

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

名古屋大学，東京大学
国立環境研究所
東京大学（元東北大学）
太平洋コンサルタント
日本原子力開発機構

丸山一平
山田一夫
五十嵐豪
芳賀和子
駒義和

文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」・「放射性物質によるコンクリート汚染の機構解明と汚染分布推定に関する研究」JPMX 17D17948568

背景 本研究の位置づけと目的

1Fの廃炉作業の設計におけるコンクリートに関連する必要な情報

除染方法の選択のための**汚染機構**

部位・核種ごとの汚染分布情報

廃棄物量および濃度の推計

本研究の目的

事故後から将来にわたるコンクリートの汚染分布の推定をするための**基盤情報の提供**

↓
数値モデルによる核種の移行計算手法の提示、それによる**試算の実施**

実施内容

↑
事故前後の**1Fコンクリートの状態**の経年変化を考慮することが必要

- **炭酸化やCa溶脱**などのコンクリートの変質（**拡散・収着**の影響要因）
- **乾燥状態**で水が接触した際の吸水による水の移動（核種の**移流**）

↘
変質を模擬した試料による**実験的検討**、**モデル化**の検討を実施

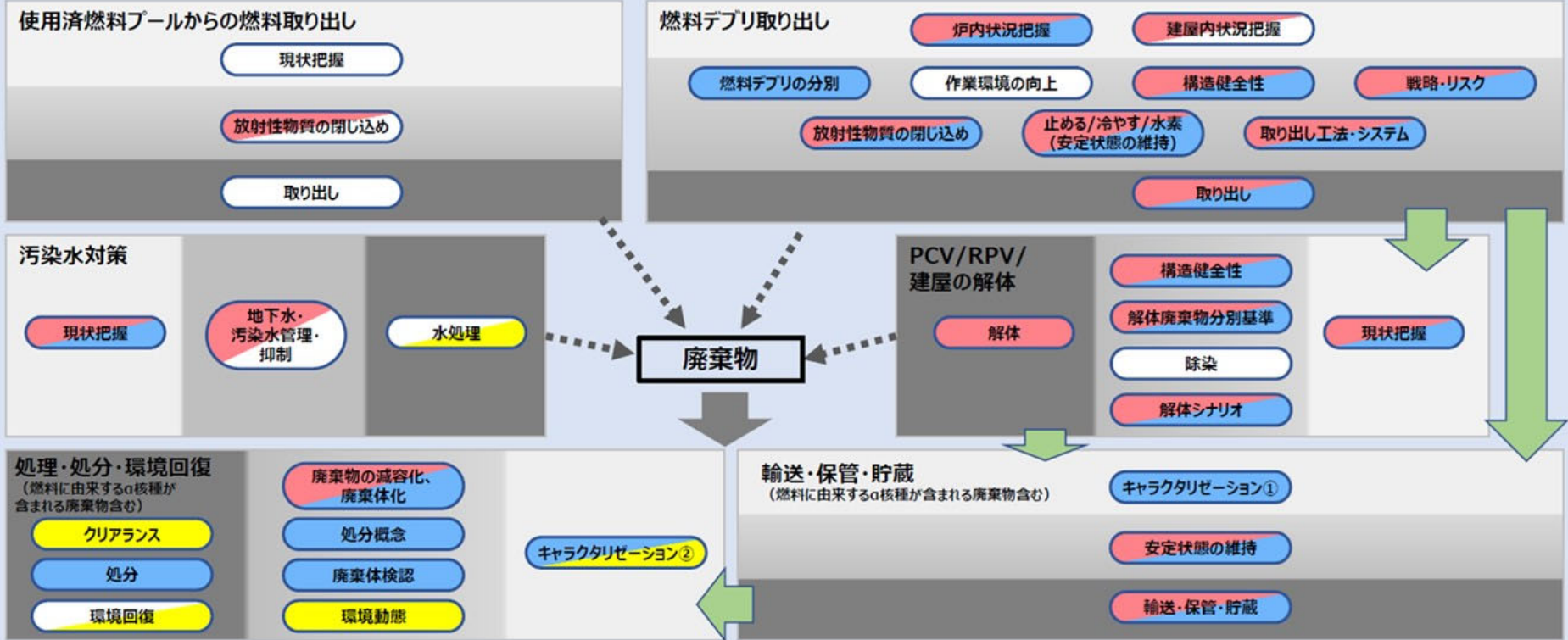
- ひび割れは本研究では取り扱わない

背景 本研究と福島第一原子力発電所廃炉ニーズとの関係性

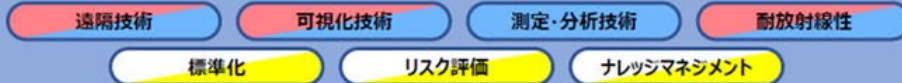
福島第一原子力発電所廃炉のための『基礎・基盤研究の全体マップ』



廃炉を合理的に進めるための全体戦略（プロセスの全体最適、リスク管理、経済合理性）



技術基盤研究



社会的基盤研究

- 法整備
- 人材育成
- 地域共生
- 情報発信
- 持続可能性の確保
- 労働環境管理

背景 本研究と福島第一原子力発電所廃炉ニーズとの関係性

福島第一原子力発電所廃炉のための『基礎・基盤研究の全体マップ』



PCV・RPV内部の構造物の汚染状況把握

[課題-ニーズ番号:デブリ-102]

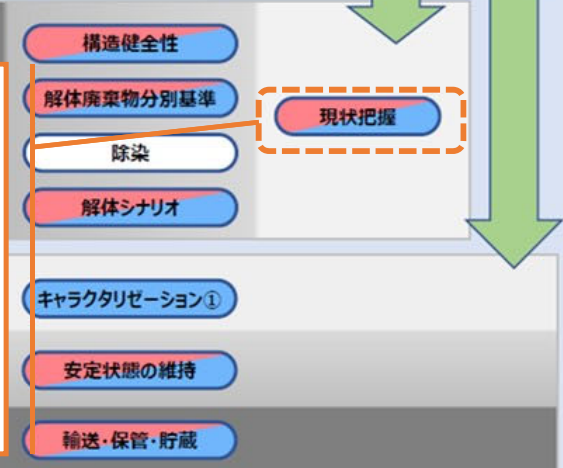
燃料デブリのサンプリングや燃料デブリ取り出しを安全かつ効率的に行うためには、構造健全性やアクセスルート構築の観点から原子炉圧力容器、炉内構造物やその他構造物、配管の機械的な損傷・変形状況を把握する必要がある。特に配管やRPVペデスタル等のコンクリートの汚染機構について原理的な理解に裏付けられた評価手法の確立が望まれる。



炉内・建屋内の汚染状況の把握 (解体のための)

[課題-ニーズ番号:解体-101]

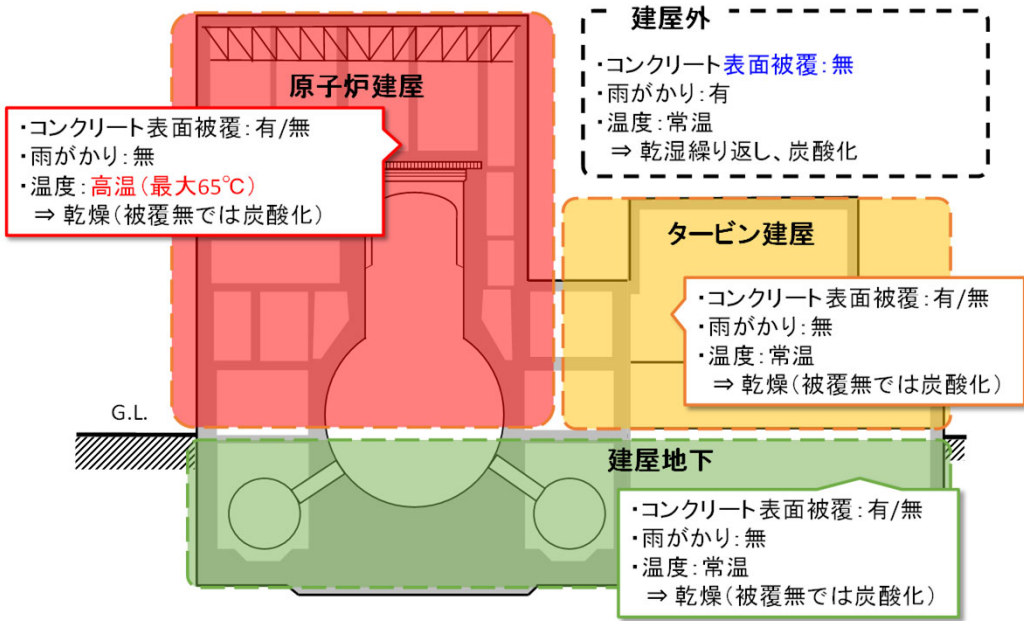
- 効果的・効率的な除染を行うためには、建屋の大部分を構成するコンクリートの汚染機構の原理的な理解、コンクリート内汚染物の化学的状態把握に裏付けられた評価手法の確立が望まれる。
- 解体時におけるコンクリートおよび構造物からの汚染物の剥離、分離、再拡散挙動を把握していることが望ましい。



大量の発生が見込まれるコンクリート廃棄物の処理・処分方法を検討する上でもコンクリートの汚染機構の原理的な理解は極めて重要

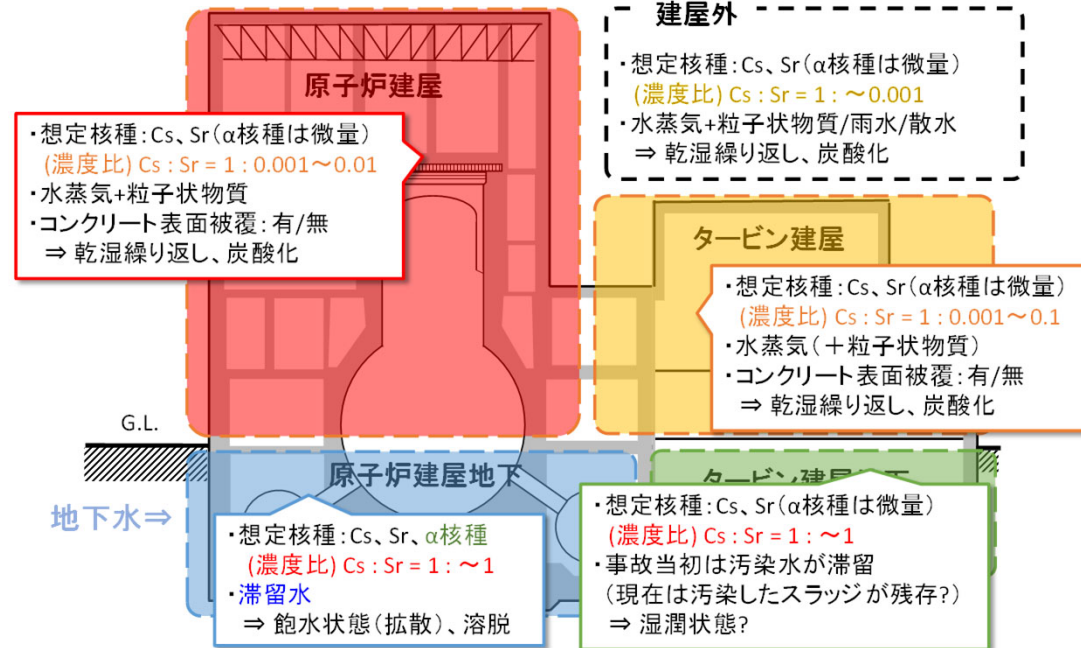
背景 建屋の履歴と現状を考慮した汚染状態

事故前環境



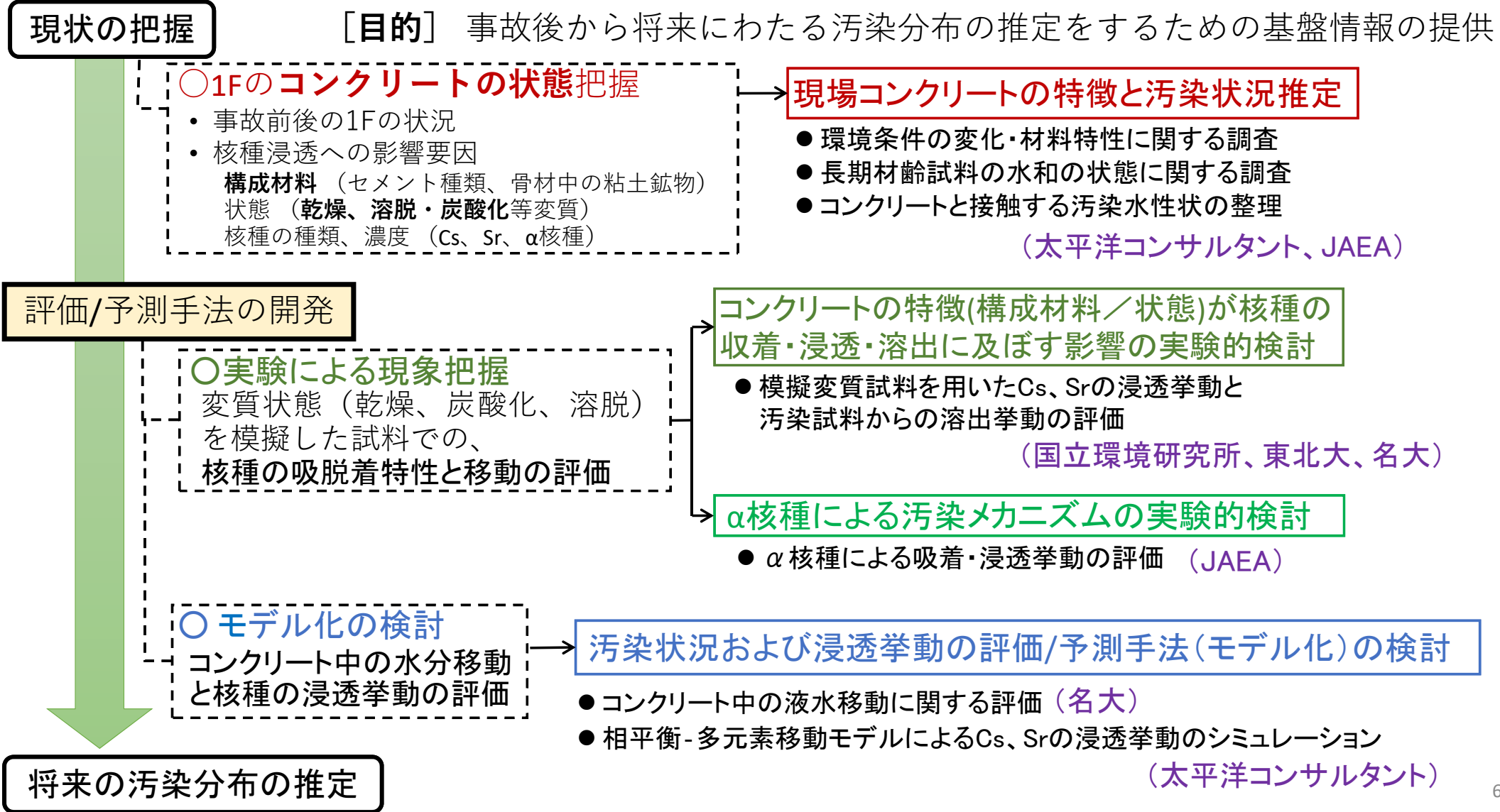
- ✓ 部位によって**コンクリートの環境条件**が異なる
 - 表面被覆材の有無 (炭酸化)
 - 雨がかり (乾湿繰り返し) の有無
 - ひび割れ (乾燥収縮、温度応力、地震) の有無

事故後環境



- ✓ 事故後の建屋内には**複数の放射性核種が存在** (Cs、Sr、 α 核種等)
- ✓ コンクリートの部材によって**放射性核種との接触状態**が異なり、核種の**分布や浸透状況も異なる** (濃度比、飽水 or 乾湿繰り返し)
- ✓ 地震によって構造的な影響を受けたコンクリート部材もあり

本研究の実施内容



現場コンクリートの特徴と汚染状況推定

現場コンクリートの調査

文献情報に基づき当時の採石地を調査し、サンプリング



緑色欄：採石場所をほぼ特定できた産地

赤字：試験体作製に用いる骨材として取得 青字：少量取得（参考情報）

号炉	セメント	粗骨材	粗骨材産地	細骨材	細骨材産地
1	普通	川砂利	福島県新田川	川砂	宮城県阿武隈川
		砕石	福島県富岡町滝川		
2	フライアッシュB種	川砂利	福島県新田川	川砂	福島県新田川
		砕石	福島県富岡町滝川		
3	フライアッシュB種	川砂利	福島県新田川	川砂	福島県新田川
		砕石	福島県富岡町滝川		
4	フライアッシュB種	川砂利	福島県新田川	川砂	福島県新田川
		山砂利	福島県小久・折木		
5	普通	山砂利	福島県富岡町滝川	川砂	福島県新田川
		川砂利	福島県新田川		
6	普通	山砂利	福島県富岡町滝川	川砂	宮城県阿武隈川
		川砂利	福島県新田川		
6	フライアッシュB種	山砂利	福島県小久・折木	川砂	福島県新田川
		山砂利	福島県小久・折木		

<試験片作製>

調査結果に基づき、使用材料（セメント/骨材）、配合比、変質状態（乾燥/炭酸化/溶脱）を模擬したモルタル試料を作製

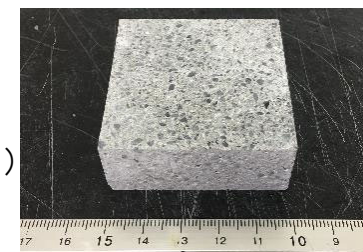
・セメント種類：OPC、FAC (B種)

・骨材種類：石灰石(洗浄)

川砂(粘土鉱物、現場骨材想定)

・配合比：(水セメント比)0.55

(砂セメント比)2.49

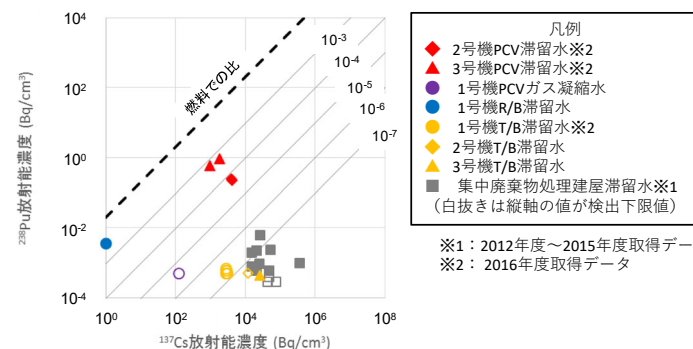


<コンクリートと接触する汚染水性状の整理>

原子炉建屋等の滞留水に関する分析データを調査

→ 調査結果に基づき、浸漬試験/境界条件を設定

<滞留水中のPu核種の分析データの例*2>

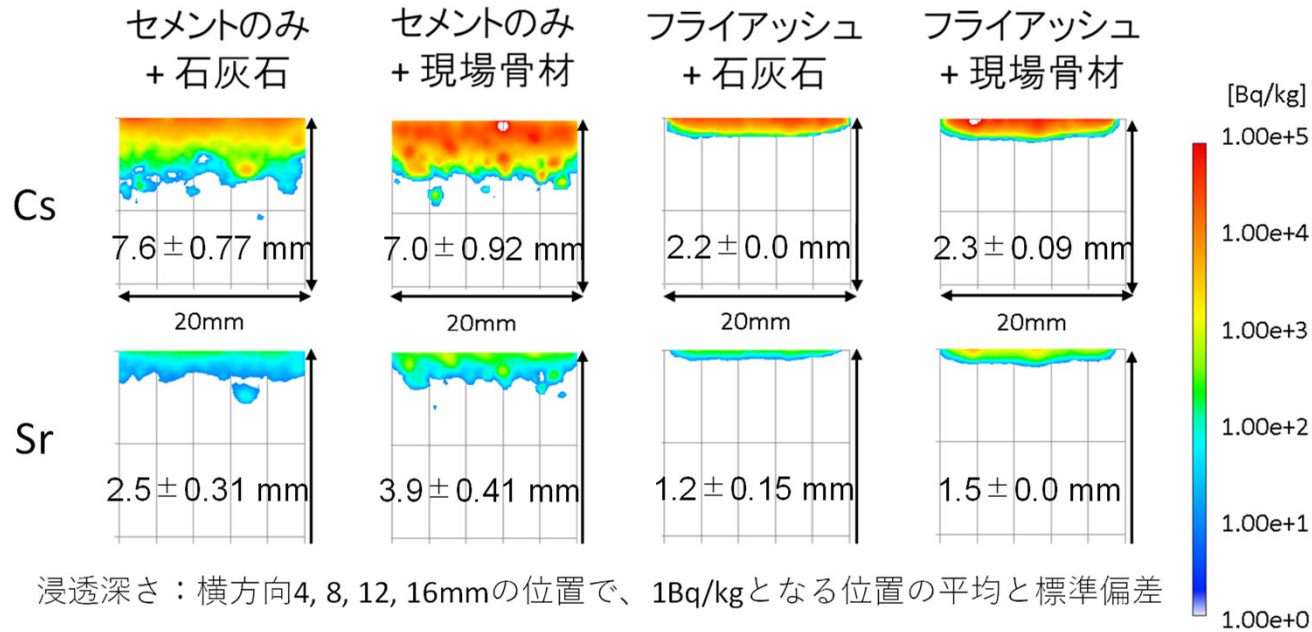


*1 「平成26年度高経年化技術評価高度化事業（コンクリート構造物の長期健全性評価に係る調査研究）」成果報告書、pp.4-207-211（2015.3）

*2 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議（第44回）,資料3-4,平成29年7月28日.

コンクリートの特徴(構成材料/状態)が核種の収着・浸透・溶出に及ぼす影響の実験的検討

現実的な濃度でのCsとSrの浸透挙動 <イメージングプレートによるRI浸透分布評価>

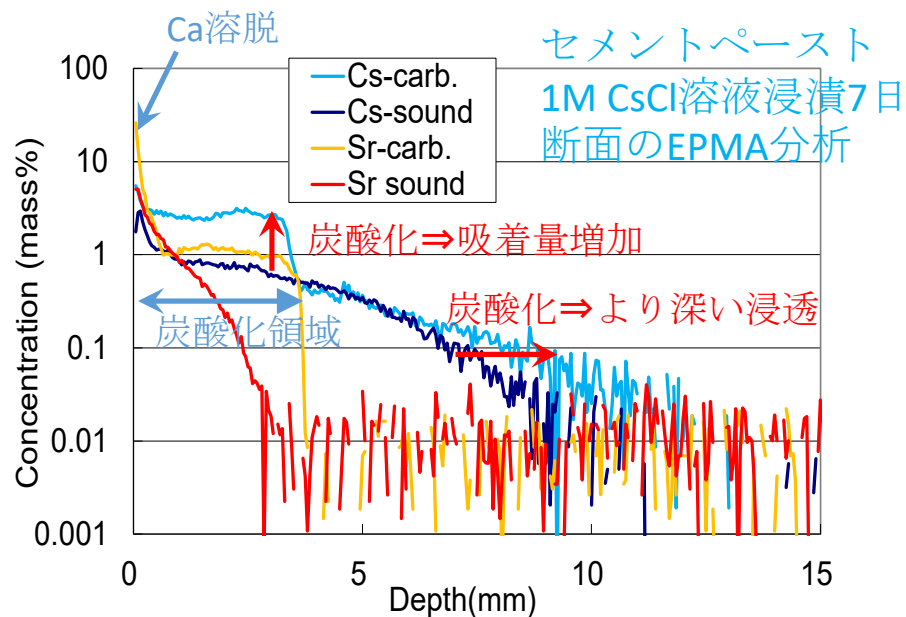


- CsClとSrCl₂の混合溶液に53日間浸漬
- CsCl: 25 μM (33 ppm), ¹³⁷Cs-667 Bq/mL.
- SrCl₂: 90 μM (8 ppm), ⁹⁰Sr- 222 Bq/mL.
- 放射能濃度既知の標準試料とともにイメージングプレート上に暴露した、オートラジオグラフィ

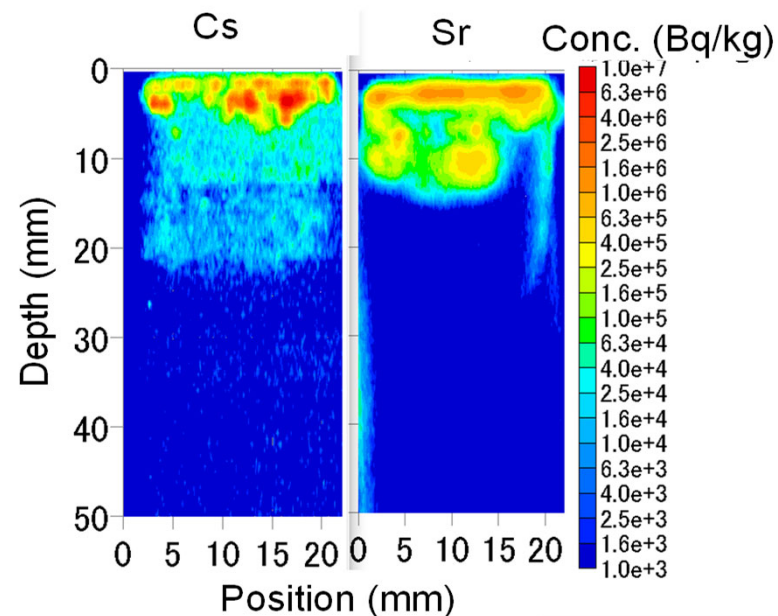
- コンクリートのような多孔体中の物質移動予測には、イオン移動を、固相による吸着を伴う拡散現象とみなす。
- この予測には、コンクリートの実効拡散係数と評価イオンの吸着挙動を実験的に決める必要がある。
- 材料効果として、セメント種類と粘土量が違う骨材種類を取り上げた。
- 浸透深さ：Cs>Sr, 普通セメント>フライアッシュセメント, 粘土影響なし。
- 別の実験によると、CsとSrの浸透に関する共存効果は認められていない。

コンクリートの特徴(構成材料/状態)が核種の収着・浸透・溶出に及ぼす影響の実験的検討

乾燥炭酸化試料へのCsとSrの浸透



Haga et al., 2019



乾燥炭酸化試料の真空吸水(17時間)
濃度10 μ M

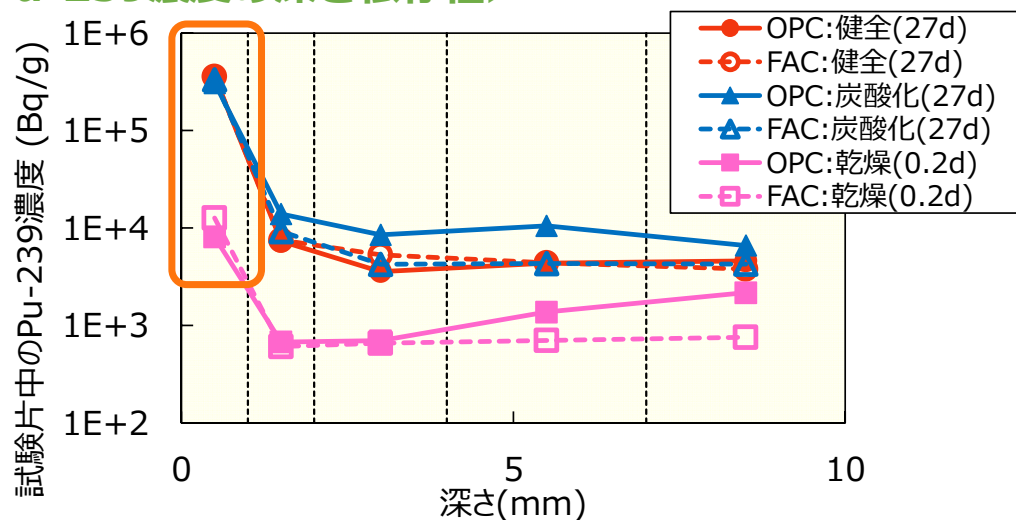
- セメントペーストの濃厚溶液への浸漬試験では、炭酸化とCa溶脱により、CsとSrの吸着量はそれぞれ1桁程度増加する。浸透深さは、炭酸化深さ分、大きくなる。
- 乾燥炭酸化モルタルを真空吸水させると、17時間のうちに、Csは20mm、Srも10mm程度の浸透を示した。ただし、高濃度領域は表面部分に限定される。

α核種による汚染メカニズムの実験的検討

セメント硬化体へのα核種の浸透に関する検討

コンクリートに浸透するα核種の深さを評価するため、変質を考慮したセメント試験片の浸漬を実施

<Pu-239濃度の深さ依存性>

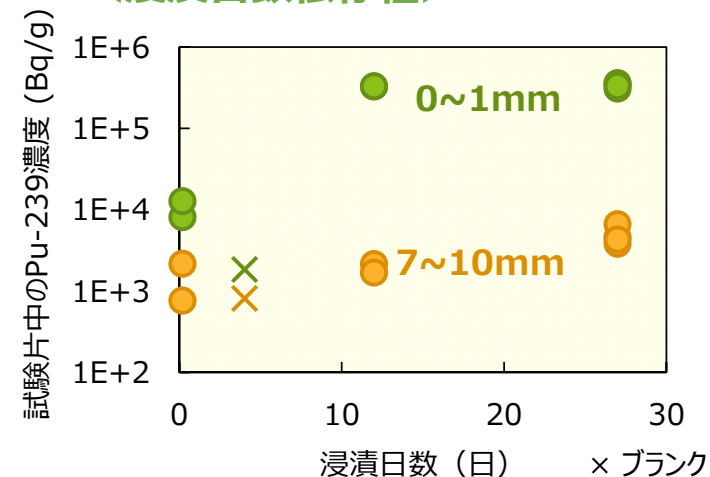


表層0~1mmも浸漬日数に依存

- ✓ 浸漬期間が同じOPC/FACと健全/炭酸化に差はない
セメント組成や表層pHの影響がない
- ✓ 乾燥条件でも挙動は同じ
吸水による内部への浸透の効果は見られない

セメント種・変質状態によらず、Puは表層(1mm以内)に留まる

<浸漬日数依存性>



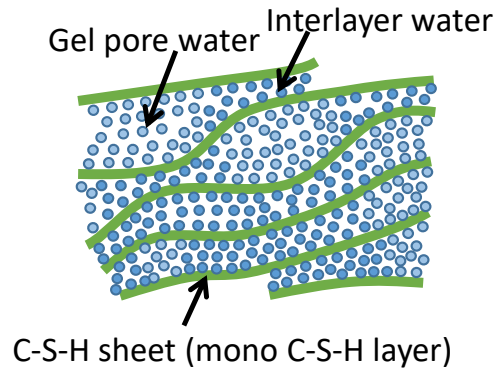
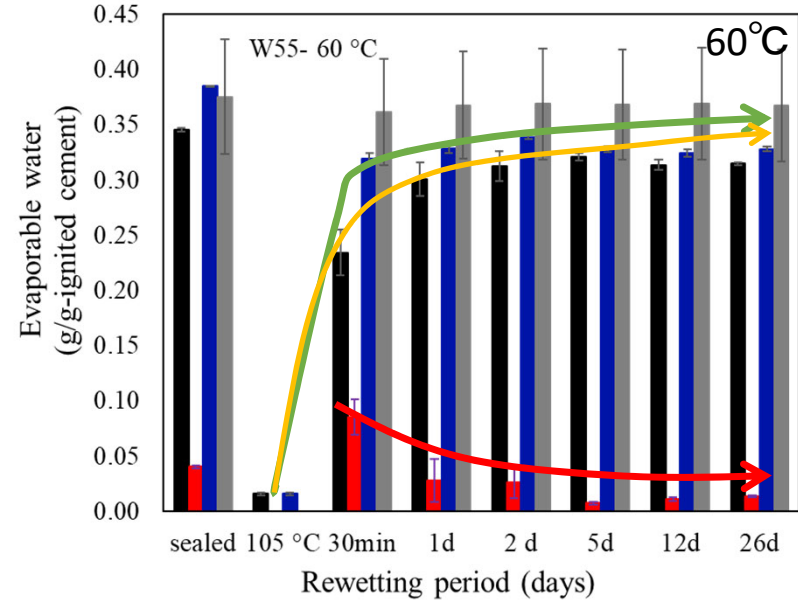
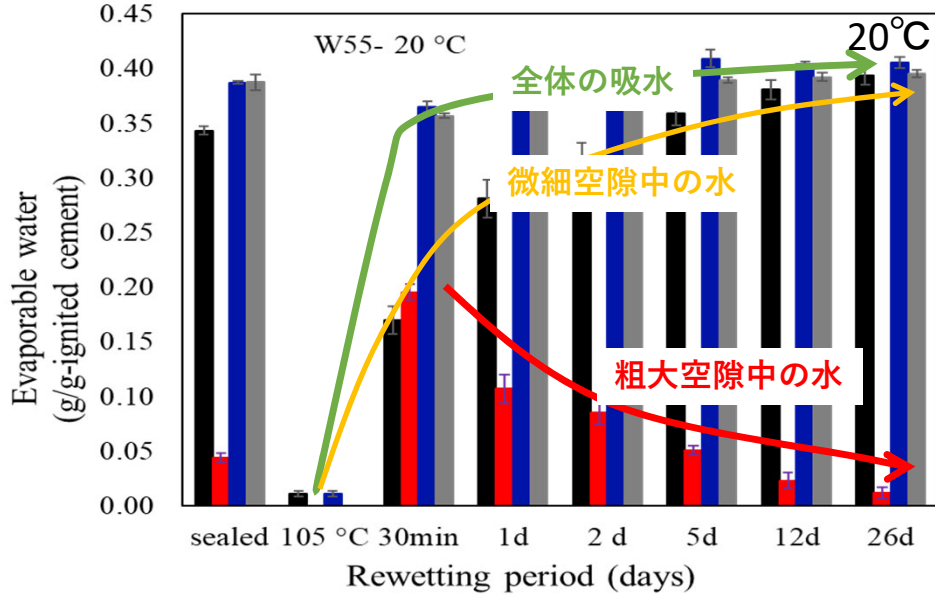
- ✓ 表層のPu収着量が飽和
12日と27日で変化なし

建屋コンクリートの表面積から
Pu収着の最大量を見積もることが可能

汚染状況および浸透挙動の評価/予測手法（モデル化）の検討

コンクリート中の液水移動に関する検討

乾燥コンクリートへの水の浸透と、吸水によるコンクリートの特性変化の評価

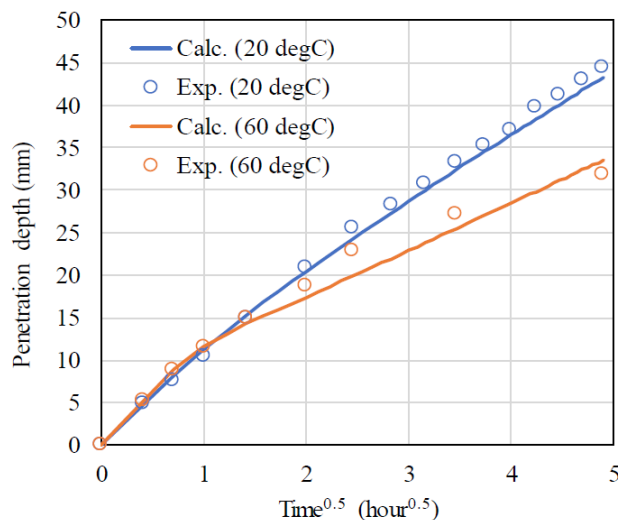
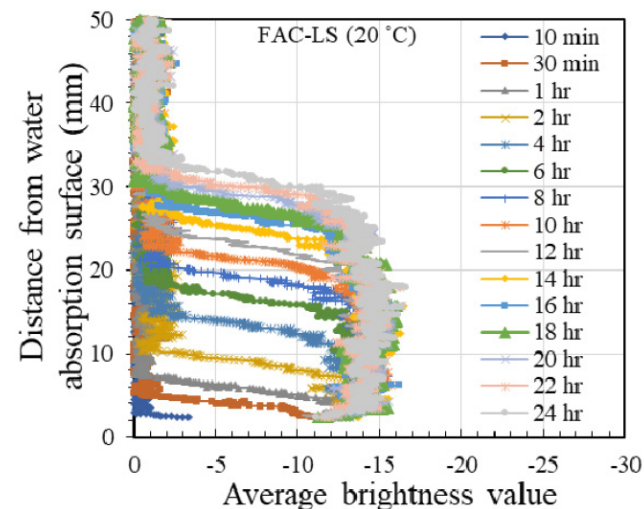
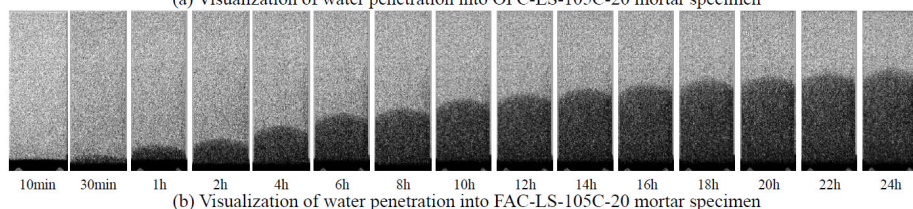
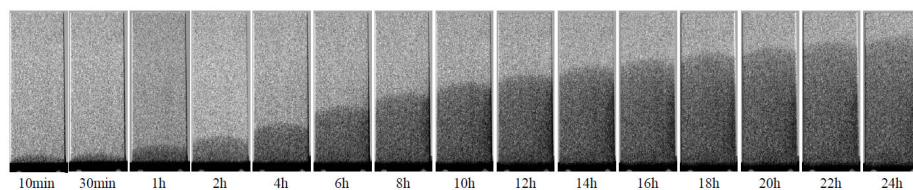


- 大きな空隙から吸水された水分が微細構造(ゲル空隙、層間空隙)に再配分される傾向がある。
- 温度が高い方がC-S-Hのゲルが吸水する速度が速い。
- ゲルの膨潤による毛管空隙量の減少が生じており、空隙径の減少、連続性の減少が吸水後に生じるため、長期的な吸水挙動速度が低下する。

汚染状況および浸透挙動の評価/予測手法（モデル化）の検討

コンクリート中の液水移動に関する検討

乾燥コンクリートへの水の浸透と、吸水によるコンクリートの特性変化の評価

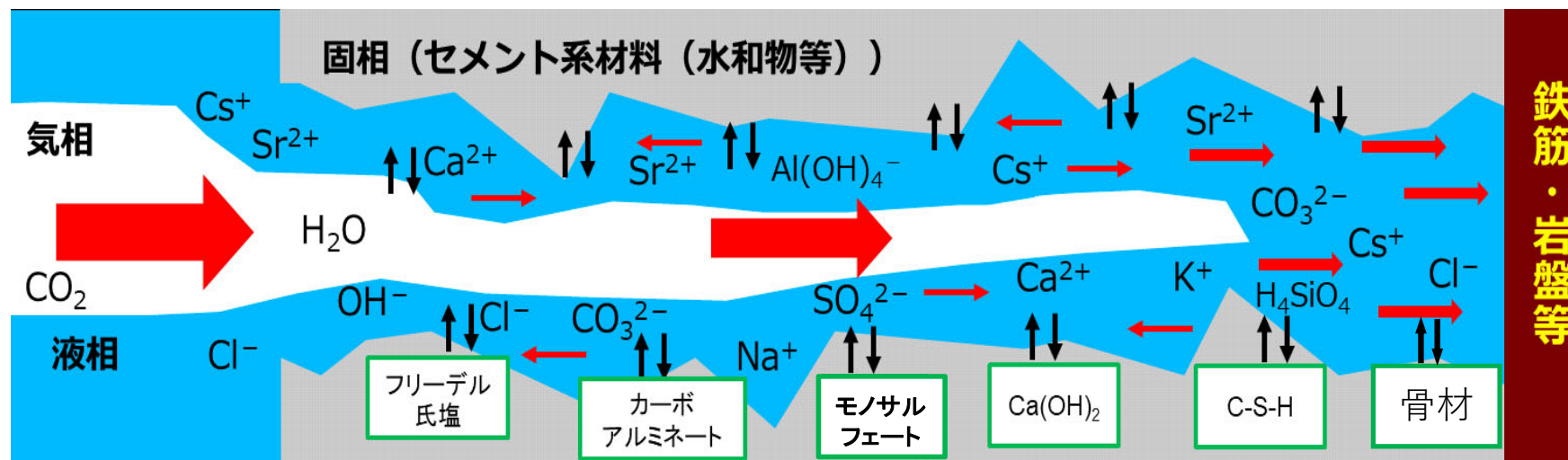


- 温度によって吸収速度の変化速度が大きくなる
- 空隙構造変化の温度依存性を考慮することで説明が可能
- 含水率と（変化する）空隙構造に依存する水分移動を考慮した水分移動モデルによって浸透深さを評価可能
- 工学的には十分時間がたったのちに空隙構造が安定したのちの水分移動を考慮すれば、予測には十分役に立つ。

汚染状況および浸透挙動の評価/予測手法（モデル化）の検討

1F建屋コンクリートのCs、Sr浸透計算

<解析手法の概要>



■ 多元素移動計算 (Poisson-Nernst-Planck equation)

- 元素の移動は、濃度勾配と電位勾配を組み合わせた流速を表すPoisson-Nernst-Planck方程式を有限要素法 (FEM) で解く

■ 相平衡計算(熱力学)

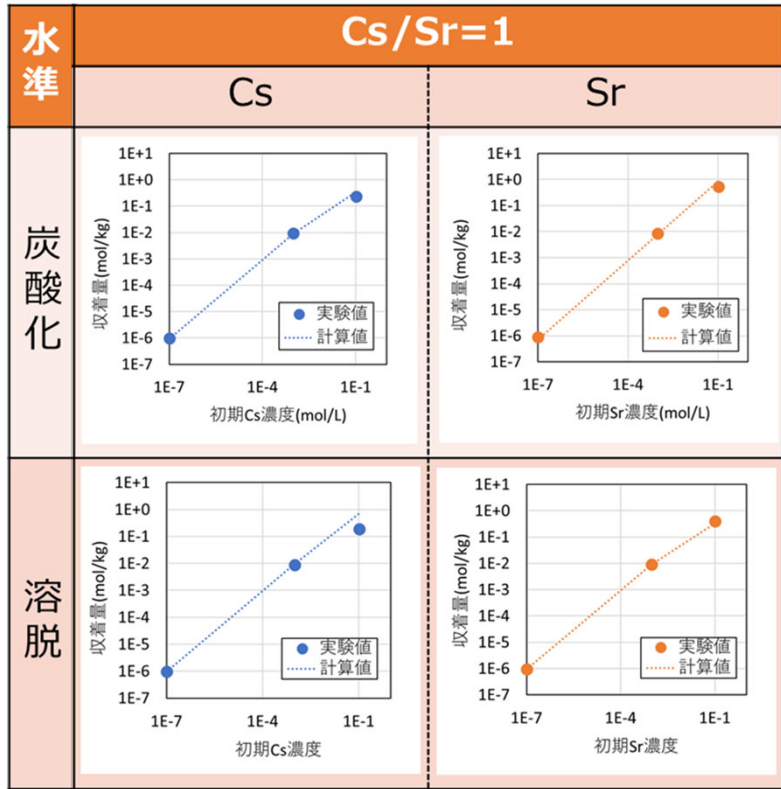
- 相平衡計算にはPHREEQCを使用
- C-S-Hの構造を考慮できるNonatモデル※をPHREEQCに実装
- C-S-H、骨材へのCs, Sr, Na, Kの収着モデルを実装

※A.Nonat : The structure and stoichiometry of C-S-H, Cement and Concrete research, 34, pp. 1521-1528(2004)

汚染状況および浸透挙動の評価/予測手法（モデル化）の検討

1F建屋コンクリートのCs、Sr浸透計算

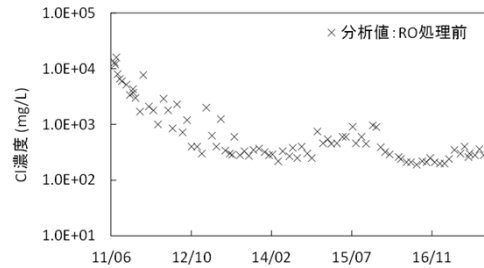
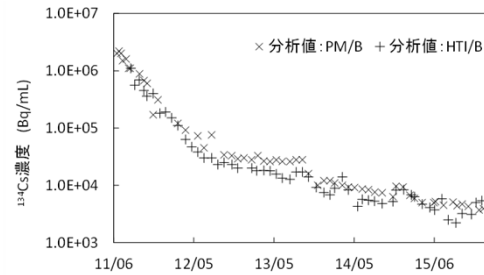
<変質OPCの吸着試験の評価(実験値vs計算値)>



<汚染水性状の調査結果に基づいた接触水組成変化の設定>

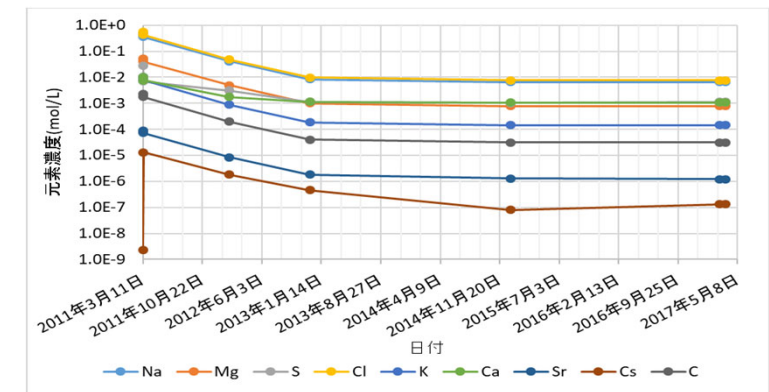
解析に使用した境界条件の分類

- [i] 海水
- [ii] 高濃度汚染水
- [iii] 汚染水濃度が低下
- [iv] 低濃度で一定



建屋滞留水中の¹³⁴Cs, Cl濃度推移(FRAnDLi)

境界条件名	解析対象期間	
	年月日*	2011年3月11日起点の経過日数
[i] 海水	2011.3.11	
[ii] 汚染水（高濃度）	2011.3.12	1
[iii]-1 汚染水（除去設備等の運用により濃度減少）	2012.2.1	326
[iii]-2 汚染水（濃度減少継続中の中間時点）	2012.12.1	629
[iii]-3 汚染水（放射性核種以外は地下水組成となる時点）	2015.1.1	1389
[iv] 汚染水（すべての元素が低濃度で一定となる時点）	2017.3.1~ 2017.3.24	2178~ 2201

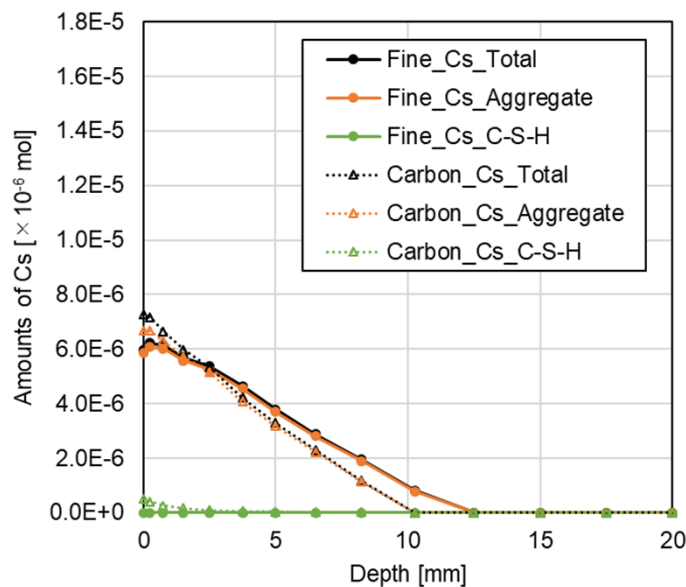


汚染状況および浸透挙動の評価/予測手法（モデル化）の検討

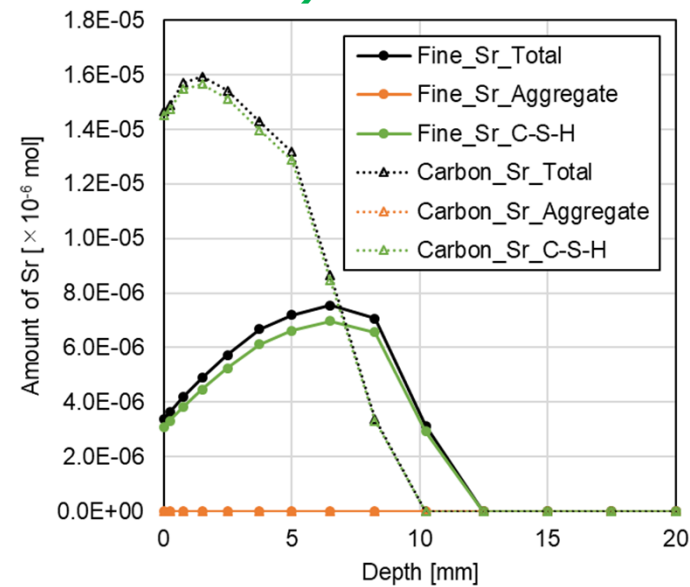
1F建屋コンクリートのCs、Sr浸透計算

- 塗膜の有無で炭酸化の有無が異なることが想定される
→炭酸化していない条件でも計算

オレンジ：骨材に収着 緑：C-S-H(セメントペースト)に収着 黒：全量



Csの浸透プロファイル



Srの浸透プロファイル

- 炭酸化していないコンクリートのほうが若干内部まで浸透。炭酸化部分への収着により、浸透が抑えられた
- Csは骨材への収着が、SrはC-S-Hへの収着が支配的
- 約10mm程度しかCs、Srともに浸透していなかった

今後の展望

本報告での取り組み

(H29～R1年度英知事業)

基礎的な知見・基礎データ集積



次フェーズからの取り組み (R2年度～)

実際の鉄筋コンクリート部材の状態を考慮した放射性核種の長期的な浸透・溶出挙動の解明

実機変質履歴を考慮した
コンクリート部材の
汚染状況の推定情報

研究の全体像

<状態設定>

材料

- ・セメント種類
- ・骨材(粘土影響)
- ・鉄筋
- ・塗膜材(エポキシ)

各鉄筋コンクリート部材(状態)

- ・ひび割れ
 - (目に見えない)微細乾燥ひびわれ
 - 乾燥収縮/温度応力ひび割れ
 - 地震荷重/爆発
 - 事故後熱勾配
- ・表面状態
 - エポキシ塗装、中性化
- ・飽水度
 - 事故前乾燥 + 事故後湿潤 & 乾燥

事故前環境

- ・構造部材位置
- ・中性化
- ・乾燥

事故後環境

- ・汚染物質濃度(^{137}Cs , ^{90}Sr , α)
- ・水(海水, 循環水, 地下水, 降雨)
- ・乾燥

<表記注釈>

斜字 :H29-R1年度

下線 :R2年度～

斜字+下線:H29-R1年度は基礎, R2年度～応用

<浸透挙動の数値解析>

長期的浸透予測

- ・相平衡物質移動
 - (収着・多元素相互作用)
- ・非定常水分移動
- ・ひび割れ影響

<廃棄物の状態推定>

汚染状況推定

部材別 汚染濃度別
定量的物量予測

<収着・浸透の実験的評価>

基礎データ: 収着・浸透試験 & 分析方法

検証 (可能であれば実コンクリート)・補正

まとめ

総括

- 飽水試料への Cs の浸透挙動は、普通セメントよりもフライアッシュセメントを用いた条件、炭酸化させた条件、骨材中の粘土鉱物が含まれる条件において浸透深さが低下することが確認された。
- 飽水試料への Sr の浸透挙動は、普通セメントよりもフライアッシュセメントを用いた条件、炭酸化させない条件において浸透深さが低下したが、骨材中の粘土鉱物の影響は小さかった。
- Cs は Sr よりも数倍程度浸透することが確認された。
- 乾燥炭酸化試料へは、Cs、Sr とも飽水試料よりも内部へ浸透した。
- Pu については、セメントの種類、変質状態によらず析出して移動しにくい状態となり、表層に集中していると考えられた。
- 水の浸透挙動は、吸水初期はセメントペースト中の C-S-H の空隙構造変化が大きく影響すること、その後は t 則に従う。
- 収着モデルを実装した浸透挙動予測モデルによって汚染水に接していた対象コンクリートへの Cs および Sr 浸透の数値シミュレーションモデルを構築した。

今後の展望

令和 2 年度英知事業 課題解決型廃炉研究プログラム（一般研究）

「合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価」

- ひび割れを含んだより現実に近いスケールでの試験の実施
- 放射性核種の浸透挙動の数値モデルの高度化
- 数値シミュレーションを用いた建屋スケールでの将来予測システムの構築

以下、補足

革新性・独創性・新規性

理論的アプローチによるコンクリート部材の状態設定

- 事故時/事故後に種々の作用を受けたコンクリート部材における、ひび割れ量・幅・分布・深さをメソスケール概念を適用し、**力学的に評価**
- コンクリート、モルタル、セメントペートの体積変化・剛性・強度に関するデータベースを実験により構築
- 解析手法にはRBSMを使用

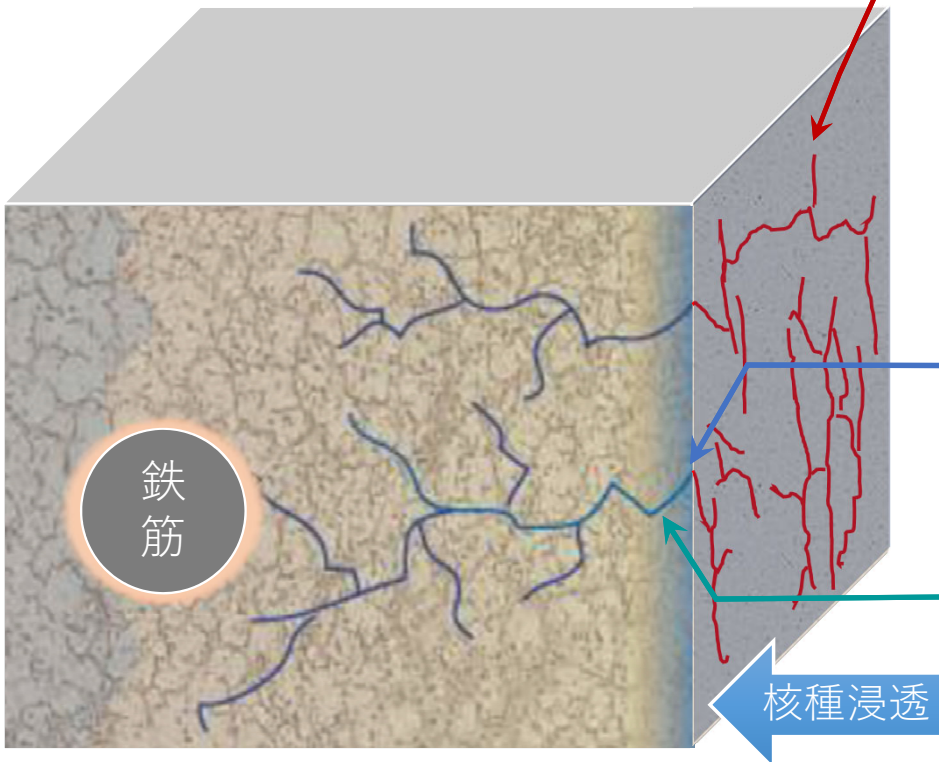
ひび割れの状態/環境条件を想定した核種の浸透挙動の実験的検証と数値解析モデル化

- ひび割れのあるモルタル、コンクリート試験体への浸透評価
- 材料影響を考慮した低濃度領域での ^{137}Cs と ^{90}Sr の競合浸透の評価

α 核種とコンクリートの相互作用の評価

- 長期間の汚染水の滞留、ひび割れた状態を模擬した試験体への α 核種の収着・浸透試験

<コンクリート部材断面の模式図>



背景 放射性核種の浸透に及ぼす影響要因

実部材サイズにおけるひび割れ解析の事例

ひび割れ部の汚染分布・イオン浸透の解析事例

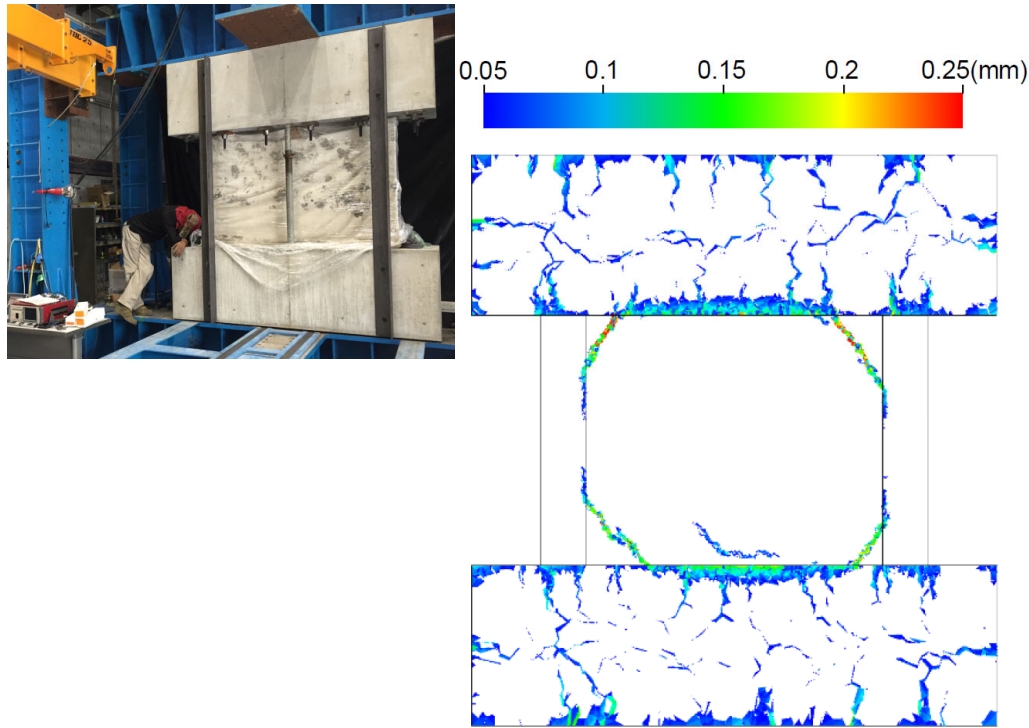
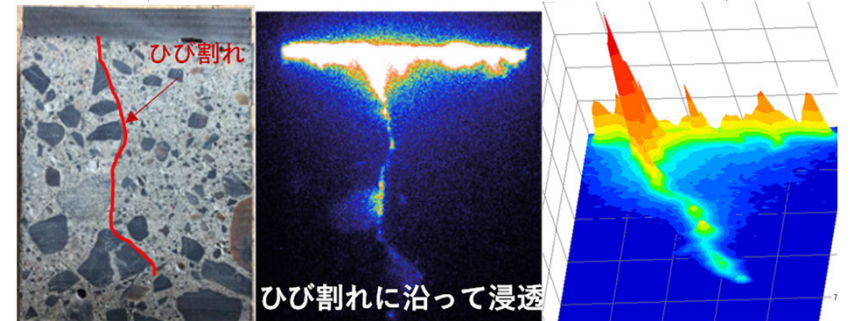


Fig. 4.21 Analytical result of the cracks induced by drying shrinkage.

経年変化に伴い、構造的には問題なくとも、**物質移動に影響を及ぼす微細なひび割れが部材表面には生じる。**

< ひび割れたコンクリート中の汚染分布IP解析例 > (大熊町実環境コンクリート、コア径4cm)



< 鉄筋位置まで到達したひび割れ部へのイオンの浸透状況 > (EPMAによるCl面分析)

