

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

(受託者) 国立大学法人北海道大学

(研究代表者) 小崎 完 大学院工学研究院

(再委託先) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人福井大学

(研究期間) 平成28年度～30年度

1. 研究の背景とねらい

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、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。また、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完するために必要な拡散・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、とくに、事故初期の高温環境下での脱水と反応や、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、放射性コンクリート廃棄物は、燃料デブリ取り出しに付随して発生する他、建屋解体作業に伴い激増すると予想される。それらは最終処分までに長期間を要すると考えられ、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の検討が不可欠である。さらに、事故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う(図1)。まず、3次元熱流動計算により1F格納容器内コンクリートの事故時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。その条件に基づき実験室内で模擬熱変質コンクリート試料を調製する。次に、この模擬変質試料を用いて微細構造等特性評価、拡散・収着試験を実施し、汚染分布の経時変化に関する現象理解を図る。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う。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、物量および放射線被ばくリスクを評価し、最適な解体、処理・処分方法を明らかにする手法を確立することを目指す。

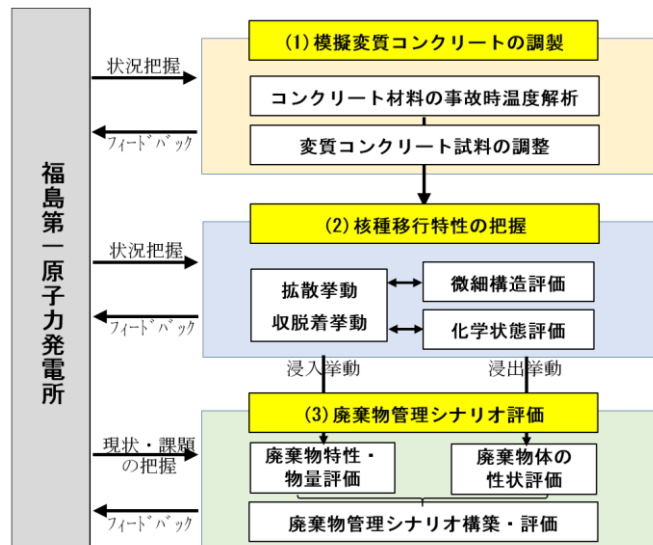


図1 研究の概要

2. これまでの研究成果

本研究ではこれまでに、1) 変質コンクリートの調製(詳細なコンクリート材料の事故時の温度解

析および変質コンクリートの微細構造評価)の準備を行うとともに、2)核種移行特性の評価(加熱によるコンクリート変質とその核種移行特性への影響評価)に着手し、3)廃棄物管理シナリオ評価のための廃棄物管理に関する枠組みについて調査した。詳細は以下のとおりである。

2.1 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

1 Fの事故時の温度変化を検証するため、建屋構造および熱源となる溶融デブリの堆積割合について調査し、それらをもとに、三次元数値流体力学(CFD)解析コード(STAR-CCM+)を用いて構造物の計算領域(メッシュ)を作成した。格納容器内構造物の計算領域において480万のセル数を用いた温度予測では、2015年5月時点での実測値温度と比較し、デブリが複雑な形態で付着していると考えられる高度10-15m近辺を含む21計測点において $\pm 8^{\circ}\text{C}$ の誤差範囲となった。今後、同程度の数密度においてメッシュ生成を実施する。

(2) 変質コンクリート試料の調製

①コンクリート試料

コンクリート(モルタル)試料は、普通ポルトランドセメント(OPC、密度： $3.16\text{g}/\text{cm}^3$)および静内川産の川砂(密度： $2.71\text{g}/\text{cm}^3$)を使用し、水セメント比(w/c比)0.6、砂セメント比2.5、サイズは $\phi 50 \times 100\text{mm}$ となるよう調製した。約3ヶ月の水中養生後に加熱実験を行なった。試料を養生槽から取り出し24時間気中に曝露した後、試料内部の自由水脱水、加熱時爆裂防止のため 105°C で24時間の加熱を行なった。次に室温まで徐冷した試料を $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で 400°C まで昇温し、72時間の加熱を行なった後、室温まで徐冷した。

加熱後の試料の圧縮強度(JIS A 1108)は、 $15.5\text{N}/\text{mm}^2$ となり、養生91日後と比較して59%減少していた。加熱後試料の微視的断面観察では、蛍光エポキシ樹脂が試料の外側から含浸しており、加熱により脱水した領域が組織的に粗になったと考えられる。一方、セメント硬化体の場合の報告例^[1]と異なり、モルタル試料には微細なひび割れは検出されなかった。水銀圧入式ポロシメータによる積算細孔容積は加熱により増加しており、ピーク点において約1.3倍増大している。また細孔容積のピークは、加熱前は36nm付近にあるのに対し、加熱後は108nm付近に存在し、細孔容積も増加している。また加熱後は10nm以下の細孔容積が減少している。水和物中の結合水の脱水および消失が、細孔径分布のピークシフトに影響を与えていると考えられる。

②セメント試料

硬化セメントペースト試料は、w/c比0.36および0.60となるようOPCとイオン交換水を混ぜ、成形後、 25°C 環境下で28日間水中養生した。調製したセメントペーストは、所定の高さ(5mm、15mm、30mm)に切断後、試料内部の自由水を脱水するため、恒量に達するまで減圧下 60°C で加熱した後、 $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で昇温し、 200°C において恒量になるまで(72時間程度)加熱した。加熱により、水和率の減少、全空隙率、毛細管空隙率の増加が見られた。

2.2 核種移行特性の評価

(1) 微細構造評価

平成29年度から実施する非破壊CT-XRD連成法による分析の準備とし、CT測定系においては画素寸法の改良、鉄筋を模擬した鋼線を挿入したセメント硬化体を観察する際の高エネルギー化等を検討し、鮮明な断面画像が取得可能となった。さらにXRD測定による水和物組織の変質観察は、試料を透過するX線が減衰するため低いエネルギー帯でのピークが取得困難であるため、試料サ

イズを調整する等、同定の精度向上を目指した検討を行った。

(2) 化学状態変化

OPC と水を w/c 比 0.36 で混合・成型し、25°C で 28 日間養生したセメントペースト試料を 200°C および 400°C で加熱・粉碎し、X 線回折 (XRD) 測定を行った。加熱した試料では $\text{Ca}(\text{OH})_2$ のピークが小さくなっており、脱水反応が起きていることがわかる。また、カルシウムシリケート水和物 (CSH) のピークは、200°C に加熱した試料では低くなっており CSH の分解が、一方、400°C で加熱した試料では高くなっており、CSH の構造が変化している可能性が考えられる。

(3) 拡散挙動、収脱着挙動

① ^{22}Na の拡散挙動

セメントペースト試料は、OPC と水を w/c 比 0.36、0.60 で混合し、成型後、50°C で 90 日間養生して調製した。拡散試験は、試料に ^{22}Na を塗布して拡散源とし、所定温度 (20~50°C) で拡散させ、所定時間経過後、塗布面よりセクションングを行って試料中の放射能濃度分布から見かけの拡散係数 (D_a) を決定した。また、 D_a の温度依存性から拡散の活性化エネルギー (E_a) を決定した。 ^{22}Na の D_a は 10^{-12} から $10^{-11} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ のオーダーであり、w/c 比が高い程、また拡散温度が高い程、大きな値を示した。w/c 比 0.60 のセメントペースト中の E_a は、 $14.8 \pm 1.3 \text{kJ mol}^{-1}$ と自由水中の Na の E_a 18.4kJ mol^{-1} [2] とほぼ同じ値となり、毛細管空隙率の高いセメント試料中では Na^+ は自由水中の移行と類似した移行過程で拡散していることが示唆される。一方、w/c 比 0.36 のセメントペーストでは E_a は $34.1 \pm 2.8 \text{kJ mol}^{-1}$ と自由水中の値とは大きく異なる値となった。

② U の収脱着挙動

セメントペースト試料は、OPC と水を w/c 比 0.60 で混合し、成型後、25°C で 62 日間養生して調製した。また、模擬熱変質試料は、w/c 比 0.36 のセメントペーストを成型後、25°C で 28 日間養生した後、200°C のオーブンにて 72 時間加熱して調製した。収脱着実験にはこれらの試料を粉碎、ふるい分けし、75-46 μm の部分を用いた。セメント試料 0.05g に対し、U 濃度 1ppm、固液比 1:10 となるよう天然 U 硝酸水溶液および純水または 0.6M 塩化ナトリウム水溶液を加え、20°C または 40°C のエアバス中で振とう機に載せ、収着試験を行った。所定時間 (2、4、24 時間) 経過後、2000rpm で 5 分間遠心分離した後、0.2 μm のフィルターで液相をろ過し、液相中のウラン濃度を誘導結合プラズマ質量分析計 (ICPMS) で定量した。また、ウラン吸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を行った。

実験したすべての条件で、液相に加えたウランの 99.9% 以上がセメント試料に吸着した (分配係数約 $1 \times 10^5 \text{g/mL}$ 以上)。吸着は 2 時間以内に定常に達し、温度依存性が無く、海水濃度と同等の塩化ナトリウムによりウランの吸着が妨害されることは無かった。また、セメントの加熱による吸着への影響も見られなかった。加熱したセメント試料の SEM 分析結果の一部を図 2 に示す。直方体の固相と非晶質的な固相が観察され

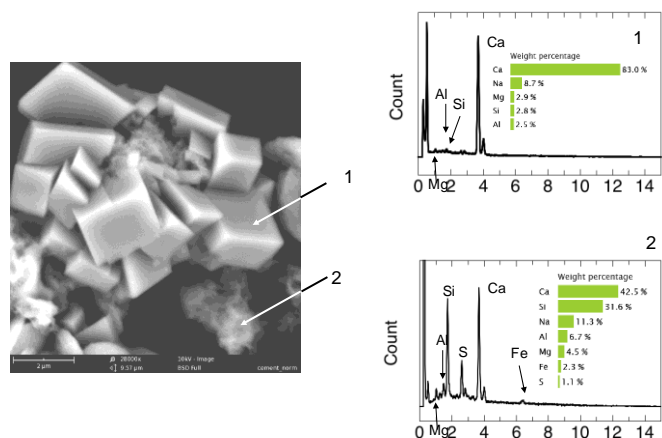


図 2 加熱処理 (200°C) セメント試料の電子顕微鏡分析

たが、非加熱の試料で観察された繊維状の固相は観察されなかった。また、20カ所について元素分析を行ったが、ウランが全く検出されなかった。これらの結果から、ウランは特定のセメント成分に濃集するのではなく、広く分布したと考えられる。

2.3 廃棄物管理シナリオ評価

(1) 廃棄物物性、物量評価

1Fのコンクリート構造物の物量、汚染状況についての具体的な情報は乏しいため、物量については、設備の緒元や建屋構造図をもとに推定する必要があることがわかった。また、汚染の状況についても公開されている空間線量率データやソースタームから推定し、コンクリート構造物マトリックス中の移行挙動については、熱および浸水による変質の状況を分類分けし、核種の化学的性質を考慮して推定するための準備を行った。推定は、不確実性分析と合わせて実施する必要がある。

(2) 廃棄体の性状評価

1Fから発生するコンクリート放射性廃棄物を、従来の放射性廃棄物区分にあてはめた場合の放射性核種の浸透、浸出モデルをGoldSimを用いて作成した。事故廃棄物を従来と同様の方法で処分するための、測定、廃棄物の区分分け等の課題についての整理を行った。

(3) 廃棄物管理シナリオ構築・評価

コンクリート廃棄物の発生から最終処分までの選択肢をもとに意思決定木を作成した。その際、CLレベル以上の廃棄物の1Fサイト内での限定再利用の可能性についても検討に含めた。今後は、検討対象とするシナリオを抽出し、核種移行モデルと組み合わせた意思決定ツールの策定を行う。

3. 今後の研究

- ・本年度に作製した計算領域をもとに三次元熱流体解析を実施し、詳細な温度分布情報を取得してコンクリートの変質条件を評価する。
- ・事故時の変質条件に基づき模擬熱変質コンクリート試料を実験室内で調製し、SPring8を利用した非破壊CT-XRD連成分析による微細構造等特性評価を実施する。セメント硬化体、モルタル、鋼線を含むセメント硬化体を対象とし、ひびわれ等の物理的な変化に加えてセメント構成物の化学的な変化、骨材、鉄骨等複合材料による影響等についての評価を行う。
- ・XAFS測定により、コンクリート材料中の核種の化学状態に関する情報を得る。
- ・拡散・収着試験を実施し、コンクリート材料の微細構造の変化、化学状態と核種の移行挙動の関係性について検討し、汚染分布の経時変化に関する現象理解を図る。
- ・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う。
- ・複数の廃棄物管理シナリオにおける物量、放射線被ばくリスクを評価する。

4. 参考文献

- [1]加藤優志,五十嵐豪,西脇智哉:1150℃までの高温履歴を受けたセメント硬化体の力学的性質,コンクリート工学年次論文集, Vol. 38, No. 1, pp. 687-692 (2016)
- [2]R. Parsons, Handbook of Electrochemical Constants, Butterworths Sci. Publ., London (1959)