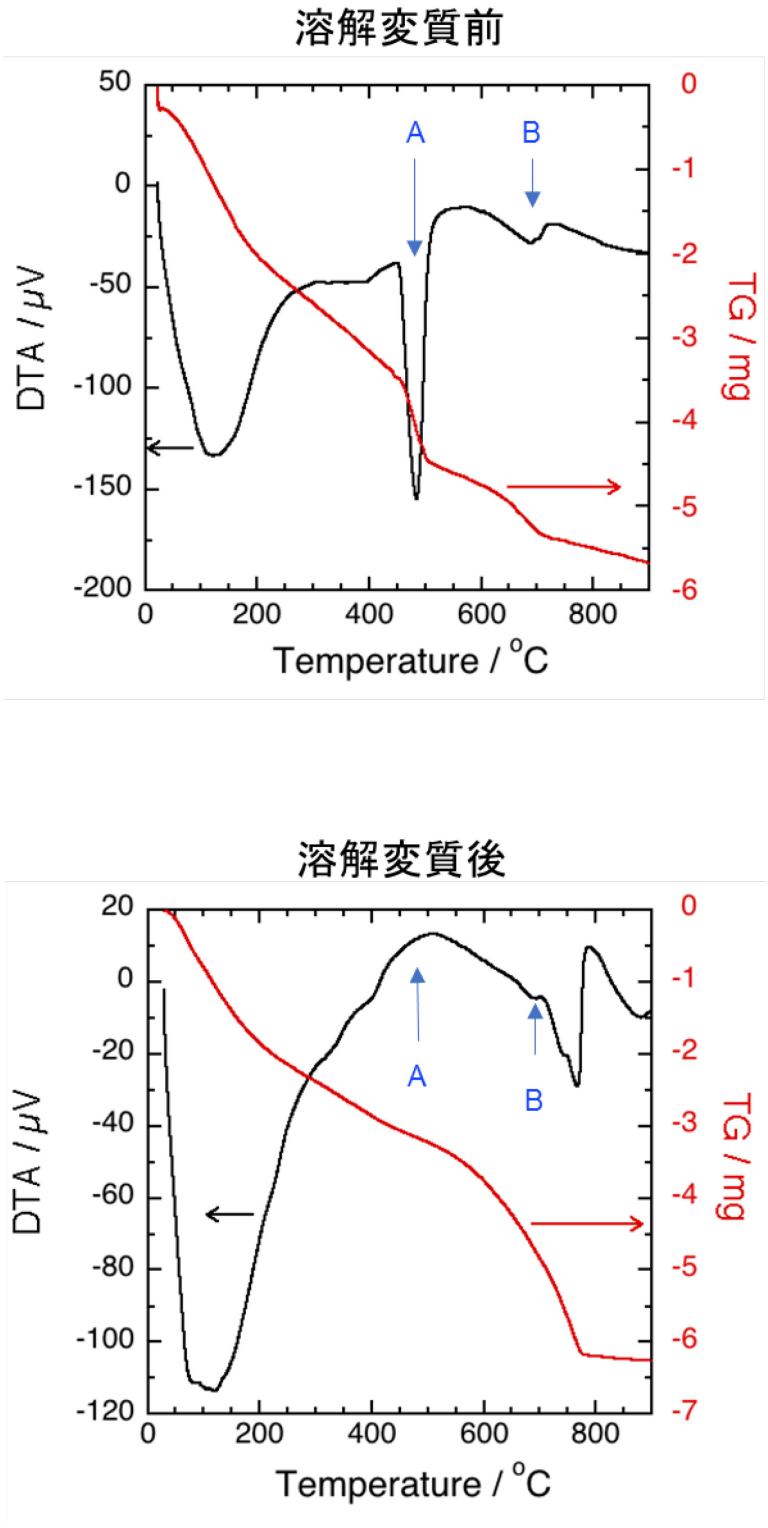


図 3.2-25　粉末化したセメント試料の熱重量示差熱分析

（上：溶解変質前[w/c 比 0.36, 基準粉末試料]、下：その溶解変質試料）

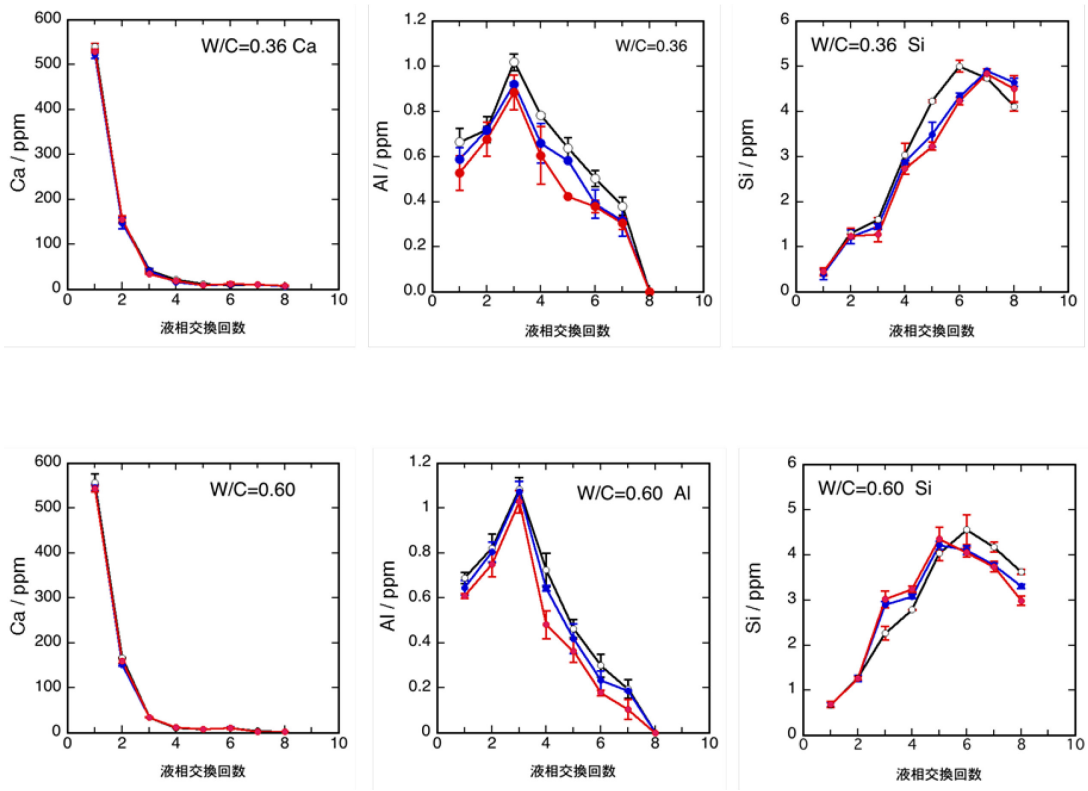


図 3.2-26　粉末化したセメント試料の溶解変質実験における主要元素の溶出
（－○－：基本粉末試料、－●－：200℃加熱粉末試料、－●－：400℃加熱粉末試料）

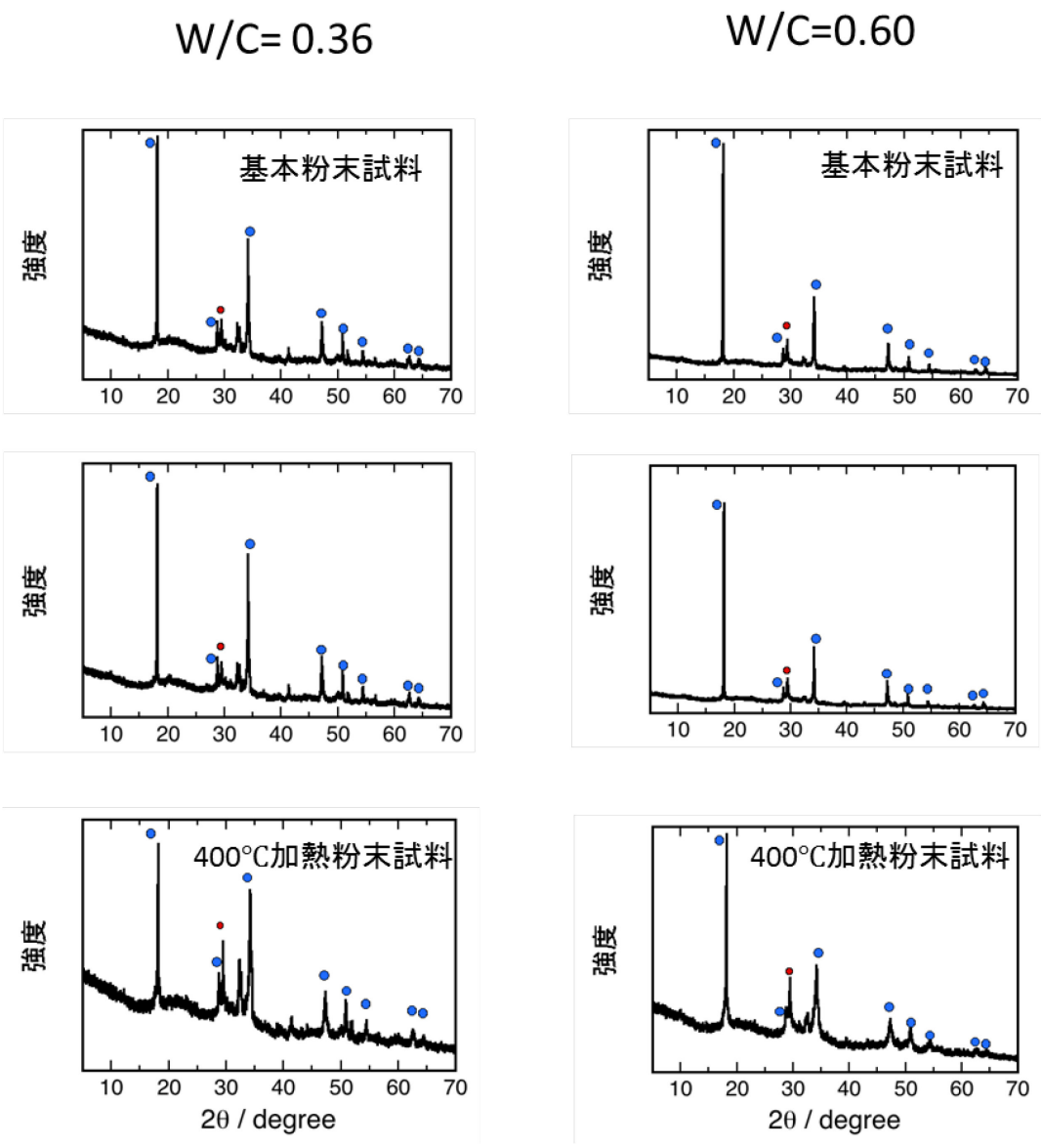


図 3.2-27　粉末化したセメント試料の X 線回折分析

（左列：w/c 比　0.36、右列：w/c 比　0.60、●$Ca(OH)_2$、●$CaCO_3$）

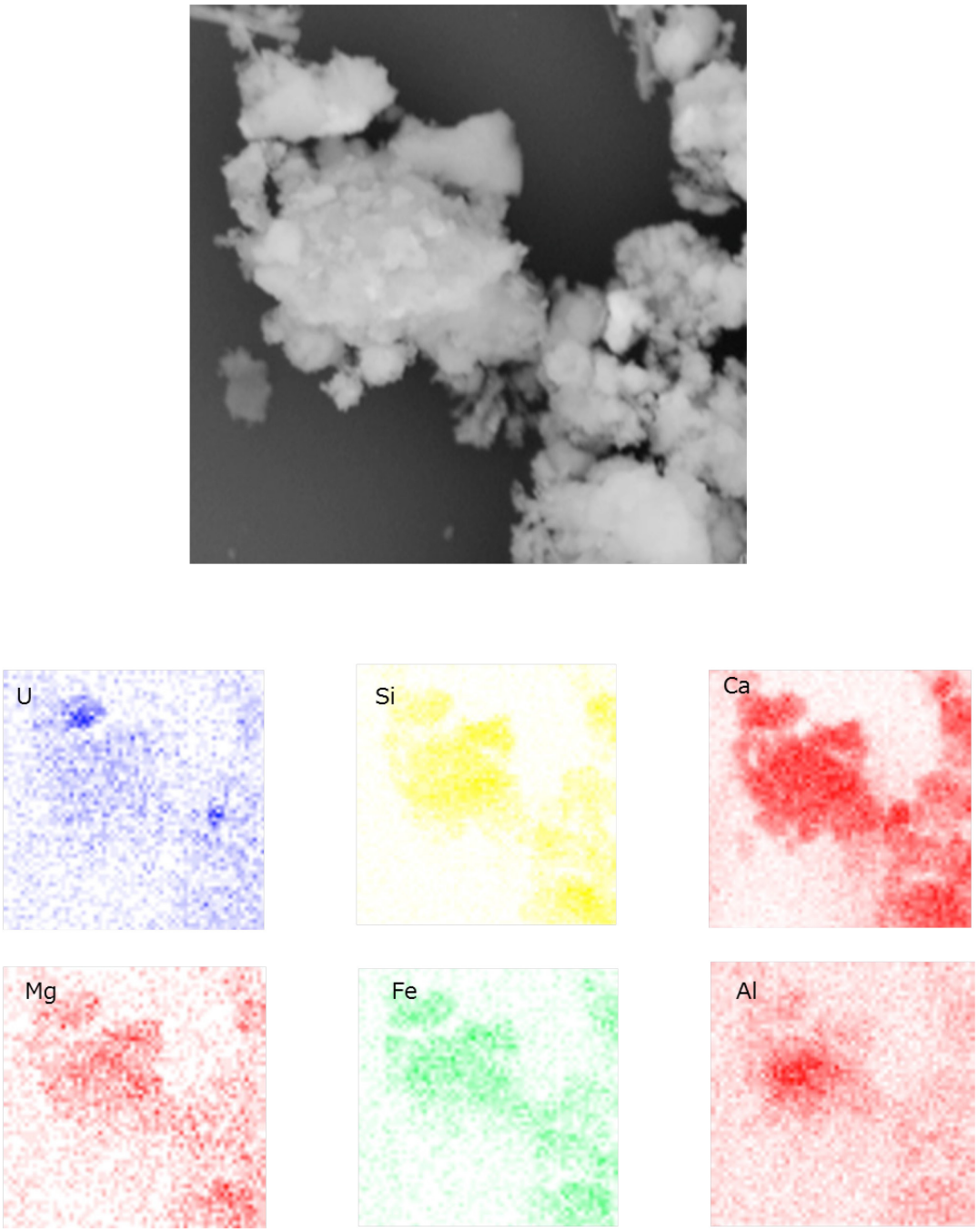


図 3.2-28　セメント試料に収着した U の SEM 像および SEM-EDX による元素マッピング（w/c 比= 0.36、基本粉末試料[溶解変質前]、セメント平衡水、U 初期濃度 100ppm）

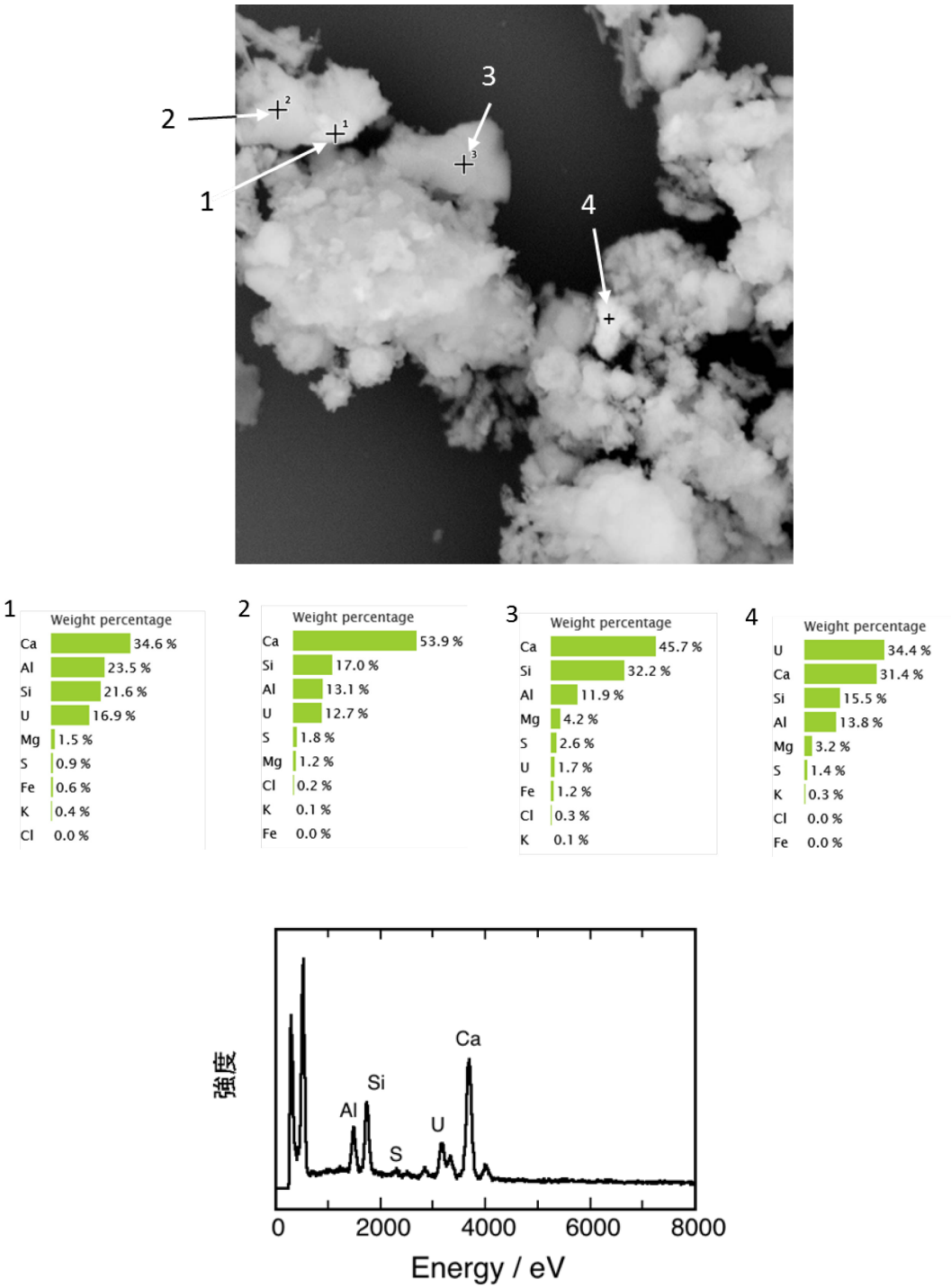


図 3.2-29　セメント試料に収着した U の SEM 像および SEM-EDX スペクトルの例
(w/c 比 0.36、基本粉末試料[溶解変質前]、セメント平衡水、U 初期濃度 100ppm)

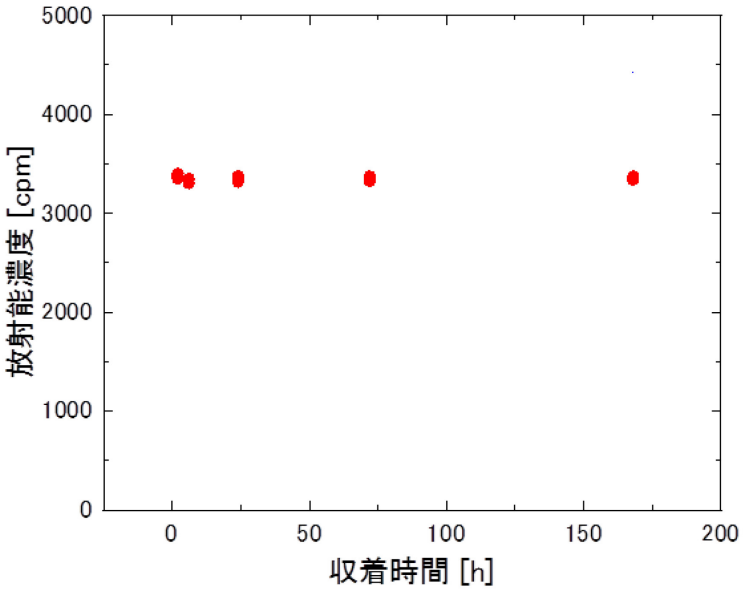


図 3.2-30　セメント試料への ^{22}Na の収着試験における液相中の ^{22}Na 濃度の経時変化
(w/c 比 0.36、養生温度 50℃、養生期間 28 日、200℃加熱試料)

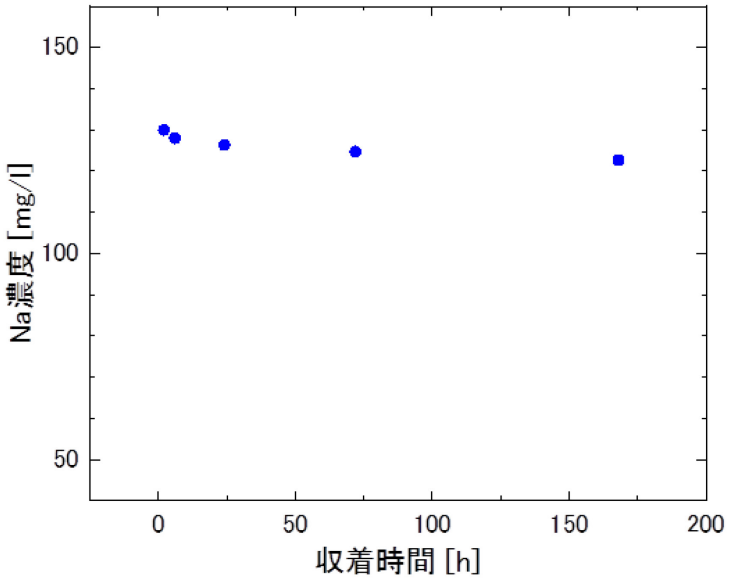


図 3.2-31　脱離試験時における液相中の Na 濃度経時変化
(w/c 比 0.36、養生温度 50℃、養生期間 28 日、200℃加熱試料)

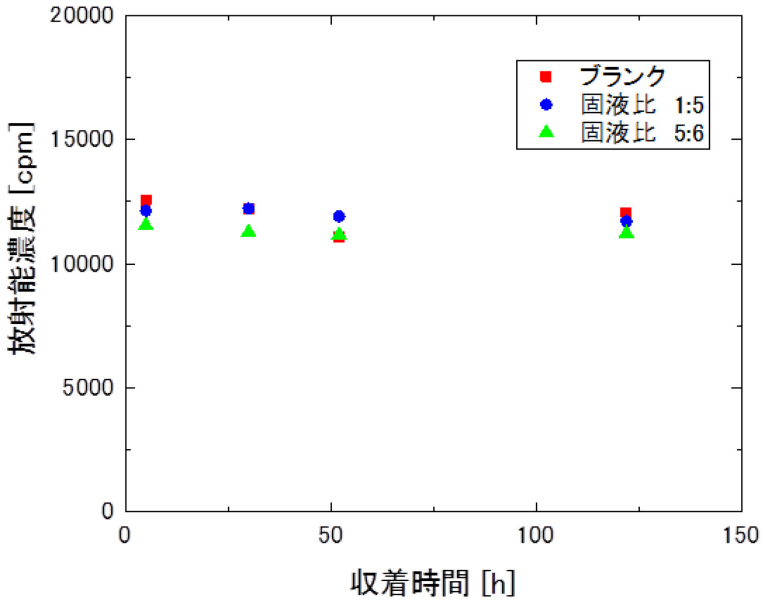


図 3.2-32　収着試験時における液相中の HTO 濃度の経時変化

（w/c 比 0.36、養生温度 50℃、養生期間 28 日、200℃加熱試料、■：ブランク試料、●：固液比 1:5、▲：固液比 5:6）

表 3.2-1　セメント試料中の Cs の拡散試験の結果

		Da ($\times10^{-11}$ m^2 s^{-1})				Ea
		288K	298K	313K	323K	(kJ mol^{-1})
Cs	加熱 80℃	3.2	3.6	9.2	7.3	18.3±5.4
		3.4	3.6	5.0	5.8	
	加熱 200℃	2.5	3.4	6.6	6.7	26.1±2.6
		2.6	3.5	7.4	6.1	
		2.1	2.2	6.2	7.0	
		2.2	2.9	8.9	6.4	
		2.8	3.2	5.0	7.1	
		3.5	3.5	7.1	6.1	
	加熱 300℃	2.5	2.6	7.0	4.5	15.4±4.5
		3.3	3.6	5.0	4.4	
	加熱 400℃	6.2.E-01	1.4	1.2	2.2	25.5±3.6
		5.2.E-01	1.0	1.6	2.2	
	未加熱	2.8E-01	4.7E-01	8.6E-01	1.3	37.1±2.0
		3.0E-01	3.8E-01	9.8E-01	1.6	

表 3.2-2　セメント試料中の Na の拡散試験の結果

		Da（×10^{-11} m^2 s^{-1}）				Ea
		288K	298K	313K	323K	(kJ mol^{-1})
Na	加熱 200℃	3.1 4.0	6.8 4.7	5.2 3.4	1.2E+01 6.3	14.4±7.6
	未加熱	5.1E-01 6.0E-01	1.7 1.4	1.1 1.2	1.6 1.9	18.6±6.9

表 3.2-3　セメント試料中の Sr の拡散試験の結果

		Da (×10^{-11} m^2 s^{-1})				Ea
		288K	298K	313K	323K	(kJ mol^{-1})
Sr	加熱 200℃	2.2E-01 1.8E-01	1.7E-01 8.0E-02	1.0 8.9E-02	3.8E-01 1.6E-01	
	未加熱	1.4E-01 3.4E-02	3.6E-02 3.8E-02	1.4E-01 7.0E-02	1.0E-01 1.3E-01	16.9±12.0

表 3.2-4　セメント試料中の HTO の拡散試験の結果

		Da（×10^{-11} m^2 s^{-1}）			
		288K	298K	313K	323K
HTO	加熱 200℃	3.1E+00 2.8E+00			
	未加熱	8.4E-12 8.5E-01			

表 3.2-5　セメント試料中の U の拡散試験の結果

		Da（×10^{-11} m^2 s^{-1}）			
		288K	298K	313K	323K
U	加熱 200℃				3.7E-05 3.3E-05
	未加熱				3.5E-05 3.5E-05

表 3.2-6　蛍光 X 線分析(XRF)によるセメント試料の元素組成

溶解変質前

	W/C=0.36			W/C=0.60		
	基本	200℃	400℃	基本	200℃	400℃
CaO	66.0	66.1	65.9	65.5	65.2	65.5
SiO_2	22.2	21.8	22.4	22.7	23.3	22.7
Al_2O_3	4.8	5.0	5.0	4.8	4.9	5.0
Fe_2O_3	3.0	3.2	2.8	3.0	3.0	2.9
SO_3	2.0	1.8	2.0	1.9	1.3	2.0
MgO	1.1	1.1	1.1	1.1	1.0	1.1
K_2O	0.3	0.3	0.3	0.5	0.7	0.2
TiO_2	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
SrO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
CuO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
ZnO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0
MnO	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0
Cr_2O_3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
V_2O_5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
ZrO_2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
合計%	100.0	99.9	100.0	100.0	100.0	100.0

溶解変質後

	W/C=0.36			W/C=0.60		
	基本	200℃	400℃	基本	200℃	400℃
CaO	48.6	48.8	47.3	49.3	47.9	51.6
SiO_2	34.6	34.0	35.5	33.5	35.0	31.7
Al_2O_3	7.9	8.0	8.2	8.1	8.2	7.7
Fe_2O_3	5.7	5.8	5.4	5.6	5.6	5.7
SO_3	0.3	0.3	0.2	0.3	0.3	0.1
MgO	2.1	2.1	2.2	2.2	2.3	2.1
K_2O	0.0	0.2	0.2	0.2	0.0	0.2
TiO_2	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
SrO	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
CuO	0.1	0.1	0.0	0.1	0.1	0.1
ZnO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
MnO	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
Cr_2O_3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
V_2O_5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
ZrO_2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
合計%	100.0	100.0	99.8	100.0	100.0	100.0

表3.2-7　セメント試料へのU収着実験結果

W/C	試料	溶解変質前			溶解変質後		
		収着%	分配係数 mL/g	pH	収着%	分配係数 mL/g	pH
0.36	基本粉末試料	＞99.9	$5.6x10^5 \pm 6.6x10^4$	12.7 ± 0.1	＞99.9	$7.3x10^5 \pm 8.9x10^4$	9.8 ± 0.0
0.36	200℃加熱粉末試料	＞99.9	$5.5x10^5 \pm 3.4x10^4$	12.6 ± 0.0	＞99.9	$7.2x10^5 \pm 4.5x10^4$	9.9 ± 0.0
0.36	400℃加熱粉末試料	＞99.9	$5.5x10^5 \pm 1.8x10^4$	12.6 ± 0.0	＞99.9	$7.2x10^5 \pm 6.2x10^4$	9.8 ± 0.0
0.60	基本粉末試料	＞99.9	$5.9x10^5 \pm 9.4x10^4$	12.7 ± 0.0	＞99.9	$7.6x10^5 \pm 3.8x10^4$	9.7 ± 0.0
0.60	200℃加熱粉末試料	＞99.9	$5.8x10^5 \pm 8.3x10^4$	12.7 ± 0.0	＞99.9	$7.3x10^5 \pm 9.0x10^4$	9.7 ± 0.0
0.60	400℃加熱粉末試料	＞99.9	$5.7x10^5 \pm 3.4x10^4$	12.7 ± 0.0	＞99.9	$7.1x10^5 \pm 3.8x10^4$	9.7 ± 0.0

表 3.2-8　推定される水溶液中の U 化学種

1. セメント平衡水　U初期濃度 10ppm

初期条件

化学種	mol/L
Al^{3+}	3.95E-04
CO_3^{2}-	1.98E-06
Ca^{2+}	1.42E-02
Cl^{-}	1.39E-02
NO_3^{-}	9.88E-06
UO_2^{2+}	4.15E-05
pH	12.0

U化学種

U化学種	mol/L
$UO_2(OH)_4^{2-}$	2.28E-05
$UO_2(OH)_3^{-}$	1.87E-05

< 1E-8の化学種は省略

2. 溶解変質後試料と接触させた水相　U初期濃度 10ppm

初期条件

化学種	mol/L
CO_3^{2-}	6.91E-04
Ca^{2+}	3.80E-04
Cl^{-}	2.42E-05
H_4SiO_4	7.31E-04
Mg^{2+}	2.47E-05
NO_3^{-}	9.87E-06
UO_2^{2+}	4.15E-05
pH	8.6

U化学種

U化学種	mol/L
$Ca_2UO_2(CO_3)_3$	3.40E-05
$UO_2(CO_3)_3^{4-}$	1.66E-06
$(UO_2)_2CO_3(OH)_3^{-}$	1.58E-06
$UO_2(CO_3)_2^{2-}$	1.55E-06
$CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$	1.04E-06
UO_2CO_3	1.67E-08
$UO_2(OH)_2$	1.48E-08

< 1E-8の化学種は省略

3. セメント平衡水　U初期濃度 100ppm

初期条件

化学種	mol/L
Al^{3+}	3.95E-04
CO_3^{2}-	1.98E-06
Ca^{2+}	1.42E-02
Cl^{-}	1.39E-02
NO_3^{-}	9.88E-06
UO_2^{2+}	4.15E-04
pH	12.0

U化学種

U化学種	mol/L
$UO_2(OH)_4^{2-}$	2.28E-04
$UO_2(OH)_3^{-}$	1.87E-04
$(UO_2)_3(OH)_7^{-}$	1.61E-07
$UO_2(OH)_2$	1.95E-08

< 1E-8の化学種は省略

※初期条件の炭酸イオン濃度は炭酸カルシウムが析出しない上限とした。

表 3.2-9　U 収着実験後のセメント試料の SEM-EDX 分析

U を収着させたセメント粉末試料を SEM-EDX による点分析を行った。60 箇所以上行った中から最も U 濃度が低い箇所と高い箇所を含む 6 点の分析値を示す。

w/c= 0.36、基本粉末試料（溶解変質前）

セメント平衡水、U 初期濃度 100ppm

	重量%	mol%	セメント成分元素のみmol%	重量%	mol%	セメント成分元素のみmol%	重量%	mol%	セメント成分元素のみmol%
Ca	29.9	36.2	39.2	39.0	49.0	53.1	33.1	38.8	41.7
Si	15.4	26.6	28.8	15.2	27.2	29.6	16.2	27.1	29.1
Al	12.3	22.1	24.0	5.5	10.3	11.1	11.3	19.7	21.2
S	1.3	2.0	2.1	1.2	1.9	2.0	0.9	1.3	1.4
Mg	2.4	4.8	5.2	1.5	3.1	3.4	2.7	5.2	5.6
Fe	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0	0.0	0.0
Cl	0.1	0.1	0.1	0.3	0.4	0.5	0.3	0.4	0.4
K	0.4	0.5	0.5	0.2	0.3	0.3	0.4	0.5	0.5
U	38.1	7.8		37.2	7.9		35.1	6.9	
	99.9	100.0	100.0	100.1	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

	重量%	mol%	セメント成分元素のみmol%	重量%	mol%	セメント成分元素のみmol%	重量%	mol%	セメント成分元素のみmol%
Ca	32.4	23.6	23.6	48.6	45.6	45.7	61.4	54.1	54.3
Si	17.0	17.9	17.9	27.2	34.1	34.2	19.2	24.2	24.3
Al	28.7	31.8	31.8	8.1	10.9	10.9	11.9	15.6	15.6
S	1.8	1.6	1.6	1.1	1.1	1.1	2.4	2.6	2.7
Mg	9.0	11.0	11.0	1.4	2.1	2.1	2.0	2.9	2.9
Fe	9.8	5.1	5.1	8.9	5.5	5.5	0.0	0.0	0.0
Cl	0.3	8.7	8.7	0.5	0.3	0.3	0.0	0.0	0.0
K	0.3	0.2	0.2	0	0.1	0.1	0.2	0.2	0.2
U	0.7	0.1		4.3	0.3		2.8	0.4	
	100.0	100.0	100.0	100.1	100.0	100.0	99.9	100.0	100.0

表3.2-10　Cs収着実験結果

W/C	試料	溶解変質前			溶解変質後		
		収着%	分配係数 mL/g	pH	収着%	分配係数 mL/g	pH
0.36	基本粉末試料	11±1	12±1	13.6±0.1	98±1	$4.5x10^3$±$1.1x10^3$	9.5±0.1
0.36	400℃加熱粉末試料	12±1	14±1	13.6±0.1	98±0	$4.9x10^3$±$1.1x10^3$	9.4 ±0.1
0.60	基本粉末試料	42±4	72±13	12.6±0.1	98±0	$6.0x10^3$±$4.7x10^2$	9.1 ±0.0
0.60	400℃加熱粉末試料	33±9	51±20	12.8±0.1	98±0	$5.3x10^3$±$6.8x10^2$	9.2 ±0.1

表3.2-11　Cs脱離実験結果

	収着量	脱離1回目	脱離2回目	脱離合計		脱離1回目	脱離2回目
	cps	cps	cps	%		pH	pH
基本粉末試料 溶解変質後	63.9±0.1	2.0±0.3	1.5±0.1	5.4±0.3		9.1±0.5	9.3±0.3
400℃加熱粉末試料 溶解変質後	63.8±0.2	3.2±0.3	1.9±0.1	8.0±1.8		9.4±0.2	9.3±0.2

表3.2.12　Sr収着実験結果

W/C	試料	溶解変質前			溶解変質後		
		収着%	分配係数 mL/g	pH	収着%	分配係数 mL/g	pH
0.36	基本粉末試料	30±8	44±17	12.8±0.1	95±0	$2.0x10^{3}$±$6.6x10^{1}$	9.3±0.0
0.36	400℃加熱粉末試料	33±11	51±23	12.8±0.1	95±1	$2.1x10^{3}$±$3.2x10^{2}$	9.4±0.0
0.60	基本粉末試料	36±4	56±9	12.4±0.0	96±0	$2.4x10^{3}$±$2.6x10^{2}$	9.3±0.0
0.60	400℃加熱粉末試料	32±3	47±8	12.4±0.0	95±0	$1.8x10^{3}$±$1.0x10^{2}$	9.3±0.1

表3.2.-13　Sr脱離実験結果

	収着量	脱離1回目	脱離2回目	脱離合計		脱離1回目	脱離2回目
	cps	cps	cps	%		pH	pH
基本粉末試料 溶解変質後	69.3±0.3	4.2±0.8	2.9±0.3	10.3±1.6		9.4±0.2	9.0±0.1
400℃加熱粉末試料 溶解変質後	68.4±0.2	5.4±0.5	3.5±0.6	13.0±1.2		9.3±0.1	8.5±0.2

3.3 廃棄物管理シナリオ評価

3.3.1 廃棄物物性、物量評価（北海道大学および再委託先：日本原子力研究開発機構、福井大学）

(1) コンクリート廃棄物総量推計(北海道大学)

1 号機から 6 号機までの原子炉建屋およびタービン建屋の総重量は、合計でそれぞれ 691 千 t、833 千 t である。1F3 号機で使われたコンクリート量は、原子炉建屋で 47,900m^3、タービン建屋で 71,900 m^3 とされており[8]、コンクリートの密度を 2.3t/m^3 として表 3.3-1 に示す総重量と比較するとそのほとんどがコンクリートであることがわかる。原子炉建屋、タービン建屋のコンクリート量を総重量に対し、それぞれ 95%、90%がコンクリートであると仮定すると、事故の影響を受けた 1-4 号機合計のコンクリート量は原子炉建屋で約 370 千 t、タービン建屋で約 420 千 t と推計される。

また、3 号機のコンクリートは、原子炉建屋およびタービン建屋において、一般構造用に供されているのがそれぞれ約 57%および約 41%、遮蔽用がそれぞれ約 30%および約 25%、人工岩用がそれぞれ約 13%および約 34%となっている[8]。このデータを基に、おおまかに概算のコンクリート量の分布を表 3.3-2 のように推定する。

未加熱および加熱セメントペースト中の放射性核種の拡散係数は、表 3.3-3 にまとめるとおりである。

(2) 原子炉建屋で採取された瓦礫の分析事例（原子力機構）

廃炉汚染水対策の一環として、継続して廃棄物の放射化学的分析が行われており、得られた分析データは随時公開されている。最近の報告から、コンクリートに係わる分析データを調べた。

4 号機原子炉建屋の 1 から 4 階にて、床のコンクリートコアが採取、分析された[9]。4 号機は、事故の当時、燃料を装荷しておらず、3 号機での燃料損傷に伴い、排気系統を通じて汚染を被った。すなわち、汚染は空気を経由したものと考えられる。検出された核種は、^{3}H、^{14}C、^{60}Co、^{137}Cs、^{238}Pu であった。濃度は概して低く、管理区域に係わる表面密度限度を下回っている。^{137}Cs に対して放射能濃度をプロットした図を引用して図 3.3-1 に示す。1 から 3 号機の瓦礫については、2 から 3 桁のばらつきの範囲で概ね相関する一方で、4 号機は異なる傾向を示している。

コンクリートの分析では、塊状で採取した試料からその一部が分取して供される。元の塊状の試料は従来汚染分布が求められておらず、局所的な分布の様子がイメージングプレート（IP）により調べられた[10]。試料は、2012 年に原子炉建屋の周辺、2016 年に 3 号機操作階、2015 年に覆土式一時保管施設にてそれぞれ採取されたコンクリートの破片である。これらのうち、建屋周辺で得られた試料は、1 年余りの間、屋外にて環境条件に曝されていたものであり、汚染の浸透挙動の観点から興味深い。

IP の撮影は、撮影と研削を繰り返して行い、多数の IP 像から分布の様子が見て取れる。3 号機西側で採取された試料の例を図 3.3-2 に引用して示す。水色の塗膜を有しており、この面は外壁であったとみられる。外壁面の汚染は顕著ではなく、他の 3 つの側面に認められた。汚染は爆発によって外壁が破壊された後に被ったものと考えられる。雨水によっては、汚染は面方向に拡散しなかったものと見受けられる。一方で、IP 像

によっては、汚染の浸透深さを定量的に評価できないが、雨水による浸透の可能性がうかがわれる。

(3) 汚染水を介した移行に関する検討の事例(原子力機構)

原子炉建屋等の地下に滞留する汚染水は、放射性核種を除去するための処理を行い、循環、再利用されている。汚染水から構造材料へと放射性核種が移行する挙動が検討されている[11]。Cs、Sr と Ni を対象とした模擬実験により、Ni の収着が示唆された。

また、英知事業「放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究」が平成 29 年度より開始され、熱変性を受けていない条件でのコンクリートを対象として、核種の浸透が調べられている。

(4) モデルによるコンクリート中の放射性核種濃度分布計算汚染(福井大学)

①コンクリートの分類

福島第一原発の廃炉から発生する汚染コンクリートは、最終的には廃棄体化された状態での放射性核種濃度によってレベル区分される。この放射性核種濃度は、もともとの汚染コンクリートにおける放射性核種濃度分布やそれに適用される管理シナリオによって左右されるものである。この汚染コンクリート中の核種濃度分布や管理シナリオの検討においては、汚染が発生した時点の状況でコンクリートを分類することが有用である。

本検討では、特に核種濃度分布に影響を及ぼすと考えられる次の観点から汚染コンクリートを分類した。

- 熱変質の程度（熱変質なし、熱変質あり、ひび割れの発生）：事故発生直後の炉心部近傍の高温環境下でのセメント材料の熱的変質を考慮する。ここでは熱的変質に伴って生じると考えられるセメント性状の変化やコンクリート表面でのひび割れに着目した。
- 周辺環境（気中のコンクリート、汚染水に浸ったコンクリート）：気中にあるコンクリート構造材と滞留水中にあるコンクリート構造材の環境の違いを考慮する。コンクリートの周辺環境によって、放射性物質の表面濃度の境界条件が異なると考えられる。

このような観点で下記の表 3.3-4 のようにコンクリートを分類し、表 3.3-2 を用いて物量を推計した。

②モデル作成

環境条件の組み合わせに基づき設定したコンクリート中の拡散モデルの体系を表 3.3-5 に示す。このようなジオメトリにおける放射性核種（^{137}Cs）の拡散移行挙動を解析するモデルを作成した。

3.11 事故当時、燃料デブリを起源とした放射性核種が水滴等とともに建屋内の壁面に付着したことを想定する。また、水没した領域では、水中に溶解した放射性核種とコンクリート壁面が接触している。このような初期の状態から、コンクリート壁内への放射性核種の拡散が始まると考える。その後、冷却のための散布水や地下水の流れによって、水中の核種濃度は幾分か薄まると考えられ、場合によっては、コンクリート中に浸透した放射性核種が水中に逆戻りすることも考えられる。建屋内のコンク

リート構造物の解体後も、解体廃棄物片が貯蔵されている期間中、拡散による濃度分布の変化は幾分か進むと考えられる。

拡散媒体としてのコンクリートには、事故当時の高温環境下におけるセメント材の熱変質やひび割れ等の影響が存在し得る。熱変質したセメント中では、見かけの拡散係数が変化すると考えられ、その拡散係数の値や変質層の厚さによって放射性核種の濃度分布に影響が及ぶ。これらのパラメータについては、現時点では正確に把握できておらず、これらのパラメータの不確かさに柔軟に対応できる分析が必要である。なお、建屋内壁のコンクリート表面には、このような核種や水分の浸透を抑制するコーティングが本来部分的に施工されている。その健全性や損傷の程度がコンクリート内部に浸透する放射性物質の濃度に影響すると考えられるが、本検討においてはコーティングの機能が喪失し、コンクリート表面が放射性核種で直接汚染することを想定した。

まず、体系 A・B について Cs の拡散挙動を分析した（図 3.3-3）。見かけの拡散係数を 7.4×10^{-11} m^2/s と設定した。想定した拡散係数では 10 年で約 15cm の距離まで相当量の Cs が移行する。体系 C・D において想定するひび割れの深さが、この拡散距離に比較してとても小さい場合には、ひび割れによる Cs の移行への影響が無視できる。以降の検討では熱変質の影響として、主に核種の拡散係数や収着係数の変化に着目し、体系としては体系 A および B を用いた。

③地下部(滞留水中)のコンクリート中の ^{137}Cs の濃度分布計算

1)滞留水中の ^{137}Cs 濃度

滞留水に浸かったコンクリート中の核種拡散解析は、滞留水中の核種濃度が境界条件となる。東京電力ホールディングスより公開されている滞留水中の核種濃度データを抜粋し、図 3.3-4 に示す。滞留水資料採取期間およびサンプル数ともに限られているが、3 号機は原子炉建屋、タービン建屋ともに比較的高い ^{137}Cs 濃度となっている。データ全体としてはおよそ 1000 Bq/cm^3 ～ 10^6 Bq/cm^3 の幅をもって分布している。これに基づき、滞留水中の ^{137}Cs 濃度を表 3.3-6 のように設定した。なお、放射性崩壊による減衰を考慮して、濃度 C_R (t)の時間変化を以下のとおりと仮定した。

$$C_R(t) = C_0 \exp(-\lambda t)$$

ここで、C_0 は表 3.3-6 に示す初期濃度であり、λ は核種の崩壊定数である。炉心溶融直後の滞留水中には、より高い濃度の ^{137}Cs が含まれていた可能性があるが、ここではその影響を考慮していない。

2)拡散に関するパラメータの設定

滞留水中に浸かったコンクリートのうち、熱変質したコンクリートと変質のないコンクリートにおける、Cs の見かけの拡散係数およびその他のパラメータを表 3.3-7 のように設定した。ここでは、見かけの拡散係数の変化は、分配係数の変化に起因するものとして設定した。なお、核種は骨材中に拡散・収着しないものとし、

セメント内での拡散挙動を解析することとした。

3)計算結果

地下部の各々の領域におけるコンクリート中の ^{137}Cs 濃度分布計算結果を図 3.3-5 に示す。熱変質の有無によって見かけの拡散係数が約 1 桁異なる。熱変質のないコンクリートはどの領域においても、事故から 100 年経過してもおよそ 0.5m の深さで L3 濃度上限値以下あるいはクリアランスレベル以下となる。一方で、熱変質がある場合には、50 年程度で深さ 1m までがクリアランスレベル以上の ^{137}Cs 濃度となる。

この ^{137}Cs 濃度に基づいて、コンクリート表面からの深さ方向にレベル区分した結果を図 3.3-6 に示す。時間が経過すればするほどより高いレベル区分のコンクリートが増えていくことがわかる。常に ^{137}Cs で汚染された滞留水に曝されていることが前提となっているため、時間とともにより深くまで ^{137}Cs が広がってゆくことは自明である。ただし、後述するように、途中から滞留水中の濃度が 0 Bq/cm^3 になるケースでも、この傾向は変わらなかった。

図 3.3-6 の深さ方向分布を基に、1～4 号機における地下部（水中）のコンクリートの物量についてレベル区分ごとに算出した結果を図 3.3-7 に示す。

④地上部（気中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度の濃度分布計算

地上部（気中）のコンクリートにおいては、核種の拡散係数が非常に小さく、拡散による移動を無視し、コンクリートに付着した核種は表面に留まると仮定した。

東京電力による空間線量率のサーベイマップ[12]より、1 号機～6 号機での地上部における空間線量率を抽出した。空間線量率は場所によって大きく変動するため、おおよその線量率分布の範囲を表 3.3-8 にまとめた。

空間線量率から核種濃度を推測するために、換算係数を以下のとおり求めた。床面積 20m×20m、高さ 10m の直方体の部屋の壁・床・天井の表面に一定濃度 c(Bq/m^2)で核種（^{137}Cs）が付着したと仮定し、部屋の中央、床からの高さ 1m の位置における空間線量率 D(mSv/h)を ResRad[13]を用いて計算した。空間線量率と表面汚染濃度の換算係数として $D/c = 1.4\times10^{-9}$ $(mSv/h)/(Bq/m^{2})$ を得た。空間線量がすべて ^{137}Cs に起因するものと仮定して、空間線量率を表面汚染濃度に変換した。

このような地上部のコンクリートは、表面を斫って除染すると、汚染されていない（クリアランス相当の）コンクリートが残ると考えられる。ここでは、仮に深さ 2cm だけ斫ることで表面に付着した放射性核種を除去する場合を想定して、斫ることにより発生する（表面部の）廃棄物の ^{137}Cs 濃度に基づくレベル区分を整理した。その結果を表 3.3-8 に合わせて示す。1 号機～4 号機では、原子炉建屋・タービン建屋ともに L2 相当の廃棄物が発生することがわかった。

一方、仮に表面を斫らずに汚染したまま、厚さ 1m のコンクリートブロックを切り出して放射性廃棄物とする場合についても、^{137}Cs 濃度からレベル区分を求め、表 3.3-8 に示した。このときの濃度は 1m の厚さのコンクリートで希釈された平均濃度として計算した。濃度に応じて L3 および L2 のコンクリート廃棄物が発生することがわかった。

上記の条件下での区分別の廃棄物量推計結果を表 3.3-9 に示す。

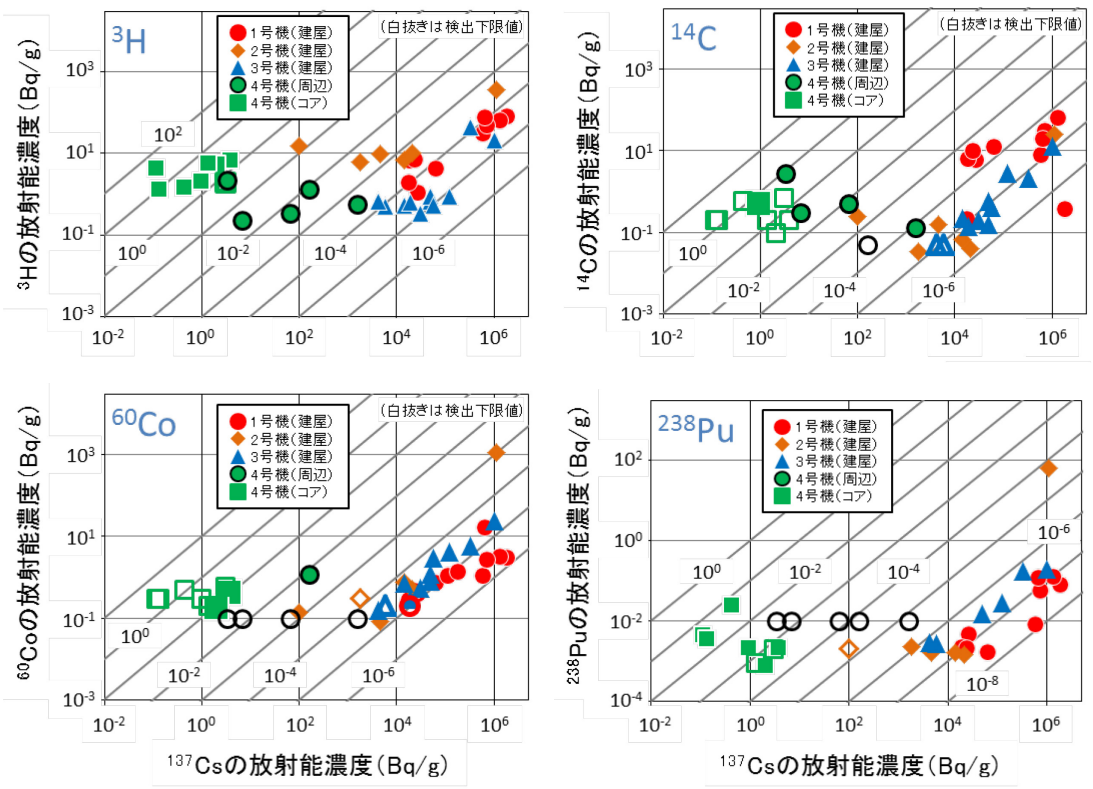


図 3.3-1　原子炉建屋内および周辺で採取した瓦礫試料から検出された核種の濃度
(^{137}Cs に対するプロット)

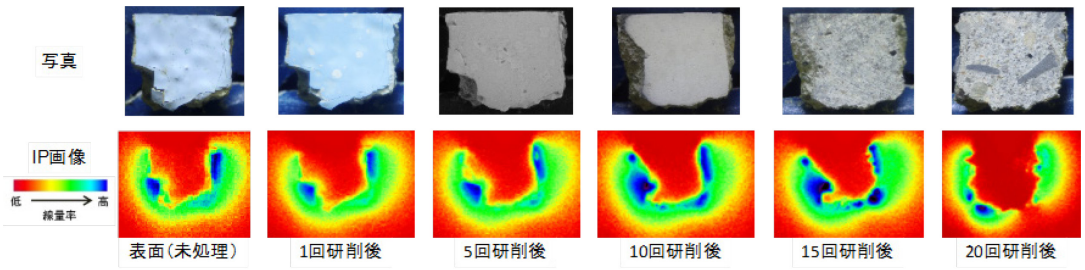
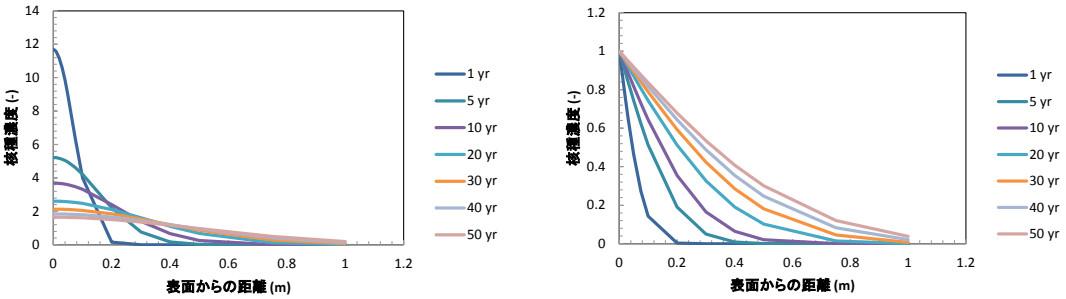
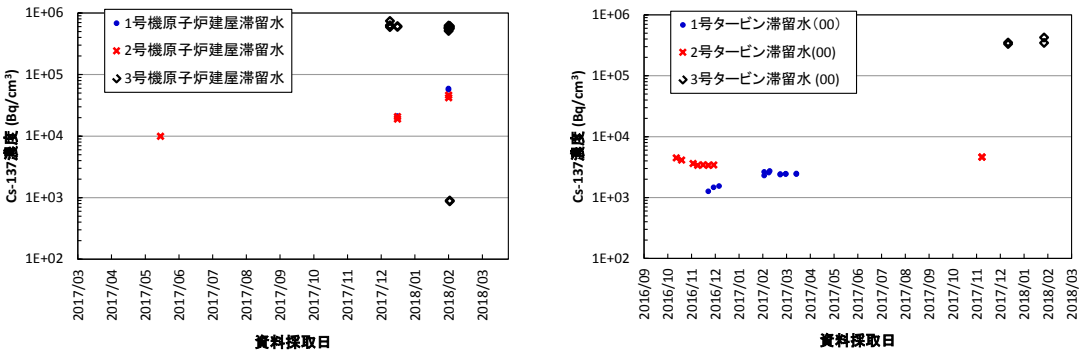


図 3.3-2　瓦礫の局所的な汚染分布



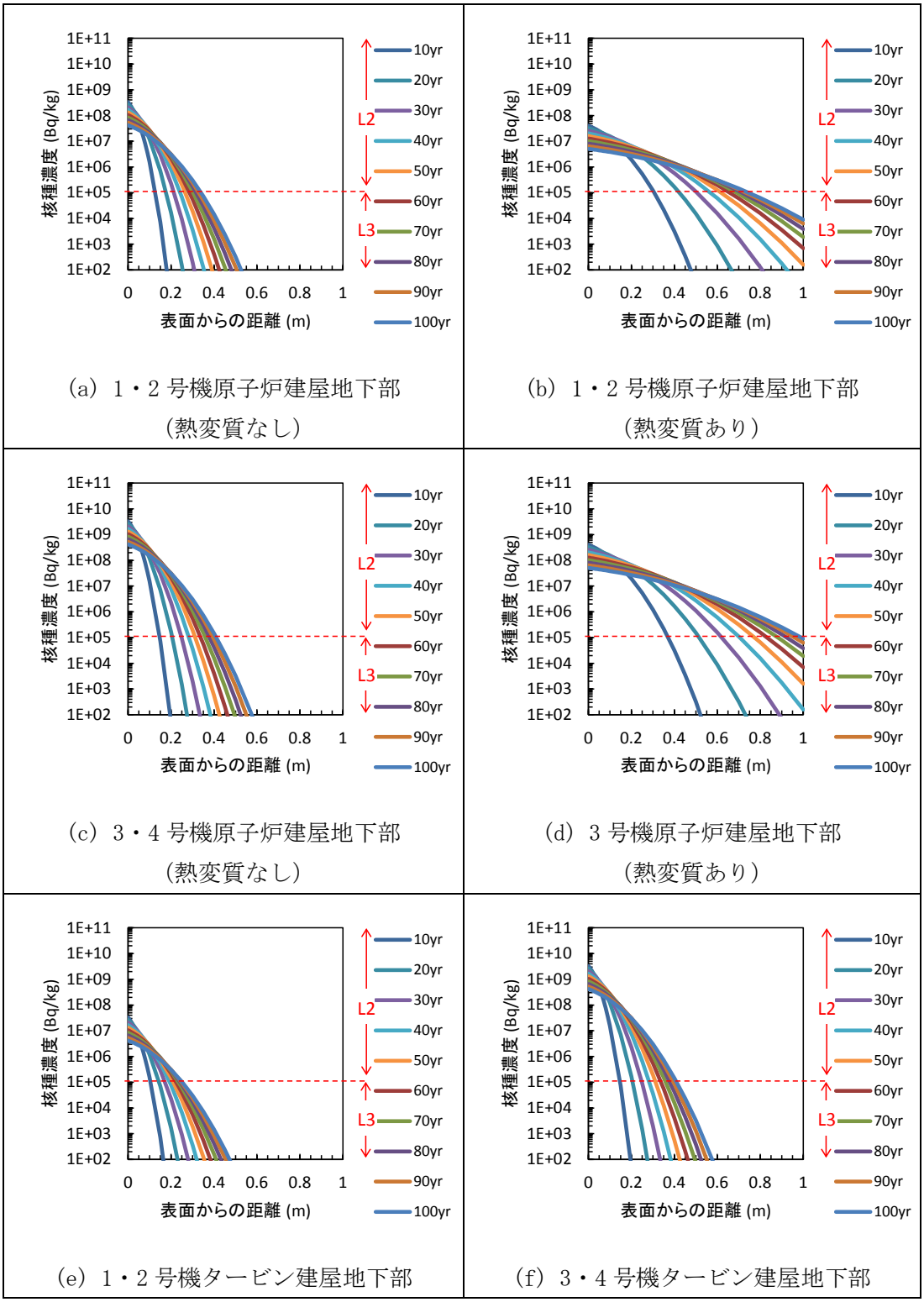
(a) 初期の汚染による影響（体系 A：表面に δ 関数状の初期濃度分布）　(b) 継続的な汚染による影響（体系 B：濃度一定境界条件）

図 3.3-3　ひび割れのない体系（A・B）における核種濃度分布



(a) 原子炉建屋滞留水中の Cs 濃度　(b) タービン建屋滞留水中の Cs 濃度

図 3.3-4　滞留水中の ^{137}Cs 濃度[14]



(a) 1・2 号機原子炉建屋地下部
(熱変質なし)

(b) 1・2 号機原子炉建屋地下部
(熱変質あり)

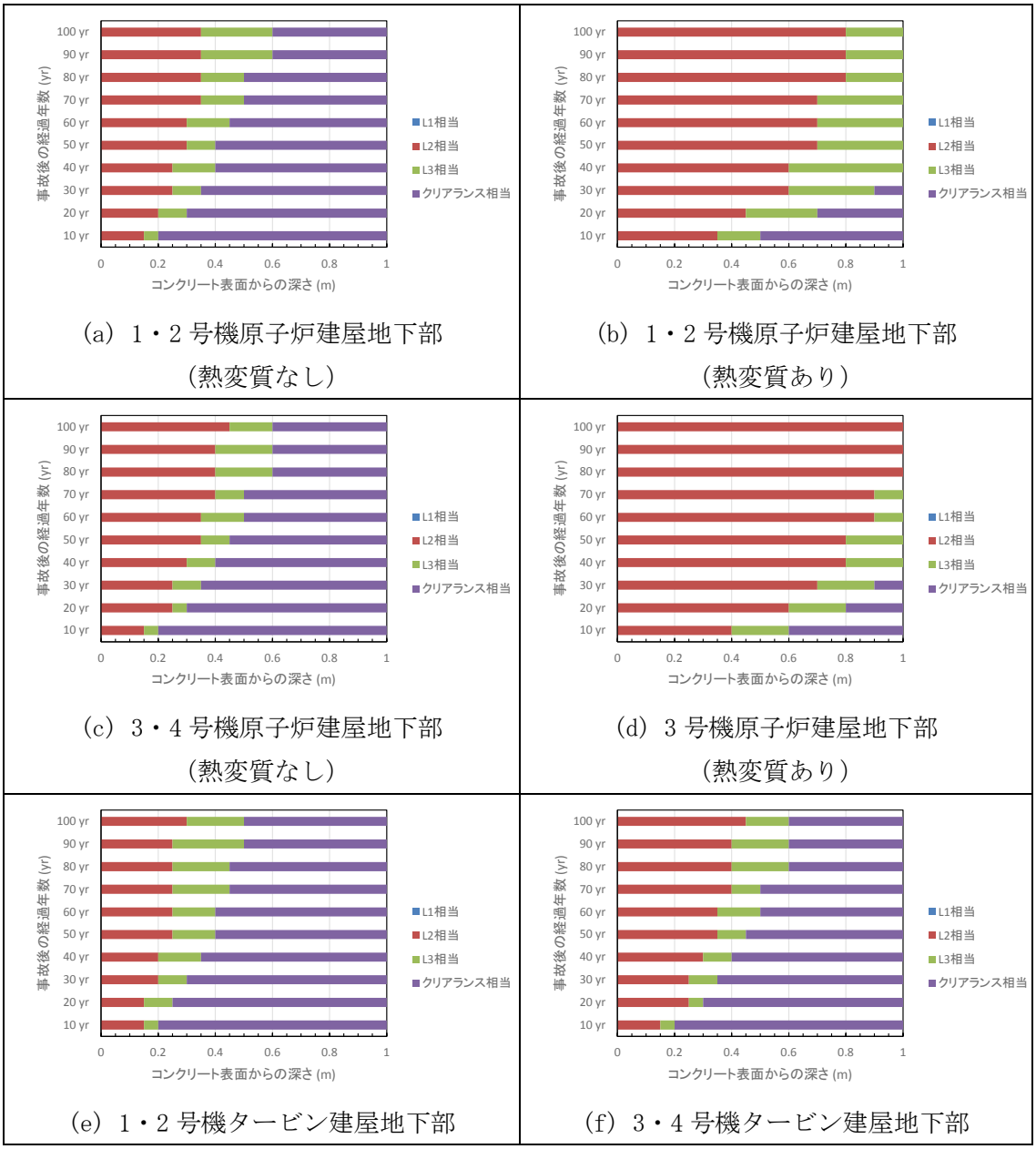
(c) 3・4 号機原子炉建屋地下部
(熱変質なし)

(d) 3 号機原子炉建屋地下部
(熱変質あり)

(e) 1・2 号機タービン建屋地下部

(f) 3・4 号機タービン建屋地下部

図 3.3-5　地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度



(a) 1・2 号機原子炉建屋地下部
(熱変質なし)

(b) 1・2 号機原子炉建屋地下部
(熱変質あり)

(c) 3・4 号機原子炉建屋地下部
(熱変質なし)

(d) 3 号機原子炉建屋地下部
(熱変質あり)

(e) 1・2 号機タービン建屋地下部

(f) 3・4 号機タービン建屋地下部

図 3.3-6　地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度によるレベル区分の変遷

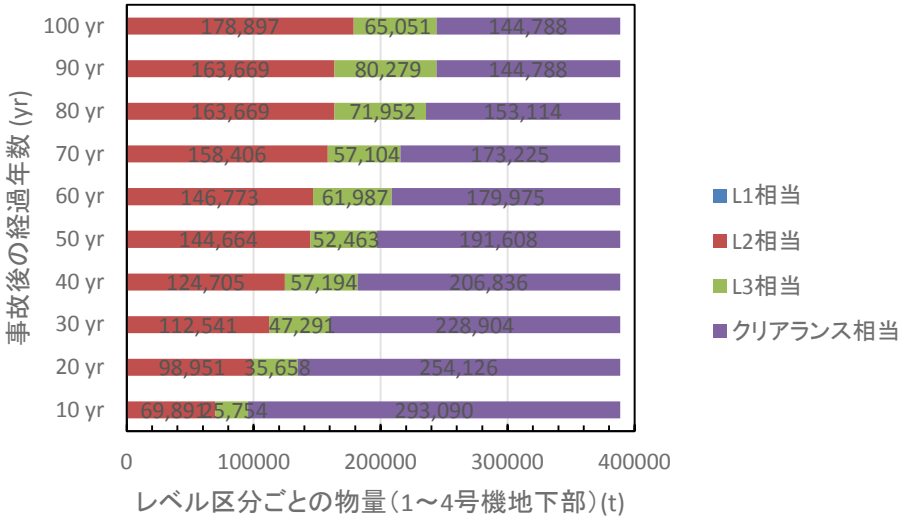


図 3.3-7　1～4 号機における地下部（水中）のコンクリートの物量とレベル区分

表 3.3-1　1F コンクリート物量推計

建屋名称	原子炉建屋（千 t）		タービン建屋（千 t）	
	総重量 1)	コンクリート量 2)	総重量 1)	コンクリート量 2)
1 号機	66	63	76	68
2 号機	100	95	133	120
3 号機	111	106	153	138
4 号機	109	104	127	114
5 号機	113	107	157	141
6 号機	192	183	187	168
1-6　合計	691	658	833	707
(1-4 小計)	(386)	(368)	(489)	(415)

1）出典：実施計画書、工事認可申請書等
2）原子炉建屋、タービン建屋のコンクリート量は、それぞれ総重量の 95%、90%と推定した。

表 3.3-2　1F 原子炉建屋、タービン建屋のコンクリート物量分布の推定

建屋名称	割合　(%)	
	原子炉建屋	タービン建屋
基礎・地下部	40	48
地上構造物	48	52
熱・生体遮蔽	12	-

表 3.3-3　セメントペースト中の見かけの拡散係数

試料	見かけの拡散係数 D_a(m²/s)	核種	w/c 比	養生条件	拡散温度 (K)
未加熱 200℃加熱 400℃加熱	4.0×10^{-12}, 4.2×10^{-12} 2.3×10^{-11}, 2.8×10^{-11} 2.9×10^{-11}, 3.2×10^{-11}	Cs^{+} a)	0.36	50℃、28 日間	298
未加熱	1.1×10^{-11}, 1.3×10^{-11} 6.2×10^{-11}, 7.7×10^{-11}	HTO[15]	0.36 0.60	50℃、91 日間	293
	3.4×10^{-11}, 3.4×10^{-12} 5.0×10^{-12}, 5.3×10^{-12}	Na^{+}[16]	0.36 0.60	50℃、91 日間	293
	7.8×10^{-13}, 5.6×10^{-13} 0.66×10^{-13}, 0.50×10^{-13}	Cl^{-}[16]	0.36 0.60	50℃、91 日間	293

a) 本研究により得られた値

表 3.3-4　各領域における汚染コンクリートの分類と物量

(a) 領域と汚染状況の分類

領域			1号機	2号機	3号機	4号機	5号機	6号機
原子炉建屋	地上部	内壁						
		熱遮蔽体・生体遮蔽体	●	●	●			
	地下部	外周領域						
		炉心近傍	●	●	●			
タービン建屋	地上部							
	地下部							

凡例

	気中・熱変質なし	●	気中・熱変質あり
	水中・熱変質なし	●	水中・熱変質あり

(b) 領域ごとのコンクリート物量

領域			概算コンクリート重量 (t)					
			1号機	2号機	3号機	4号機	5号機	6号機
原子炉建屋	地上部	内壁	30,096	45,600	50,616	49,704	51,528	87,552
		熱遮蔽体・生体遮蔽体	7,524	11,400	12,654	12,426	12,882	21,888
	地下部	外周領域	12,540	19,000	21,090	20,710	21,470	36,480
		炉心近傍	12,540	19,000	21,090	20,710	21,470	36,480
	合計		62,700	95,000	105,450	103,550	107,350	182,400
タービン建屋	地上部		30,780	53,865	61,965	51,435	63,585	75,735
	地下部		37,620	65,835	75,735	62,865	77,715	92,565
	合計		68,400	119,700	137,700	114,300	141,300	168,300

(c) 分類ごとのコンクリート物量

領域			概算コンクリート重量 (t)					
			1号機	2号機	3号機	4号機	5号機	6号機
原子炉建屋	気中		37,620	57,000	63,270	62,130	107,350	182,400
	水中	熱変質なし	12,540	19,000	21,090	41,420	0	0
		熱変質あり	12,540	19,000	21,090	0	0	0
	合計		62,700	95,000	105,450	103,550	107,350	182,400
タービン建屋	気中		30,780	53,865	61,965	51,435	141,300	168,300
	水中	熱変質なし	37,620	65,835	75,735	62,865	0	0
		熱変質あり	0	0	0	0	0	0
	合計		68,400	119,700	137,700	114,300	141,300	168,300

表 3.3-5　環境条件の組み合わせに基づくコンクリート中の拡散モデルの体系

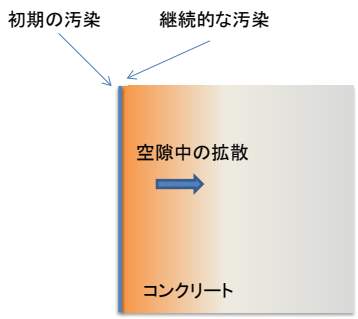
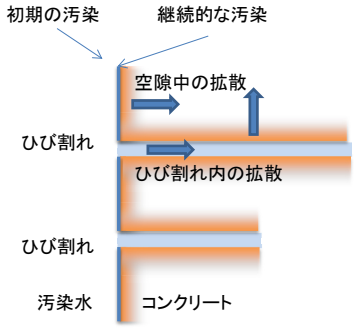
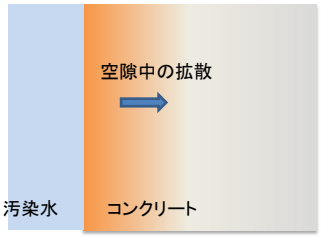
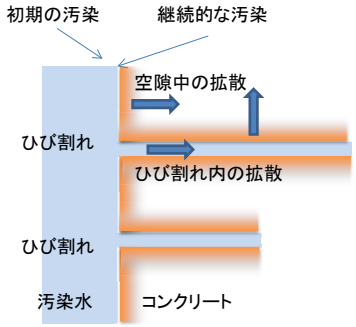
	コンクリートのひび割れなし	コンクリートのひび割れ有り
気中	体系 A 	体系 C 
水中	体系 B 	体系 D 

表 3.3-6　滞留水中の ^{137}Cs 濃度の設定

	原子炉建屋の滞留水中の ^{137}Cs 濃度	タービン建屋の滞留水中の ^{137}Cs 濃度
1 号機	10^{5} Bq/cm^{3}	10^{4} Bq/cm^{3}
2 号機	10^{5} Bq/cm^{3}	10^{4} Bq/cm^{3}
3 号機	10^{6} Bq/cm^{3}	10^{6} Bq/cm^{3}
4 号機	10^{6} Bq/cm^{3}	10^{6} Bq/cm^{3}

表 3.3-7　セメント中の拡散に関するパラメータの設定

		熱変質なし	熱変質あり
見かけの拡散係数		9E-12 cm^2/s	7.4E-11 cm^2/s
セメント中の空隙率		0.2	0.2
セメント中の分配係数		0.019 m^3/kg	0.002 m^3/kg
コンクリート配合 [8]	単位水量	182 kg/m^3	
	単位セメント量	330 kg/m^3	
	細骨材量	790 kg/m^3	
	粗骨材量	1000 kg/m^3	

表 3.3-8　建屋地上部の空間線量率および気中コンクリート解体廃棄物のレベル区分

領域		空間線量率	表面2cmを斫る場合の廃棄物		厚さ1mのブロックを切り出した場合の廃棄物	
			レベル区分	物量(t)	レベル区分	物量(t)
原子炉建屋	1号機	1.5 ～ 1000 mSv/h	L2	752	L3～L2	37,620
	2号機	1 ～ 30 mSv/h	L2	1,140	L3～L2	57,000
	3号機	7 ～ 124 mSv/h	L2	1,265	L3～L2	63,270
	4号機	0.01 ～ 0.3 mSv/h	L2	1,243	L3	62,130
	5号機	0.0003 ～ 0.045 mSv/h	L3～L2	2,147	L3	107,350
	6号機	0.0004 ～ 0.01 mSv/h	L3～L2	3,648	L3	182,400
タービン建屋	1号機	0.01 ～ 7.5 mSv/h	L2	616	L3～L2	30,780
	2号機	0.02 ～ 10 mSv/h	L2	1,077	L3～L2	53,865
	3号機	0.01 ～ 13 mSv/h	L2	1,239	L3～L2	61,965
	4号機	0.01 ～ 1.2 mSv/h	L2	1,029	L3～L2	51,435
	5号機	0.0002 ～ 0.0003 mSv/h	L3	2,826	CL	141,300
	6号機	0.0002 ～ 0.0006 mSv/h	L3	3,366	CL	168,300

表 3.3-9　廃棄物量推計結果(千 t)

領域	L2	L3	CL	合計
1-4 号機地上	15	0	404	418
1-4 号機地下	70	26	293	389
5、6 号機	11	1	587	599
合計	95	27	1284	1406

3.3.2 廃棄体の性状評価（北海道大学および福井大学）

(1)瓦礫類の濃度分布：実測値からの推計

図 3.3-1 に引用して示した瓦礫試料の ^{137}Cs 濃度の頻度分布に対数正規分布を当てはめると図 3.3-8(a)のようになる。特に濃度の高い試料が含まれていない可能性、および、低濃度の場合に正確でない可能性があることを考慮すると代表的な頻度分布ではないことがあり得るが、この分布に当てはまると仮定し、^{137}Cs 濃度のみを考慮すると約 5%が L3 相当、残りはほぼ L2 相当であると推計される。

また、周辺で採取された試料は 1～3 号機で採取された試料に比べて濃度が低い傾向にあるため、二つのグループに分けて分布をプロットすると図 3.3-8(b)のようになる。この場合、1～3 号機の濃度分布ではほぼ全てが L2、周辺の試料は約 20%が L3、80%が L2 となり、またその割合の経時変化は図 3.3-9 に示すとおりである。図 3.3-10 に濃度分布と政令等による埋設濃度上限値を示した。

仮に以下のように仮定すると、区分別の放射性廃棄物量は表 3.3-10 のようになる。

- 1～3 号機の原子炉建屋内部(1～3 号機原子炉建屋コンクリート量の 30%程度)は図 3.3-8(b)の 1～3 号機のような濃度分布
- 1～3 号機の原子炉建屋外部は図 3.3-8(b)の周辺のような分布(1～3 号機原子炉建屋コンクリート量の 30%程度)
- 1～3 号機の原子炉建屋コンクリート量の残り 40%はクリアランス
- 4 号機原子炉建屋は、20%が図 3.3-8(b)の周辺のような分布。残りの 80%はクリアランス
- 1～4 号機のタービン建屋は 20%が図 3.3-8(b)の周辺のような分布。残りの 80%はクリアランス
- 5、6 号機は 3%が L3、残りはクリアランス

(2)放射性核種の浸透・浸出モデルと濃度分布予測

廃棄物中の放射性核種の濃度分布に基づき処分レベルの区分や廃棄物の管理シナリオを決定するため、廃棄物の区分や廃棄体性状の評価においては、時間の経過とともに変化する廃棄物中の放射性核種の濃度分布を把握することが重要である。コンクリート廃棄物中の放射性核種の濃度分布に係る検討のため、ここでは、コンクリート中における放射性核種の浸透・浸出モデルを検討・作成した。本検討における浸透・浸出モデルは前述の拡散モデルに基づくモデルである。滞留水中に浸かったコンクリートには、拡散により核種が表面から侵入していく。燃料デブリの取り出しが完了し、注水冷却も停止した後には、滞留水中の放射性核種濃度が著しく減少することが予想される。また、地下部コンクリート構造物が解体された後、地上で保管される場合には、コンクリート表面から核種が新たに侵入することはない。このような状況を想定し、コンクリート表面での境界条件を時間枠ごとに変更することとし、モデルを作成した。

仮に事故から 20 年後に燃料デブリの取り出しが完了し、滞留水中の放射性核種濃度が著しく減少した場合を想定し、地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度予測を行った。初期から 20 年までは滞留水中の核種濃度は、3.3.1 節の表 3.3-6 で述べた通りとし、20 年以降は濃度 0 Bq/cm^3 になると仮定し、その影響を確認した。濃度分布の

計算結果を図 3.3-11 に示す。

20 年後以降は、コンクリート内に分布した ^{137}Cs が滞留水中へ浸出し、表面付近の ^{137}Cs 濃度が減少している。図 3.3-11(e)1・2 号機タービン建屋地下部では、コンクリート中の濃度ピークが 100 年後は L3 濃度上限値付近まで低下しており、滞留水中濃度や拡散に関するパラメータの不確実性を考慮すると、濃度ピークが L3 相当にまで低下する可能性もあり得る。しかし、浸出を想定しない場合（図 3.3-5）と比較すると、濃度の著しい低下（L3 濃度上限値以下になる等）は総じて表面のごく近傍にとどまっている。L2 相当の濃度となる領域の大きさに著しい影響は見られなかった。

廃炉作業の進捗によって滞留水が抜き取られるか、または、解体されたコンクリートブロックが地上で保管される場合には、コンクリートから核種が浸出することはないと考えられるため、表面付近の濃度は図 3.3-8 で見られるよりも高くなるはずである。

図 3.3-8 に示した濃度分布のコンクリートについて、深さ方向にレベル区分せず、厚さ 1m のコンクリートブロックを廃棄物とした場合のレベル区分について検討した。厚さ 1m の ^{137}Cs の平均濃度の時間変遷を図 3.3-12 に示す（平均濃度の最も小さい 2 つの領域についてのみ）。1・2 号機タービン建屋地下部は、約 70 年後以降は L3 相当の平均濃度に減少している。1・2 号機原子炉建屋地下部（熱変質あり）では、100 年後でも L2 相当であった。その他の領域はこれらよりも平均濃度が高く、100 年間 L2 相当のままであった。

(3) 廃棄体数および廃棄体性状の算出

一般に、放射性廃棄物処分に関する検討は、処理方法やインベントリといった廃棄体条件に関する事項を前提条件として設定したうえで進められる。しかし、福島第一事故廃棄物について、廃棄物性状に関する情報は現時点では限定的であり、それらの情報は分析や廃止措置作業の進展に応じて得られていくことになる。本検討では、まず、廃棄物片の質量・体積および放射性核種濃度が既知であることを仮定し、廃棄体容器に収納した場合の廃棄体数や廃棄体性状の算出方法について検討した。

廃棄体容器については既存の処分概念（L1、L2）で利用・想定されている角形容器（L1）および 200ℓ ドラム缶を用いるものと仮定する。L3 廃棄物についてはフレキシブルコンテナに収納するものとし、廃棄物の物量を体積および重量で計算するものとする。

L1 および L2 相当の廃棄物については、廃棄物片と容器の大きさや形状によって廃棄体での廃棄物収納割合が左右される。また、廃棄物片の隙間を埋める充填材により、廃棄体全体としての重量、空隙率等の性状が影響を受ける。

以上を踏まえて、廃棄体化における容器収納においては、下記の条件を満たす範囲で最小となる廃棄体数を算出することとした。

- 体積：　廃棄物および充填材の体積の合計が容器の容積限度を超えないこととする。
- 放射性核種濃度：　廃棄体 1 個に収納された廃棄物に含まれる放射性核種の平均濃度が、それぞれのレベル区分の上限値を超えないこととする。
- 廃棄物収納割合：　コンクリートを粉砕・分別した後の粉末状の廃棄物に係る収納割合は、原則として上記を満たす範囲で最大となる値と設定する。コンク

リート塊を収納する場合には、別途設定する収納割合の限度を超えないように設定する。

このように、容器の容積および廃棄物および充填材の比重、収納割合、廃棄物中の放射性核種濃度から、1 体の廃棄体に収納される廃棄物収納量や、放射性核種インベントリ、平均の空隙率等、廃棄体の性状を決定できる。

発生する廃棄体数は、対象となる廃棄物の物量と廃棄体 1 体あたりの収納量の比から算出することが可能である。

(4) コンクリートの解体で発生する廃棄体

気中コンクリートに付着した放射性核種はコンクリート表面のごく近傍に留まると考えられることから、表面 2cm を斫って除染する場合と、斫らずにコンクリート全体を解体し一区分の廃棄物として扱う場合を検討した。

L2 相当のコンクリート廃棄物は破砕して容器に収納する。コンクリートを収納するために必用な容器数 n は以下のように計算できる。

$$n = \frac{w}{Vf\rho}$$

ここで、w は容器に収納するコンクリートの総重量(t)、V は容器の内容積（200L ドラム缶を想定して 200L とする）、f は容器への廃棄物収納割合（充填率）、ρ はコンクリートの密度（2300 kg/m^3 と設定）を表す。

容器への廃棄物収納割合（充填率）はコンクリート塊の大きさに依存する。ここでは比較的大きなコンクリート塊を収納する場合（充填率 25%を仮定）と、コンクリートを粉砕してより多くを収納する場合（充填率 75%を仮定）の 2 つのケースについて検討した。表面 2cm を斫る場合については充填率 75%を仮定した。表 3.3-11 に廃棄体数（ドラム缶数）の計算結果を示す。なお、レベル区分が L3～L2 にまたがる領域については、すべてが L2 となる場合の廃棄体数を記載している。

滞留水中のコンクリートについては、濃度分布によって表面からの深さ方向でレベル区分が可能であることから、以下の廃棄物管理シナリオについて検討した。

① 深さ方向で区分しない。（この場合、特殊なケースを除いて、全ての水中コンクリートが L2 相当となる。）

② 放射性廃棄物（L2 および L3 相当領域の混合）とクリアランス相当領域の 2 つに分別する。（放射性廃棄物は L2 レベルとなる。）

③ L2 相当、L3 相当、クリアランス相当の 3 つに分別する。

各々において発生する L2 廃棄体数（ドラム缶数）を計算した。容器への廃棄物収納割合（充填率）を 75%と設定した。L2 廃棄体数の計算結果を図 3.3-13 に示す。

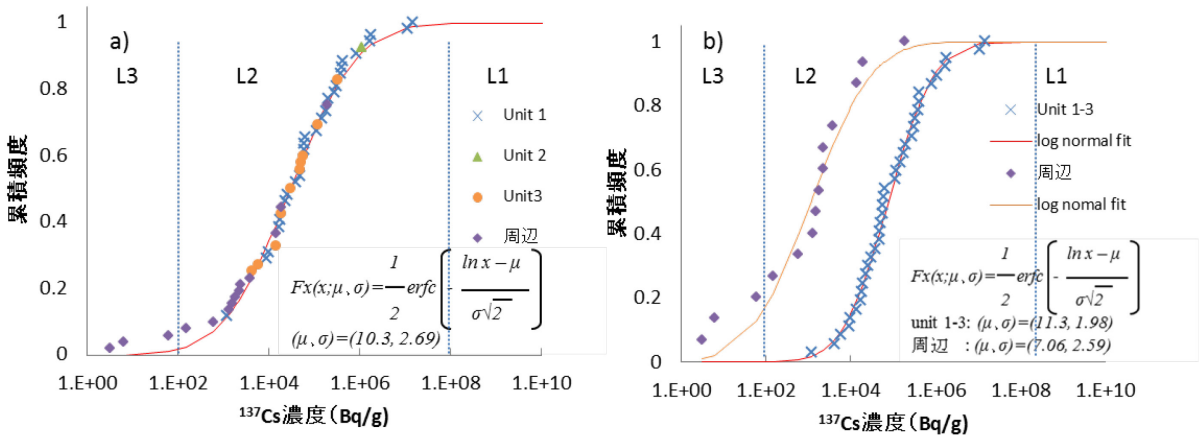


図 3.3-8　瓦礫試料の ^{137}Cs 濃度の累積分布と政令濃度上限値

(a)全データを一つの分布としてプロットしたもの。(b)1～3 号機と周辺のデータを分けて分布をプロットしたもの。

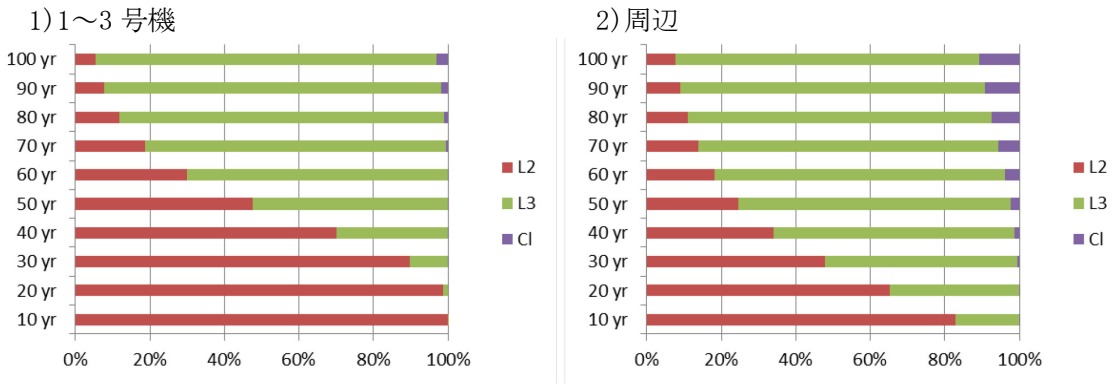


図 3.3-9　対数正規分布を仮定した場合の廃棄物量割合の経時変化
(図 3.3-8　b)の場合。1)1～3 号機、2)周辺

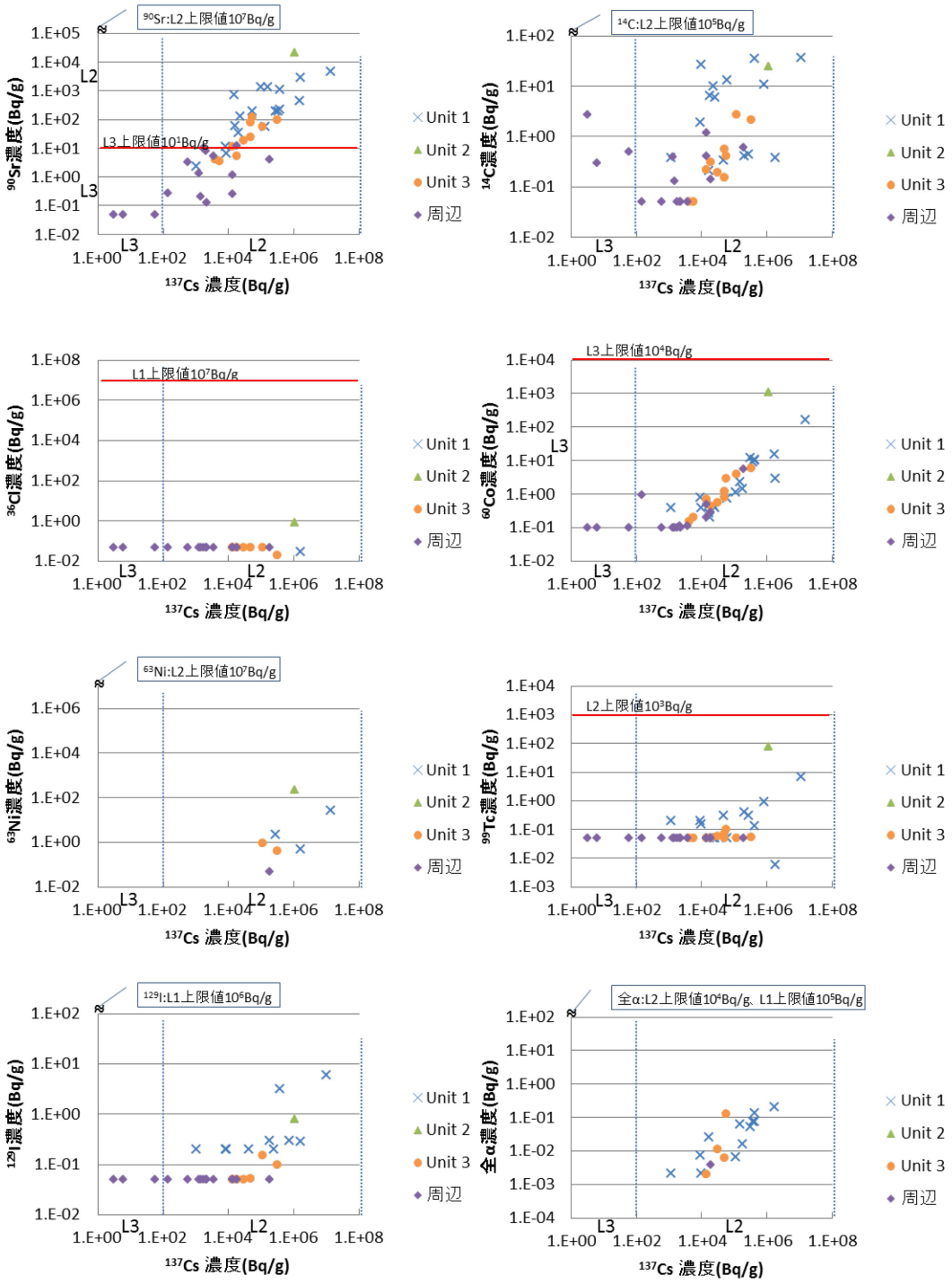
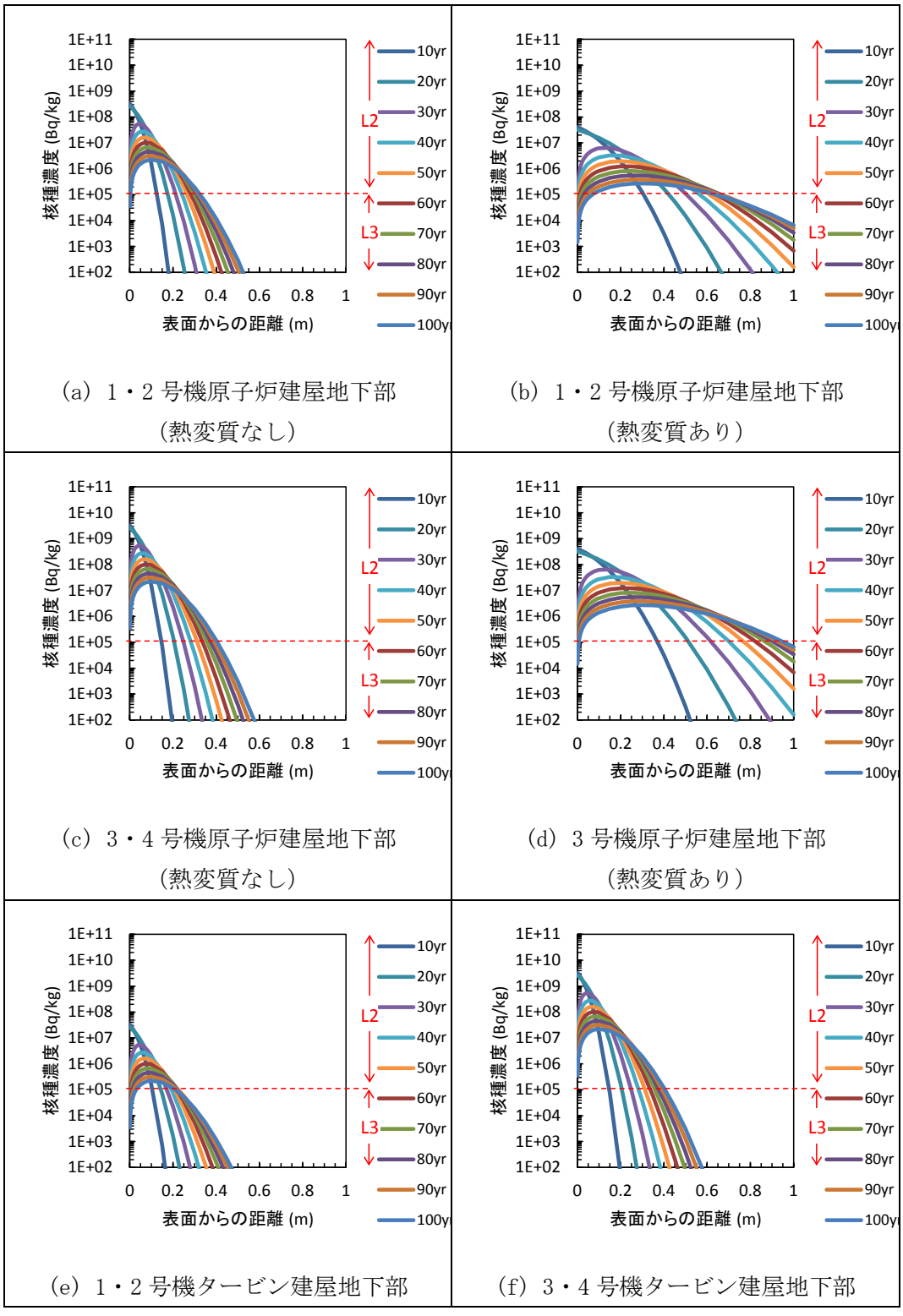


図 3.3-10　瓦礫試料の放射性核種の濃度分布と政令等による埋設濃度上限値



(a) 1・2 号機原子炉建屋地下部
(熱変質なし)

(b) 1・2 号機原子炉建屋地下部
(熱変質あり)

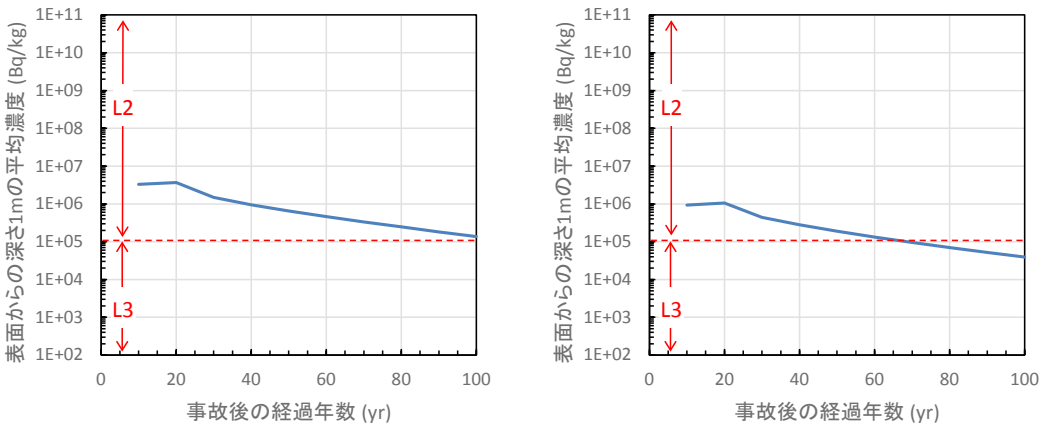
(c) 3・4 号機原子炉建屋地下部
(熱変質なし)

(d) 3 号機原子炉建屋地下部
(熱変質あり)

(e) 1・2 号機タービン建屋地下部

(f) 3・4 号機タービン建屋地下部

図 3.3-11 地下部（水中）のコンクリート中の ^{137}Cs 濃度分布
(20 年後以降は滞留水中の濃度が 0 Bq/cm^3 になると設定)



(a) 1・2 号機原子炉建屋地下部　　(b) 1・2 号機タービン建屋地下部

(熱変質あり)

図 3.3-12　厚さ 1m のコンクリート中の ^{137}Cs の平均濃度

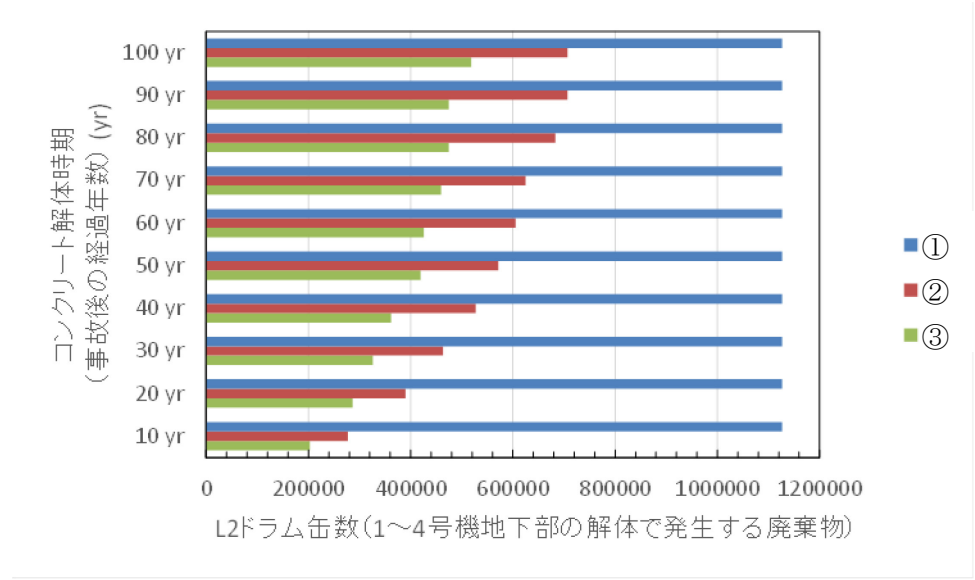


図 3.3-13　1～4 号機地下部のコンクリート解体によって発生する L2 廃棄体数

①深さ方向で区分せず全て L2 として扱う場合；②L2 および L3 相当濃度領域を混合して L2 として扱う場合；③L2 相当濃度領域のみを L2 として扱う場合。

表 3.3-10　瓦礫の濃度分布から仮定して推計した区分別廃棄物量(千 t)

建屋	号機	L2	L3	C1	合計
原子炉建屋	1	34	4	25	63
	2	51	7	38	95
	3	57	6	42	106
	4	17	4	83	104
	5	－	3	104	107
	6	－	5	178	183
タービン建屋	1	11	3	54	68
	2	19	5	96	120
	3	22	6	110	138
	4	18	5	91	114
	5	－	4	137	141
	6	－	5	163	168
合　計		229	57	1,121	1,407

表 3.3-11　気中コンクリートの解体によって生じる L2 廃棄体数

領域		表面2cmを斫る場合の廃棄物			厚さ1mのブロックを切り出した場合の廃棄物			
		レベル区分	物量(t)	L2廃棄体ドラム缶数	レベル区分	物量(t)	L2廃棄体ドラム缶数	
				充填率75%			充填率25%	充填率75%
原子炉建屋	1号機	L2	752	2,181	L3～L2	37,620	327,130	109,043
	2号機	L2	1,140	3,304	L3～L2	57,000	495,652	165,217
	3号機	L2	1,265	3,668	L3～L2	63,270	550,174	183,391
	4号機	L2	1,243	3,602	L3	62,130		
	5号機	L3～L2	2,147	6,223	L3	107,350		
	6号機	L3～L2	3,648	10,574	L3	182,400		
タービン建屋	1号機	L2	616	1,784	L3～L2	30,780	267,652	89,217
	2号機	L2	1,077	3,123	L3～L2	53,865	468,391	156,130
	3号機	L2	1,239	3,592	L3～L2	61,965	538,826	179,609
	4号機	L2	1,029	2,982	L3～L2	51,435	447,261	149,087
	5号機	L3	2,826		CL	141,300		
	6号機	L3	3,366		CL	168,300		
合計				41,033			3,095,087	1,031,696

3.3.3　廃棄物管理シナリオ構築・評価（北海道大学、原子力機構、福井大学）

(1) コンクリートを含む廃棄物の発生に関する情報(原子力機構)

東京電力の放射性廃棄物に対する保管管理計画は毎年改定されており、今年度は 2018 年 6 月に発行された[17]。コンクリートを含む瓦礫類の廃棄物は、従来と同様に図 3.3-14 に示すように線量率に応じて分類され、所定の場所に保管されている。2019 年 2 月 28 日現在での瓦礫類の保管量は 264 千 m^3 である(表 3.3-12)[18]。2030 年 3 月時点での瓦礫等の発生量が推測されており、図 3.3-15 に示すように総量として約 77 万 m^3 が見込まれている。最も線量率が高い分類である「30 mSv/h 超」の廃棄物は約 3.6 万 m^3 を占める。

熱変性を受けたコンクリート廃棄物は、燃料デブリの取り出しとともに発生することが考えられる。原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）が「廃炉のための技術戦略プラン」を作成しており、その中で、デブリ取り出しに係る工程表が示されている[19]。小規模な取り出しは 2021 年頃に見込まれており、高線量率である廃棄物の発生は、数

年先になるものと思われる。

燃料デブリ取り出しに伴う廃棄物は、図 3.3-16 に示すように分類されており、数 100 t の物量が想定されている[20]。ここには、コンクリートを含む廃棄物は示されていないようであるが、取り出しのために鉄筋コンクリート製の遮蔽壁を開口する必要があり、これにより発生が見込まれる。厚さ約 2 m の壁に穴を開ける技術が図 3.3-17 に示すように検討されており、熱変性を受けたコンクリートが排出される可能性がある[21]。

(2) 放射線被ばくリスク計算モデル(福井大学)

放射線被ばくリスクの計算においては、ここでは汚染コンクリートの解体・撤去・輸送・貯蔵等の過程における外部被ばく線量のモデルを検討した。外部被ばく線量モデルは、どの過程においても以下の式で表される。

$$D_{ext} = C \cdot S \cdot t \cdot F_{ext}$$

ここで、

D_{ext}	: 外部被ばく線量 (Sv/yr)
C	: 廃棄物中の ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg)
S	: 外部被ばくに対する遮へい係数
t	: 年間作業時間 (h/yr)
F_{ext}	: ^{137}Cs の外部被ばくに関する線量換算係数 ((Sv/h)/(Bq/kg))

である。

廃棄物中の ^{137}Cs 濃度は、当該コンクリート中の Cs の拡散・浸透挙動解析および管理シナリオでの想定によって計算される。また、外部被ばくの線量換算係数は外部被ばくのジオメトリおよび廃棄物（コンクリート）中の遮へい効果等を考慮して算出されるものである。

被ばくリスクの検討においては、作業者の被ばく線量を合理的な範囲で低くするとともに、廃棄物のレベル区分も含めた管理の合理性を追求する必要がある。上記のパラメータおよび核種濃度計算条件に関して、変動範囲を設定し、モンテカルロ計算を行うことによって、被ばく線量の応答を確認する計算体系を構築した。

(3) 不確定な要因に関する検討(福井大学)

現状においては、コンクリート中の放射能濃度、またその処理による被ばく線量に関しては、不確定な要因が多く残されている。今後の廃棄物管理シナリオの検討においても不確定性を考慮する必要があるが、その予備的検討として放射能濃度分布の不確実性に着目し、それによる被ばく線量の分布を計算した。

対象核種は ^{137}Cs とし、そのコンクリート中の見かけの拡散係数と一定の表面濃度に変動幅を設定してモンテカルロ計算を行うことにより、20 年後のコンクリート中の平均濃度を算出した。また得られた平均濃度から換算係数（5.5Bq/g を表面線量率 1 μ Sv/h に対応）により被ばく線量率の分布を算出した。Cs のコンクリート中の見かけの拡散係数の変動範囲を 1.0×10^{-12} m^2/s ～ 1.0×10^{-10} m^2/s とした。コンクリートは厚さ 1m の板状の壁とし、その片側表面が一定濃度の汚染水に曝されているものと仮定した。ここで汚染水中の ^{137}Cs 濃度には 3 桁の変動幅を設定した。これらの変動パラメータに関しては、変動範囲内での対数一様分布を適用した。

見かけの拡散係数に対する表面線量率の応答特性を図 3.3-18 に示す。表面線量率は概ね 0.01mSv/h～100mSv/h の範囲にわたっている。ここではパラメータの分布を対数一様分布と設定することにより、変動パラメータへの感度特性を見たが、想定されるコンクリートの状況に応じてパラメータの分布を設定することにより、個別の被ばく線量率の分布の検討が可能となる。

(4)エンドステートに基づくシナリオの設定

事故の発生からエンドステート達成までの流れを図 3.3-19 に示す。コンクリート廃棄物が発生するのは、廃炉準備段階(事故対応、安定化処理、事故後クリーンアップ)および廃炉作業の段階である。コンクリート廃棄物の発生量は、廃炉および環境修復のエンドステートをどのように設定するのか、機器・構造物をいつ、どこまで撤去するのかに依存して大きく変わってくると考えられる。

環境修復の目的は、汚染による影響を軽減し、環境を保護し、サイトをを新たに利用できる状態にすることと捉えることができる[23]。この場合、環境修復の手段としては、汚染の全撤去とそれに伴う放射性廃棄物の処分施設への処分のみでなく、汚染の原位置での不動化、汚染の拡大防止策、アクセスの制限等様々な措置があり得る[23]。ここでは、英米等で検討されている ISD(In-situ Decommissioning：原位置での廃止措置)[24]を参考にし、地上の構造物は全撤去するが、地下構造物については汚染拡大防止策を施した上で管理を継続する場合を想定し、コンクリート廃棄物発生量を比較する。

①シナリオの考え方

1～6 号機の原子炉建屋、タービン建屋の解体撤去の範囲として、1)全撤去と 2)地上部のみ撤去(地下部および地下の汚染については管理・監視の継続)の 2 ケースを考える。また、廃炉の方式として、a)安全貯蔵期間をとらない場合(即時解体)と b)とる場合の 2 通りを検討する。検討するシナリオは 4 通りである。いずれのケースも廃炉・環境修復の終了後、地上構造物はなくなり、サイトは更地の状態となる。1)全撤去の場合には発生した廃棄物を搬出した段階で敷地解放が達成される。2)地上部のみ撤去の場合には、廃棄物の搬出に加えて、汚染の減衰等により原子力施設としての管理が不要となることが敷地開放の条件となる。それぞれのシナリオの流れを図 3.3-20 に示す。

1) シナリオ 1: 構造物・汚染全撤去、即時解体

廃炉作業により、機器・構造物の全量を撤去し、地下構造物を撤去する際、土壌、地下水を含む環境汚染を合わせて除去する方式である。放射性廃棄物の搬出により制限なしの敷地開放が可能であり、また、安全貯蔵期間を置かないため、敷地開放が早く達成できる可能性がある。

このシナリオでは、Phase 1 で 1-4 号機の地上部の機器・構造物と 5,6 号機の全機器構造物を、Phase 2 で 1-4 号機の地下部の機器・構造物を撤去すると仮定している。

2) シナリオ 2: 地上の構造物・汚染撤去、即時解体

廃炉作業により、地上部の機器・構造物を撤去し、残存する地下構造物および地下の汚染は、汚染拡大防止策、原位置での修復等の方法で管理・監視する方式であ

る。空間線量等の状況に応じて、区域を設けたり時間的な制限を設けたりして制限付きの土地利用ができる可能性がある。敷地開放の条件として、廃棄物の搬出に加えて、放射性核種の減衰により管理が不要となることが挙げられるため、残存構造物、残存汚染の状況によっては、制限なしの敷地開放が可能となるまで、長時間かかることがあり得る。

このシナリオでは、Phase 1 で 1-6 号機の地上部の機器・構造物を、Phase 2 で 1-4 号機の地下部の汚染拡大防止・原位置修復措置等をするとし、Phase 2 では地下構造物の 10%が廃棄物として発生すると仮定している。

3) シナリオ 3: 構造物・汚染全撤去、安全貯蔵

燃料デブリの取出し後、安全貯蔵期間を設けた上で、廃炉作業を行い、機器・構造物の全量を撤去する。安全貯蔵期間を設けることで、放射性廃棄物処分施設の確保、廃炉・環境修復に必要な情報の取得・技術の開発等のための時間が確保される。また、放射性核種の減衰が見込める場合には、解体作業が容易になる。一方で、安全貯蔵期間中の維持管理に費用がかかる。また、廃炉作業が開始するまで当面の間、放射性廃棄物の発生は低減される。安全貯蔵期間によっては、敷地の無制限利用が可能となるまでに長時間かかる場合がある。

このシナリオでは、Phase 1 で 1-4 号機の安全貯蔵の準備および 5,6 号機の全機器・構造物の撤去を行うが、安全貯蔵の準備の際には、地上の構造物の 10%が廃棄物として発生すると仮定している。Phase 2 は安全貯蔵期間であり、Phase 3 で残存している 1-4 号機の機器・構造物を解体撤去する。

4) シナリオ 4: 地上の構造物・汚染撤去、安全貯蔵

燃料デブリの取出し後、安全貯蔵期間を設けた上で、廃炉作業を行い、地上部の機器・構造物を撤去する。残存する地下構造物および地下の汚染は、汚染拡大防止策、原位置での修復等の方法で管理・監視する。安全貯蔵期間を設けることで、放射性廃棄物処分施設の確保、廃炉・環境修復に必要な情報の取得・技術の開発等のための時間が確保される。また、廃炉作業が開始するまで当面の間、放射性廃棄物の発生は低減される。敷地開放には、放射性核種の減衰により管理が不要となることが挙げられるため、残存構造物、残存汚染の状況によっては、制限なしの敷地開放が可能となるまで、長時間かかることがあり得る。

このシナリオでは、Phase 1 で 1-4 号機の安全貯蔵の準備および 5,6 号機の地上部機器・構造物の撤去を行う。シナリオ 3 と同様に安全貯蔵の準備の際には、地上の構造物の 10%が廃棄物として発生すると仮定している。Phase 2 は安全貯蔵期間であり、Phase 3 で 1-4 号機の地上部の機器・構造物を解体撤去する。さらに、Phase 3 では、地下部の汚染拡大防止・原位置修復措置等を行うが、この際シナリオ 2 と同様、地下構造物の 10%が廃棄物として発生すると仮定している。

②廃棄物発生量

それぞれのシナリオでの廃棄物の発生量を図 3.3-21 に示す。図 3.3-21 では減衰を考慮に入れておらず、将来、発生する廃棄物についても現時点での廃棄物区分での物量を示してある。原子力発電所は、地下部分のコンクリートの占める割合が大きいた

め、地上部のみを解体する場合、廃棄物量を低減することができる。本検討では、半分弱が地下構造物と仮定したが、実際の低減量についてはデータに基づいた検討が必要である。また、地上部のみの解体で安全貯蔵を実施する場合(シナリオ 4)では、当面の廃棄物量(Phase 1)、安全貯蔵後の廃棄物量(Phase 3)ともに低減することが可能である。

廃棄物の区分ごとの発生量(図 3.3-21 b))では、地下構造物を残存させるシナリオ(シナリオ 2、シナリオ 4)で L2 廃棄物を大幅に低減できることがわかる。これは、本検討での濃度分布の前提条件として、気中の構造物は事故の際に付着した ^{137}Cs のみが汚染源でありコンクリート中の ^{137}Cs 総量は時間とともに増加しないのに対し、地下構造物は継続的に ^{137}Cs 水溶液に接していることから ^{137}Cs 濃度が増加する傾向にあると仮定したためである。実際に廃炉の方式、エンドステートを検討する際には、地下構造物コンクリート中の ^{137}Cs 濃度の経時変化や物質収支を把握する必要がある。本検討での仮定では、地下構造物を残存させる方策は、発生する廃棄物を管理する観点からは廃棄物量が少なく、^{137}Cs 濃度が低いため、望ましいといえるが、一方で汚染の進んだコンクリートを地中に残すことになるため、残存する ^{137}Cs の移行挙動の把握や固定化技術、汚染拡大防止策等の検討が必要となる。

また、本検討の前提条件からは、発生するコンクリート廃棄物のほとんどがクリアランス対象物であると推計された。事故炉でない廃止措置から発生するクリアランス対象物についても再利用には課題が多く、1F で発生するクリアランス対象物の再利用・再生利用にはさらに大きな課題があることが予測されるが、本検討結果から、クリアランスの仕組みを整備することが廃炉を円滑に推進させるために重要であることがわかる。

図 3.3-22 に減衰を想定した廃棄物量を示す。シナリオ 1、2 については、Phase 1 終了までに 20 年、Phase 2 終了までにさらに 10 年かかると想定した。また、シナリオ 3、4 については Phase 1 終了までに 20 年、その後安全貯蔵を 50 年、Phase 3 に 10 年と仮定した。クリアランス対象量を含む廃棄物の総量には減衰による変化はないが、図 3.3-22 b)に示す廃棄物区分ごとの物量では、時間が経過すると L2、L3 の放射性廃棄物が増加していることがわかる。これは、本検討の前提条件からは、地下構造物が汚染水と接している間は ^{137}Cs がコンクリート中に浸透し、コンクリート中の濃度が増加すると推計されるためである。冷却水の循環が停止する際に起こる汚染状況の変化等、廃炉の基本的な方針を検討するために、地下環境における ^{137}Cs の挙動を把握することが重要である。

(5)廃棄物管理シナリオ評価ツール

上記の検討を通して構築した廃棄物管理シナリオ評価ツールの概念図を図 3.3-23 に示す。

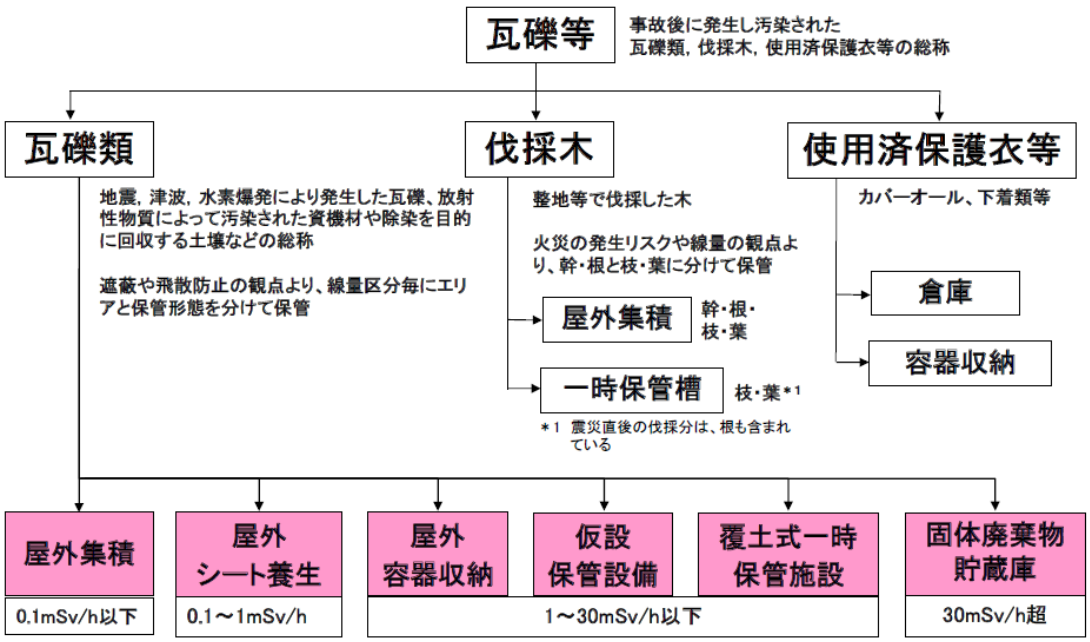


図 3.3-14　福島第一原子力発電所における瓦礫等の分類

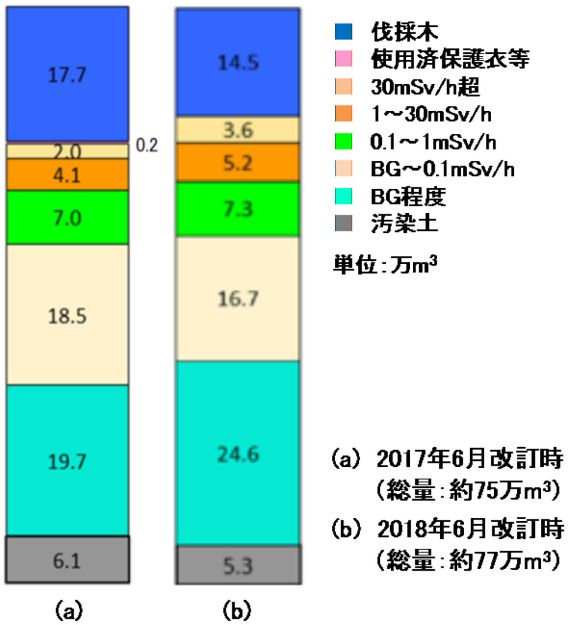
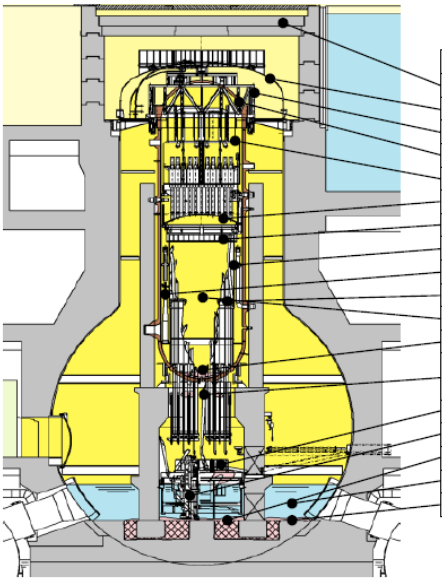


図 3.3-15　瓦礫等発生量の予測値



排出物の想定・分類例

No.	排出物	分類
1	シールドプラグ	廃棄物
2	PCVヘッド	廃棄物
3	RPV保温材	廃棄物
4	RPVヘッド	廃棄物
5	蒸気乾燥器	廃棄物
6	シュラウドヘッド	廃棄物
7	上部格子板	燃料デブリ
8	シュラウド	燃料デブリ
9	ジェットポンプ	燃料デブリ
－	炉心支持板	燃料デブリ
10	炉心部燃料デブリ	燃料デブリ
11	RPV底部燃料デブリ	燃料デブリ
12	RPV下部/CRDハウジングに付着した燃料デブリ	燃料デブリ
13	ペデスタル内部構造物	燃料デブリ
14	CRD交換機	燃料デブリ
15	ペデスタル内部燃料デブリ	燃料デブリ
16	ペデスタル外部構造物	廃棄物
17	ペデスタル外部燃料デブリ	燃料デブリ

図 3.3-16　燃料デブリ取り出しに係る排出物の想定・分類の例

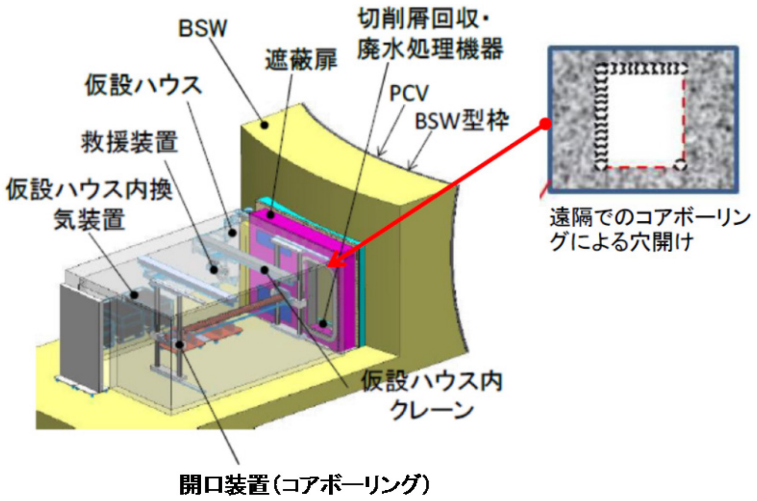


図 3.3-17　遮へい壁穴開け技術の実規模要素試験のイメージ

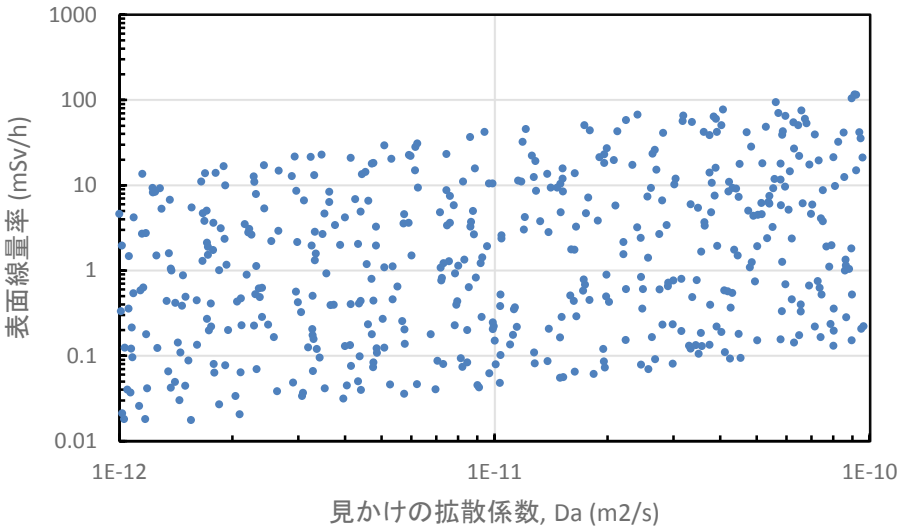


図 3.3-18　見かけの拡散係数に対する表面線量率の応答特性

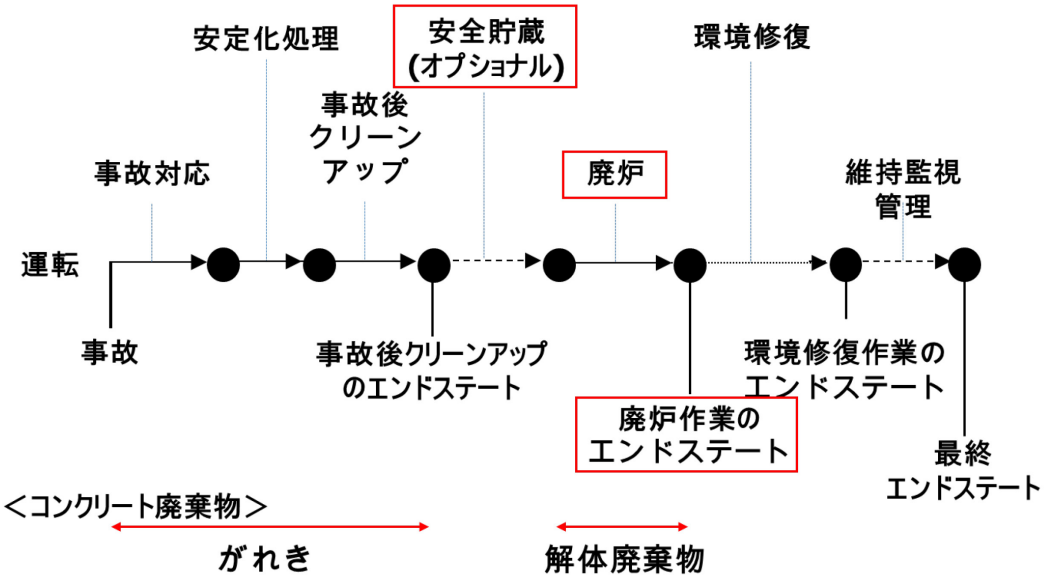
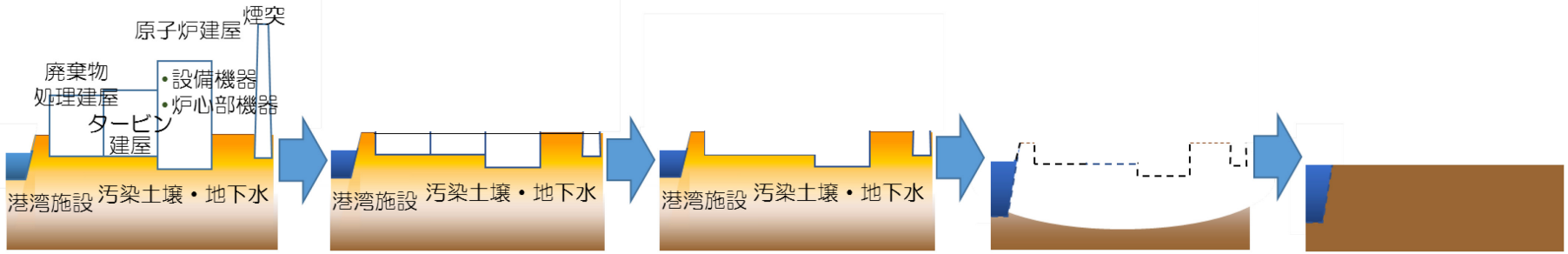


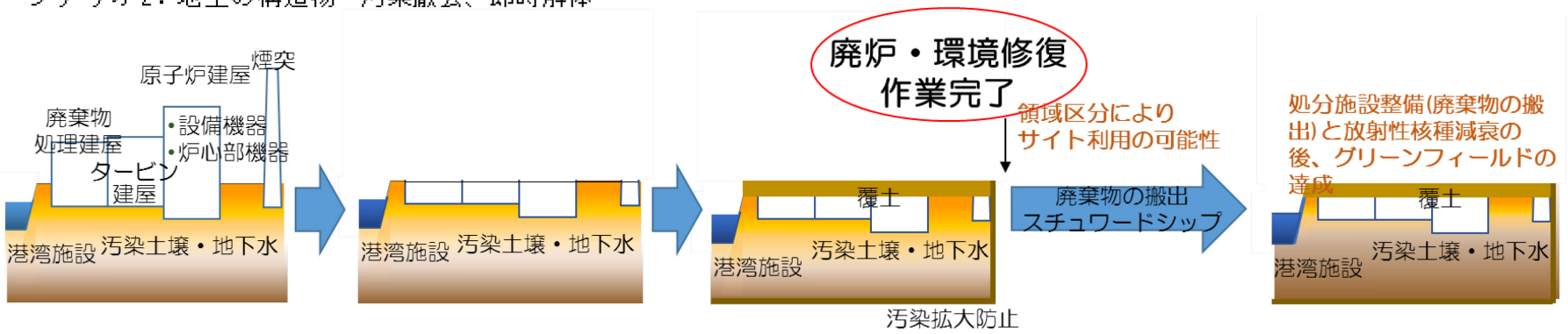
図 3.3-19　事故からエンドステートまでの流れ[22]

シナリオ1：構造物・汚染全撤去、即時解体



Phase 1　　Phase 2　　Phase 3

シナリオ2：地上の構造物・汚染撤去、即時解体



Phase 1　　Phase 2　　Phase 3　　Phase 4

図 3.3-20　検討対象シナリオ　①即時解体

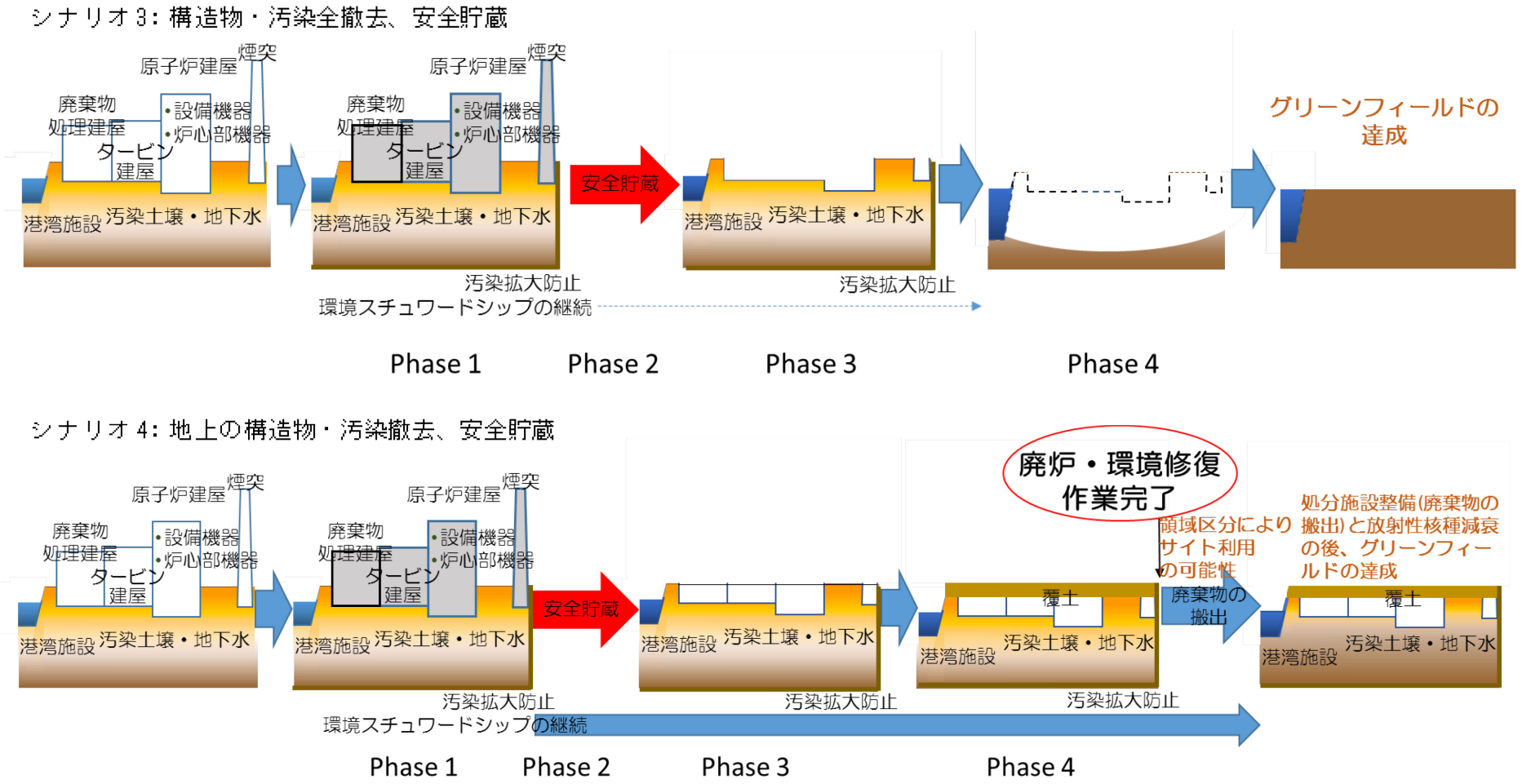


図 3.3-20　検討対象シナリオ　②安全貯蔵

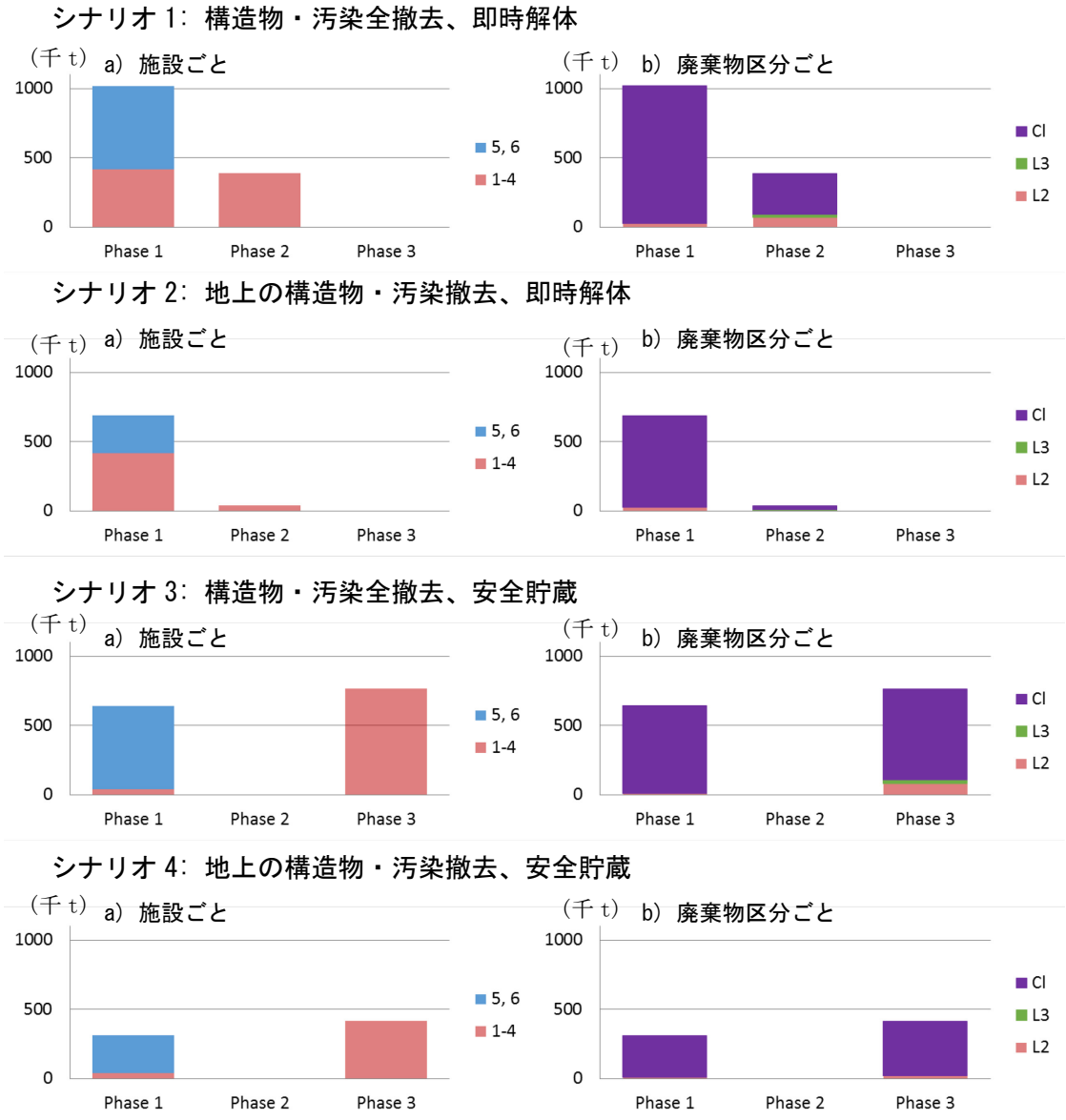


図 3.3-21　シナリオごとの廃棄物発生量と発生タイミング

廃棄物区分ごとの物量は減衰を考慮せず、将来発生する廃棄物についても、現段階での濃度で想定している。

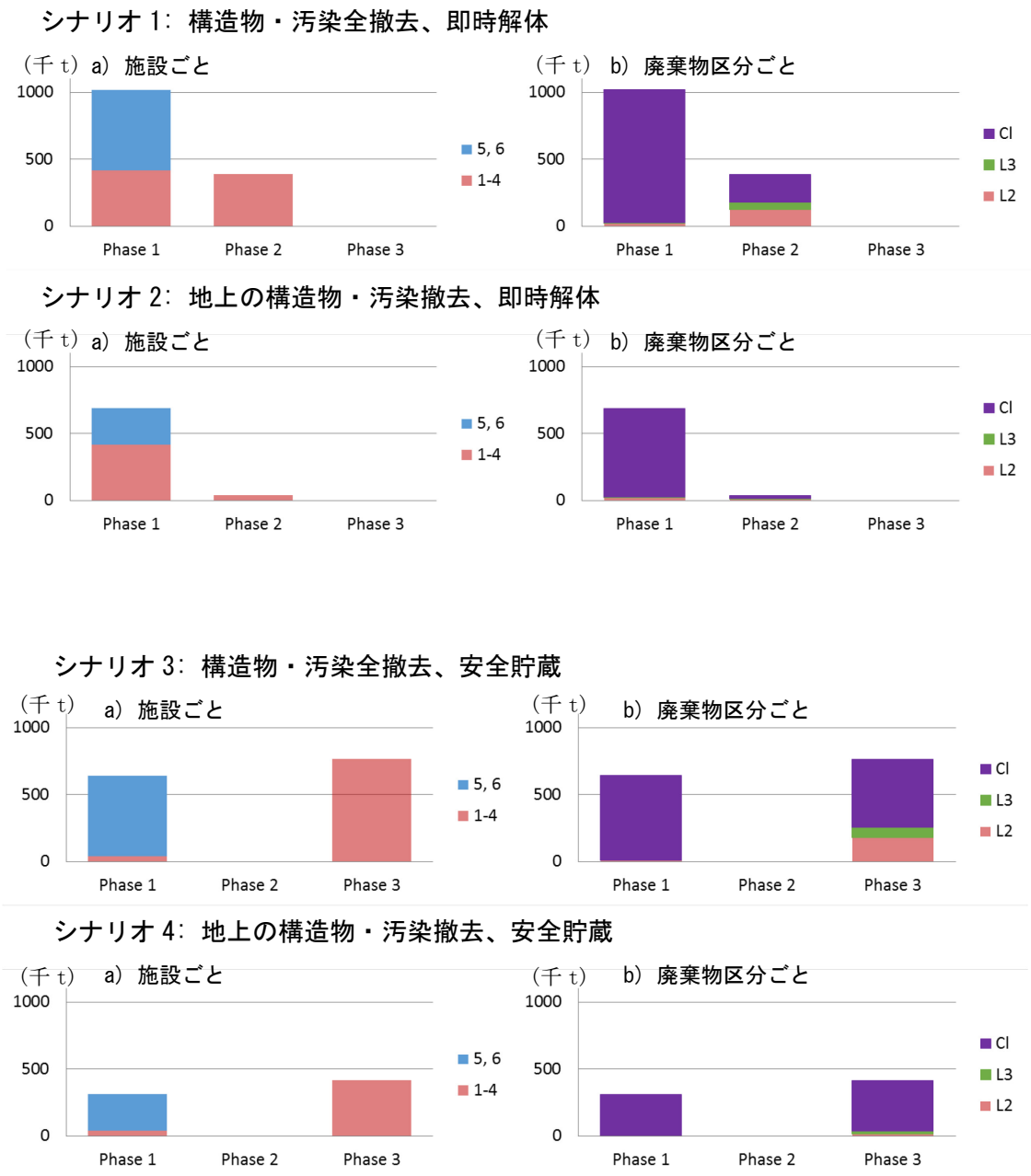


図 3.3-22　シナリオごとの廃棄物発生量と減衰を考慮した例

シナリオ 1、2：Phase 1 終了が現在から 20 年後、Phase 2 終了がさらに 10 年後と想定
シナリオ 3、4：Phase 1 終了が現在から 20 年後、安全貯蔵期間(Phase 2)を 50 年とし、Phase 3 がさらに 10 年間と想定

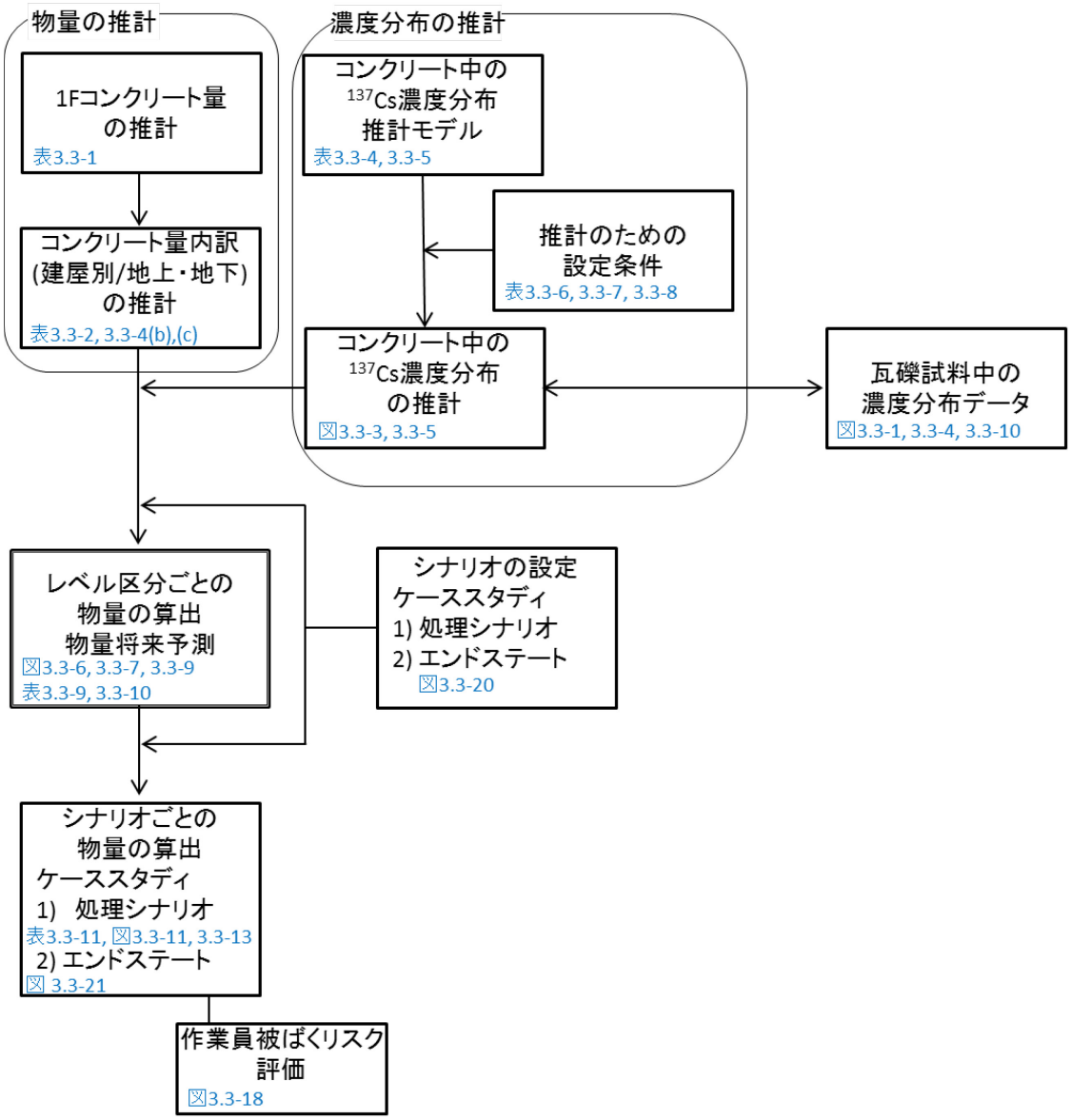


図 3.3-23　廃棄物管理シナリオ評価ツール概念図

表 3.3-12 瓦礫類の管理状況（2019.2.28 時点）[18]

分類	保管場所	エリア境界 空間線量率（mSv/h）	保管量（m^3）
屋外集積 （0.1 mSv/h 以下）	B	0.01	2,700
	C	0.01 未満	62,100
	F2	0.01 未満	6,400
	J	0.01	5,200
	N	0.01 未満	9,600
	O	0.01 未満	43,500
	P1	0.01 未満	50,400
	U	0.01 未満	700
	V	0.01	4,700
	AA	0.01 未満	8,500
	小計		193,800
シート養生 （0.1～1 mSv/h）	D	0.01 未満	2,600
	E1	0.02	14,100
	P2	0.01	5,600
	W	0.03	6,500
	X	0.01	7,900
	小計		36,700
覆土式一時保管施設、 仮設保管設備、容器 （1～30 mSv/h）	L	0.01 未満	16,000
	A	0.14	1,000
	E2	0.01	400
	F1	0.01 未満	600
	Q	0.04	800
	小計		18,800
固体廃棄物貯蔵庫	固体廃棄物貯蔵庫		14,400
合計(ガレキ)			264,000

※端数処理で 100m^3 未満を四捨五入しているため、合計値が合わないことがある。

3.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため委員会を開催した。

関係する研究者全員による全体委員会を毎年 1 回開催した。一方、研究代表者は、再委託先である日本原子力研究開発機構および福井大学にそれぞれ年 1 回ずつ訪問し、再委託先での研究進捗状況について意見交換した。

4. 結言

本研究では、福島第一原子力発電所(1F)における変質コンクリート試料に対して汚染分布の経時変化に関する現象理解を図ること、および、この現象理解に基づいたコンクリート中の汚染分布の将来予測を行い、その結果を用いて解体から最終処分までの廃棄物管理の異なる選択肢を評価する手法を確立することを目標とし、

1. 事故時温度解析に基づく変質コンクリートの調製
2. 核種移行特性評価
3. 廃棄物管理シナリオ評価

の3つを実施した。

コンクリート材料の事故時温度解析では、1F 構造物をコンピューター上にて作製した上で、過酷事故時に生成された溶融デブリ崩壊熱を熱源とした三次元熱流体解析を実施し、1F コンクリート材料における温度分布を調査することを目的とした。汎用三次元数値流体力学（CFD）解析コード Star-CCM+を用いて、1F コンクリート構造物における伝熱特性ならびに事故時の温度変化の検証を行った。初年度である平成28年度には1F構造の調査を実施した上で計算領域を作成、平成29年度には領域別の熱計算を実施し、平成30年度には前年度までの解析結果の妥当性確認と、より詳細な伝熱解析計算を行い、局所的なコンクリート構造物の温度分布を評価した。その際、事故直後に生成された溶融デブリからの崩壊熱により顕著な伝熱が懸念される部位は格納容器（PCV）周辺領域のコンクリートと下部コンクリート部位であることから、PCV周囲ならびに下部のコンクリートに着目し局所的な温度分布評価を実施した。その結果、堆積したデブリ近傍は 3000℃近くにまで達し、放射状に減熱していく傾向にあることを確認した。PCV エアギャップと隣接するコンクリート壁 5cm 内においては、最高温度が350℃近くまで達し、その温度はコンクリートの厚さ方向に5cm当たり約25℃ずつ減少する傾向が認められた。なお、高熱伝導率値を有する鉄筋がコンクリート内部に存在する場合、熱伝導率は大きいものと考えられ、コンクリート温度も 350 ℃以上に上昇するものと考えられる。一方、PCV 周囲のコンクリートは 350～500℃近くまで達し、PCV 外壁から離れるにつれ徐々に減熱していく傾向が確認された。最高到達温度はデブリ位置からの高さに依存しており、デブリとサプレッションチェンバー部に近い高度15m（H=15m）においては500℃近傍までの温度上昇が確認された。PCV外部に隣接するコンクリート部は最高温度350～500℃の範囲で50時間以上維持されていたと考えられる。また、下部コンクリートにおいては8割強の領域で1500℃以上の熱に曝されており、292～1800℃の範囲の温度分布であることが本計算により明らかになった。

温度解析の結果を参考に、w/c 比 0.36 および 0.6 のセメントペースト試料、モルタル試料、鉄筋を模擬したピアノ線を挿入したセメントペースト(鋼線ペースト)試料に対し、事故時を模擬した劣化作用を与えた。様々な加熱条件(温度 80～1000 ℃、加熱時間 2、6、12、24、72 時間)で熱変質試料を調製し、さらに、浸漬(溶解変質)、炭酸化(中性化)等の変質処理を施した。

これらのセメント系材料に対して、非破壊 CT-XRD 連成法を用いた微細構造評価を行った。セメントペースト試料では、加熱によるポルトランダイトの分解、脱水反応に伴いセメントペーストが収縮してひび割れが生じた。モルタル試料では、加熱によるセメントペーストの収縮を骨材等が内部で拘束するため、骨材周辺にもひび割れが生じた。骨材周辺のひび割れ幅は、セメントペースト部よりも大きかった。これらのひび割れは、加熱温度が高いほど、また加熱時間が長いほど大きく、外縁部から内部に進行した。一方、鋼線ペーストのように異なる熱膨張係数に起因するひび割れは、外縁部では

なく、異なる材料が接する面に発生した。800℃以上では、Quartz の相転移に伴う体積膨張に由来すると推察される同様のひび割れが骨材周りに起こることが明らかになった。400 ℃での長時間曝露では、ポルトランダイトの分解反応が進み、また、800 ℃以上の高温では、CaO、ケイ酸二カルシウム($2CaO \cdot SiO_2$、C_2S)、鉄アルミン酸四カルシウム C_4AF($4CaO \cdot Al_2O_3 \cdot Fe_2O_3$、$C_4AF$)の生成が認められた。加熱後に試料を浸漬させると、加熱により生じたひび割れを通じて中心部まで変質が起き、試料内部でもカルサイトが検出された。炭酸化した試料でも、ポルトランダイトは加熱による分解、浸漬による溶脱作用を受けるが、200～400℃加熱試料ではポルトランダイトの溶脱の程度が小さく、浸漬前の加熱が溶脱の抵抗性を上げる可能性が示唆された。

このようなセメントペーストの物理的変化(空隙構造等)や化学的変化(構成鉱物や結晶構造の変化等)が核種の移行に与える影響を検討するため、拡散および収脱着実験を行った。収着実験終了後のコンクリート試料中の U、Cs および Sr の化学状態を XAFS 等により分析した結果、U の主要なホスト相は炭酸カルシウムではなく、また、収着後イオン交換水を用いて U を脱離させたセメント試料のスペクトルに変化がなかったことから、特定の相の U が脱離したわけではないことが明らかになった。なお、Cs に関しては、セメント試料の Cs 収着量が少なく、また、K 吸収端の EXAFS 振動が弱いため僅かなノイズであっても解析において大きな障害となるため、解析に耐えうる EXAFS スペクトルを得ることができなかった。Sr については、Sr を収着させた未加熱粉末試料、200℃加熱粉末試料および 400℃加熱粉末試料、Sr を収着させる前の未加熱粉末試料、200℃加熱粉末試料および 400℃加熱粉末試料のスペクトルがいずれも互いに良く類似していることから、セメントの加熱条件は、セメント固相中での Sr の化学状態（配位数、原子間距離）に影響を及ぼしていないこと、セメントに元々入っていた Sr の化学状態とセメントに収着した Sr の化学状態とは類似していることが示唆された。

加熱・再水和したセメントペースト試料中の Cs^+の拡散試験の結果、80～400℃加熱で Cs^+の見かけの拡散係数は未加熱試料に対し約 3～10 倍に増加した。また、拡散の活性化エネルギーは、未加熱試料においては自由水中の Cs^+の拡散の活性化エネルギーよりも高かったのに対し、80～400℃加熱試料では未加熱試料よりも減少して自由水中の値に近づいた。

水銀圧入試験による細孔容積のピーク位置は、加熱により細孔直径が増大したことから、セメント試料中の Cs^+イオンは、未加熱試料の場合、ゲル空隙内の水のような束縛された水を介して拡散する方が支配的であるために自由水中よりも拡散の活性化エネルギーが高く、加熱により細孔が増大し、毛細管空隙を介した拡散の割合が増加したことが示唆された。また、空隙サイズの拡大に伴い、拡散経路の屈曲度あるいは収斂度が低下し、見かけの拡散係数が増加したと考えられた。同様に、 Na においても、加熱試料では見かけの拡散係数は 5～6 倍増加した。これは、Cs と同様に、加熱に伴う毛細管空隙の増大により拡散経路の屈曲度あるいは収斂度が増加したためと考えられる。また、拡散の活性化エネルギーは、加熱の有無によらず自由水中の Na^+の活性化エネルギーとほぼ同等であった。セメントペースト中には相当量の Na^+イオンが存在していることから、セメント平衡水を内部に有する毛細管空隙が Na^+イオンの支配的な拡散経路となったことが示唆された。一方、HTO については加熱により見かけの拡散係数は約 3 倍に増加した。一般に、HTO は固相との相互作用のない、収着による遅延がない放射性トレーサーとして考えられているが、セメント試料の場合、毛細管空隙のみならず、比較的狭隘なゲル空隙にも HTO が進入すると考えられることから、それに伴って移行に遅延が生じる可能性があることが考えられた。

以上の結果に対して、未加熱および400℃加熱試料に対して実施したUの拡散試験ではいずれの試料においても、Uは塗布面の極近傍に留まった。Uは、加熱、未加熱にかかわらず、セメント試料への収着が大きく、拡散係数が 10^{-16} m^2 s^{-1} オーダー程度と見積もられ、他の核種と比較して移行遅延が顕著であることが明らかとなった。

粉砕したセメントペースト試料に対して、U、Cs、Sr を対象とした収着実験を行い、収着分配係数を取得した。水/セメント比、加熱の有無、加熱温度の違いに関わらずセメントペースト試料の XRD 結果はいずれもほぼ同一で、すべての試料でポルトランダイト($Ca(OH)_2$)が主たる結晶相で、カルサイト ($CaCO_3$)を含むことがわかった。また、溶解変質させたセメントペースト試料の鉱物相はいずれもカルサイト が主要な相であった。

初期濃度 1ppm、10ppm の条件下で実施した U の収着実験では、過熱の有無に関わらず 99.9%以上のUが収着し、いずれの場合もUの分配係数は 1×10^5 mL/g 以上となった。また、収着は非常に早く 2 時間以内に定常に達し、温度依存性が無く、海水濃度の塩化ナトリウムに吸着が妨害されることは無かった。収着試験後の SEM-EDX 分析では、U は検出されず、U が特定の鉱物相に濃集せず、広く薄く収着したことが示唆された。U 初期濃度 100ppm とした試料の SEM-EDX 分析では、U の濃度にばらつきが生じ、濃集している点が認められたが、U の濃集箇所に偏在しているセメント主要元素は認められなかった。セメント平衡水中の主要元素組成を元に U の化学種を Geochemist Workbench によって求めると、水溶液中 U の大部分は負電荷を持つ水酸化物錯体であり、水酸化物錯体は一般的に固相に収着しやすく、かつ重合しコロイドを形成しやすいことから、重合度が大きく異なるU錯体が固相に収着した可能性が考えられた。

Csの分配係数は初期濃度1mMでは20～40 mL/g 、10μM では50 mL/g程度、Srは初期濃度1mMでは6～14 mL/g 、10μM では44～51 mL/g程度であり、Cs、Srともに溶解変質前のセメントの収着能は小さく、加熱による差はないことが明らかとなった。一方、溶解変質後の試料に対しては、Cs の分配係数は約 5～6×10^3 mL/g、Sr は約 2×10^3 mL/g であった。溶解変質後の主な固相であるカルサイトへの収着は Cs、Sr ともにほとんど認められず、溶解変質により生成したカルサイト以外の微量成分に収着した可能性がある。また、2 回の 1mM $CaCl_2$ 水溶液による脱離では、Cs、Sr ともに 90%程度が残存し、収着した Cs、Sr の多くが静電的結合よりも強固に結合している可能性が示唆された。

Na、HTO の収着、脱離試験では、液相濃度がほぼ一定となり、収着や同位体交換(同位体希釈)の拡散・収着時の影響は小さいことが示唆された。

事故の影響を受けた 1 から 4 号機のコンクリート廃棄物量は、原子炉建屋、タービン建屋合わせて約 80 万 t 程度と推計された。このうち、平成 31 年 2 月までに約 26 万 m^3 の瓦礫類が固体廃棄物として保管されている。これらのコンクリートを熱変質の有無、周辺環境(気中、水中)に分類し、

- 気中では建屋内の壁面には事故時、放射性核種が水滴等とともに付着
- 水没した領域では、水中に溶解した放射性核種とコンクリート壁面が接触

した初期状態から、コンクリート内部への放射性核種の拡散が始まると想定した。また、本検討では建屋内壁のコンクリート表面のコーティングはその機能を喪失し、コンクリート表面が放射性核種で直接汚染することを想定した。滞留水中および壁面に付着している ^{137}Cs 濃度としては公開されているデータを基にした。概算結果では、発生するコンクリート廃棄物の約 9 割がクリ

アランス対象となり、L2 相当が約 10 万 t、L3 相当が約 3 万 t と推計された。

廃炉のエンドステートとして、地下構造物を残存させるシナリオを検討した結果、総廃棄物量を約半分に放射性廃棄物量を約 3 分の 1 に減量できることがわかった。また、安全貯蔵期間を設定すると、本検討の条件では滞留水から浸入する ^{137}Cs の影響で放射性廃棄物量が増加することがわかった。廃炉のシナリオを検討する上では、総物量、放射性廃棄物量ともに地下構造物の影響が大きく、地下における ^{137}Cs 等の放射性核種の挙動を把握することが重要であることがわかった。

5. 参考文献

[1] 日本建築学会 ”構造材料の耐火性ガイドブック”、2017

[2] Castellote, M., Alonso, C., Andrade, C., Turrillas, X., and Campo, J. “Composition and microstructural changes of cement pastes upon heating, as studied by neutron diffraction.” Cement and Concrete Research, Vol.34, No.9, pp. 1633-1644, 2004.

[3] 神田良照、鈴木道隆 ”岩石と鉱物のビッカース硬度”、粉体工学研究会誌、Vol.13、No.9、pp.487-489、1976.

[4] Saad, M., Abo-El-Enein, S. A., Hanna, G. B., and Kotkata, M. F. “Effect of temperature on physical and mechanical properties of concrete containing silica fume.”, Cement and Concrete Research, Vol.26, No.5, pp.669-675, 1996.

[5] Takahashi, H., and Sugiyama, T. “Application of non-destructive integrated CT-XRD method to investigate alteration of cementitious materials subjected to high temperature and pure water.”, Construction and Building Materials, Vol.203, pp.579-588, 2019.

[6] 手塚善勝、朝倉啓仁、中村眞一、佐々木元茂 ”蛍光エポキシ樹脂含浸法によるコンクリートコアサンプルの微細ひび割れの可視化手法”、土木学会北海道支部論文報告集(CD-ROM)、Vol.61、Ⅴ-10、2004.

[7] R. Parsons, Handbook of Electrochemical Constants, Butterworths Sci. Publ., London (1959).

[8] 野村顕雄、田中宏志、白坂靖人、9.福島原子力発電所第３号機工事報告、コンクリート・ジャーナル、Vol.12、No.6、1974

[9] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, 日本原子力研究開発機構, “廃棄物試料の分析結果（4 号機建屋原子炉建屋ボーリングコア, 土壌, 多核種除去設備処理水）,” 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第 60 回）, 平成 30 年 11 月 29 日

[10] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, 日本原子力研究開発機構, “廃棄物試料の分析結果（瓦礫, 水処理設備処理二次廃棄物, 汚染水, 処理水, 土壌）,” 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第 56 回）, 平成 30 年 7 月 26 日.

[11] 栗飯原はるか 他, “福島第一原子力発電所内滞留水中の放射性核種の構造材への移行, (1) Cs, Sr, Ni の移行挙動,” 日本原子力学会「2017 年秋の大会」.

[12] 東京電力ホールディングス WEB ページ
http://www.tepco.co.jp/decommission/data/surveymap/

[13] Argonne National Laboratory, RESRAD-ONSITE,
http://resrad.evs.anl.gov/codes/resrad-onsite/

[14] 東京電力ホールディングス WEB ページ
http://www.tepco.co.jp/decommission/data/daily_analysis/retained_water/index-j.html

[15] Hiroaki Takiya, Naoko Watanabe, Tamotsu Kozaki, Seichi Sato, “Effects of water-to-cement ratio and temperature on diffusion of water in hardened cement pastes” Journal of nuclear science and technology, 52, 728-738, (2015)

[16] Hiroaki TAKIYA, PhD Dissertation, “Diffusion mechanism of water and ions in hardened cement pastes with different water to cement ratios”, Hokkaido University (2015)
[17]東京電力ホールディングス株式会社, “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,” 2018 年 6 月版, 2018 年 6 月 28 日.
[18] 東京電力ホールディングス株式会社, 瓦礫類・伐採木・使用済保護衣等の管理状況（2019.2.28 時点）, 2018 年 3 月 31 日.
https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2019/03/3-4-2.pdf
[19] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構, “東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン 2018,” 2018 年 10 月 2 日.
[20] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, “IRID の研究開発の状況 ～安全と実現性を高める概念設計と今後の技術開発,” IRID シンポジウム 2018, 2018 年 8 月 2 日.
[21] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, “IRID の研究開発の状況,” IRID シンポジウム 2018, 2018 年 8 月 2 日.
[22] IAEA, Experiences and Lessons Learned Worldwide in the Cleanup and Decommissioning of Nuclear Facilities in the Aftermath of Accidents, Nuclear Energy series, No.NW-T-2.7, 2014
[23] OECD/NEA, Strategic considerations for the sustainable remediation of Nuclear Installations; Radioactive Waste Management 2016; OECD 2016, NEA 7290
[24] IAEA, On-site disposal as a decommissioning strategy, IAEA-TECDOC-1124, 1999