

論文 低放射化コンクリート

田野崎 隆雄^{1*}・三浦 太一^{2*}・斎藤 究^{2*}・藤井 宏東^{3*}

要旨：コンクリートの放射化現象に関して、コンクリート構成材料の放射化原因成分の調査を行った結果、石灰石骨材は、Naなどの放射化原因成分の含有量が、非石灰石骨材に比べ非常に少ないことを確認した。石炭灰、高炉スラグなどで、長寿命核種を生むEuやCo等の元素の含有量が多い傾向も把握できた。加速器による放射化試験を行った結果、²⁴Naの生成量の低減化により、コンクリートの放射化は、石灰石骨材の使用量に応じて低くなることを確認できた。またMg起源の²⁴Na生成量についても検討を行った。

キーワード：低放射化、コンクリート、石灰石、加速器、Na, Mg, Eu, Co, ²⁴Na

1. はじめに

中性子線、 γ 線、X線をはじめとする放射線を遮蔽する必要がある建設物、例えば、原子炉施設、加速器施設、ウラン処理施設、アイソトープ貯蔵施設、医療用照射室などでは、管理区域外に放射線を漏洩しないように、「遮蔽コンクリート」が多用される¹⁾。しかしながら原子炉施設や加速器施設においては、遮蔽コンクリートは、主として中性子により放射化する。このコンクリートの「放射化」は、メンテナンス時における作業者の被ばくや廃棄時における放射性廃棄物処分の問題を引き起こす。これら問題への対策は、基本的にコンクリート中に生成する放射性核種の生成量を低く抑えることや、減衰を待つしかないため、核反応を起こさないようにする事前対策が特に重要である。そこでこの事前対策を、報告者らは放射化を低く抑えるための「低放射化」と呼ぶ。「低放射化」の用語の使用は、使用者によって異なることが予想されるが、ニーズの多いのは以下の2点である

A メンテナンス時の作業者の被ばく対策：原子

炉や加速器施設のメンテナンス時における被ばくの主要原因は、遮蔽コンクリート中に熱中性子により生成する短寿命核種(²⁴Na)からの γ 線が主要原因であるので²⁾、²⁴Naの生成量の低減化を求める。

B 放射性廃棄物の発生量を少なくする：原子炉や加速器施設の遮蔽コンクリート中に生成する主な長寿命核種は、³H, ²²Na, ¹⁵²Eu, ⁶⁰Co等である。これらの核種の内施設解体時に最も問題となる¹⁵²Euの生成量の低減化を求める。

これらの問題点の内放射性廃棄物に関しては、実験炉を利用した生成プロセスの研究が多くなされてきた。そしてコンクリートの「低放射化」に、石灰石骨材の使用が有効であることが報告されている³⁾。

一方、加速器の遮蔽用コンクリートの放射化は、熱中性子のみではなく、高速中性子にも起因するため、包括的な検討が必要である。これまで加速器用コンクリートの検討は、CERN (1971)による石灰石骨材を用いた加速器用コンクリートの低放射化の確認⁴⁾、Gilbert et al.(1969)

1* 太平洋セメント(株) 中央研究所セメント技術グループ 理修 (正会員)

2* 高エネルギー加速器研究機構 放射線科学センター 理博

3* 太平洋セメント(株) 中央研究所コンクリートソリューショングループ 工修

による6.2GeV加速器の照射実験から、 ^{24}Na を生成する元素割合の推定⁵⁾、Miura et al(2000)による高エネ研12GeV陽子加速器施設遮蔽コンクリート壁中に生成した14種の核種の分析⁶⁾などの報告が行われてきた。しかしどのような元素を、どの程度制御すれば、どの程度の「低放射化」が図れるかなどの検討は行われていなかった。

そこで報告者らは、加速器の遮蔽用コンクリートの「低放射化」のため、系統的なコンクリート構成材料の放射化原因成分の調査、並びに加速器による放射化現象の調査試験を行ったので報告する。

2. 試料

2.1 コンクリート材料の成分調査

試料は、日本国内で JIS 規格により製造されたセメント（普通，中庸熱，低熱，高炉 B 種），混和材料（高炉スラグ微粉末，石炭灰フライアッシュ，シリカフューム，石灰石粉末），及び普通骨材（各 30Lot 以上）である。なお採集にあたり、試料の産地代表性は考慮していない。

2.2 加速器照射試験

上記 2.1 より選択されたセメント 3 種，骨材 15 種，及びこれらを材料とするコンクリート 3 種である。

コンクリートは材齢 7 日で脱型し，21 日間 20°C で気乾養生したものを粉砕し，均質化したものを試料とした。表—1 にコンクリートの配合および 28 日材齢の物性を示す。

3. 調査，並びに試験の内容

3.1 コンクリート構成材料の成分調査

表—1 評価したコンクリートの配合 (kg/m³) 及び物性

	水セメント比(%)	W:水	C:セメント	S:細骨材	G:粗骨材	(C×%)	スランプ(cm)	空気量(%)	単位容積質量(kg/m ³)	圧縮強度(N/mm ²)
I	55	155	282(L)	841(川砂)	1011(非石灰石)	1.4	7	4.3	2.27	19.4
II	55	160	291(L)	841(石灰石)	1011(非石灰石)	1.4	7	3.7	2.30	20.3
III	55	160	290(L)	841(石灰石)	1018(石灰石)	1.4	7	3.9	2.31	20.4

L:低熱ポルトランドセメント

調査対象は、 ^{24}Na の親元素である Na, Mg, Al, Si (ただし定量結果は酸化物の形態で示す)，並びに ^{152}Eu と ^{60}Co の親元素である Eu と Co の含有量である。

成分調査は、まず半定量（オーダー）分析を行った後、必要な成分について定量し、その分布を調べた。特に Eu と Co については、微量成分であるため、放射化分析を行った。

(1) 試料前準備

A 代表性，B 均一性，C 調査対象成分の汚染に十分に注意し，以下の手順で前処理を行った。縮分により 100 g 程度採取し，メノウ乳鉢で 100 μm 以下の粒度に粉砕した後，よく混合し評価試料とした。

(2) セメントと混和材の半定量分析

セメントと混合材（フライアッシュ，スラグ）が含有する元素のオーダーを確認するため，ICP-MASS により質量分析を行った。検液は，セメント協会法に従って前処理（酸アルカリ抽出）したものを使用した。

(3) 骨材の成分調査

粉末試料の強熱減量 (975°C) を測定すると共に，蛍光 X 線分析で迅速定量分析を行った。定量は，原子吸光度分析をもとに得られた Si, Na, Mg, Al, Ca 成分の，標準試料を同時に測定し補正することにより行った。

(4) コンクリート材料の Eu と Co の成分調査
乾燥させた試料 0.2g を，日本原子力研究所の JRR4 原子炉を用い放射化分析を行った。熱中性子照射（束密度 4.7113×10^{13} (n/cm²·sec) は，照射時間を 20 (min) し，短時間 (5 日) 冷却・長時間 (61 日) 冷却の後， γ 線スペクトロメー

ターを用い、得られた計数值と、試料と同時に照射した標準物質の計測値から、試料中の分析対象元素の濃度を算出した。

3.2 加速器による中性子線照射実験

高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 12GeV 陽子加速器, EP1, EP2 ビームライン室のターゲット側方 2m の場所に粉末試料 40~50 g を置き、2 次中性子で放射化させた。短時間照射 (5 日)、長時間照射 (50 日) を行った。生成した各核種のうち ^7Be , ^{22}Na , ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{59}Fe , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{134}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu を Ge 半導体検出器で測定した。試料毎の照射した中性子束の差は、金箔とアルミニウムを同時照射し、生成した ^{198}Au と ^{22}Na の放射能濃度の比から確認した。なお金箔から計算した熱中性子束は 1×10^7 (n/cm²・sec), アルミニウムから計算した速中性子束は 1×10^5 (n/cm²・sec) 相当であった。

また NaHCO₃, MgO および Al₂O₃ 試薬を同様に照射試験し、これら成分の ^{24}Na 生成への影響度を調べた。

4. 結果および考察

4.1 セメントと混和材のオーダー分析結果

表-2 ICP-MASS 分析結果の一部

100mg/kg以上	Na, Mg, Al, Si, P, S, K, Ca, Ti, Mn, Cu, Zn, Sr, Ba
1-100mg/kg	V, Cr, Co, Ni, Ga, Ge, As, Rb, Y, Zr, Cd, Sn, La, Ce, Nd, Gd, Dy, Hf, Pb
1mg/kg以下	Sc, Pd, Ag, In, Cs, Eu, Tb, Au, Th, U,

表-2 に ICP-MASS 分析結果の一部を示す。

放射化に関与する成分のうち、Co は 10^{-6} , Eu は 10^{-7} のオーダーでの含有量であった。これらの微量成分は、通常セメントの品質管理等で行われている分析精度では検出できない濃度であり、定量の為には放射化分析等が必要であった。

4.2 骨材の成分調査結果

図-1 に普通骨材中の Na₂O, MgO, Al₂O₃,

SiO₂ の含有傾向と図-2 に Na₂O と MgO の分布を示す。図-1 から普通骨材のうち、石灰石骨材は、MgO 以外の成分の含有量が全体的に低く ^{24}Na 生成の抑制に有効な骨材であることが判る。ただし、図-2 に示されるように MgO については、含有量の高い骨材が存在することがわかる。石灰石骨材の MgO 含有量は、産地による変動が大きいためであり、一部ドロマイト、マグネサイトを夾雑するものも認められる。

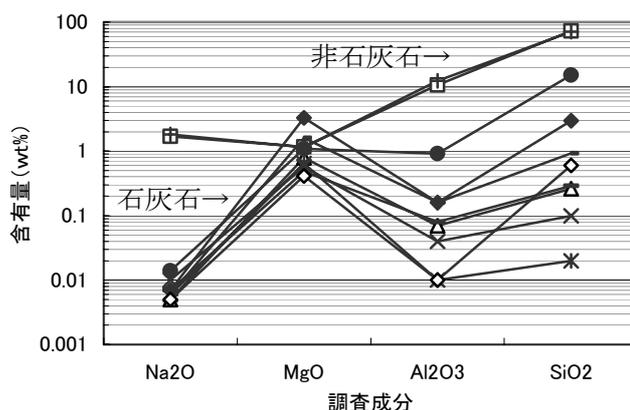


図-1 普通骨材の調査成分の含有傾向

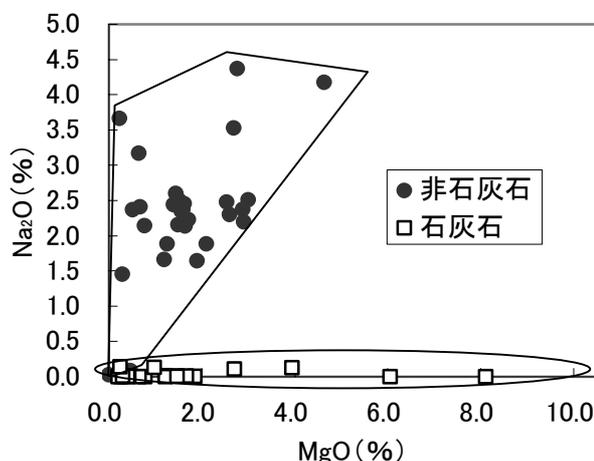


図-2 骨材中の Na, Mg 含有量

4.3 放射化分析結果

表-3 にセメントおよび混和材料の分析結果の一部を示す。Co 含有量においては特徴が掴めていないが、Eu 含有量においては、セメントに比べ、石炭灰フライアッシュ、高炉スラグは高く、これを利用した混合セメントの Eu 含有量も高くなっていた。対して石灰石粉末は、これ

らに比べ極めて低い Eu 含有量であった。Eu は珪酸塩の加熱処理に伴いフラックス側に濃集する成分であるため、石炭灰フライアッシュ中に Eu が多く含まれたことになったと考えられる (Si-Al 相平衡における Eu 濃度の上昇は地球化学における Eu 異常現象とされる) ⁷⁾。

ポルトランドセメントも製造に当たっては燃料に石炭を用いるため、0.3~0.8mg/kg 程度の Eu 含有は不可避と考えられる。混合セメントにあっては、混和材料に起因する Eu 濃度のため、高炉・フライアッシュセメントでポルトランドセメントよりも高い Eu 濃度となっている。

図-3 に各種骨材の Eu および Co 含有量測定結果を示すが、すべての石灰石骨材が非石灰石骨材に比べ極めて低い Eu 含有量であった。これは石灰石が火成岩でなく、生物起源であるためであり、火成岩の接触等により変成作用を受けない限り、その純度は保たれるものと考えられる。

石灰石は日本において自給できる数少ない天然資源であり、Ca 純度の極めて高い石灰石を各地に産する (図-4 参照)。また JIS 適合骨材も既に大量に供給され、日本では石灰石を骨材に用いたコンクリートの実績が多くある ⁸⁾。この石灰石コンクリートで長寿命の ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu 核種の生成が少なくなり、施設廃棄時の放射性廃棄物発生量を少なくすることが期待できる。

4.4 加速器照射実験結果

12GeV 加速器による照射試験した試料の成分の例を表-4 に、放射能濃度の経時変化 (高炉セメント) 結果例を表-5 に、各照射試料の ²⁴Na の放射能濃度を図-5 に示す。

表-5 の高炉セメントを例にすると、照射停止直後に多く存在した ⁵⁶Mn (半減期 2.6 時間), ²⁴Na (半減期 15 時間) のような短寿命核種は、60 時間程度で大きく減衰している。しかし施設の解体廃棄時に残留すると考えられる ¹⁵²Eu (半減期 13.5 年), ⁶⁰Co (半減期 5.3 年) といった長寿命核種は 155 時間経過後もほとんど減衰し

表-3 セメントおよび混和材料の分析結果

(単位:mg/kg)

種類	Eu	Co
ポルトランドセメント		
普通	0.60	11.9
中庸熱	0.31	8.8
中庸熱	0.81	17.2
低熱	0.38	16.5
混合セメント		
高炉B種	1.65	6.3
フライアッシュB種	1.10	15.9
混合材料 (混和材)		
高炉スラグ	2.70	0.9
石炭灰フライアッシュ	2.60	28.1
シリカフェーム	1.47	1.7
石灰石粉末	0.08	0.1

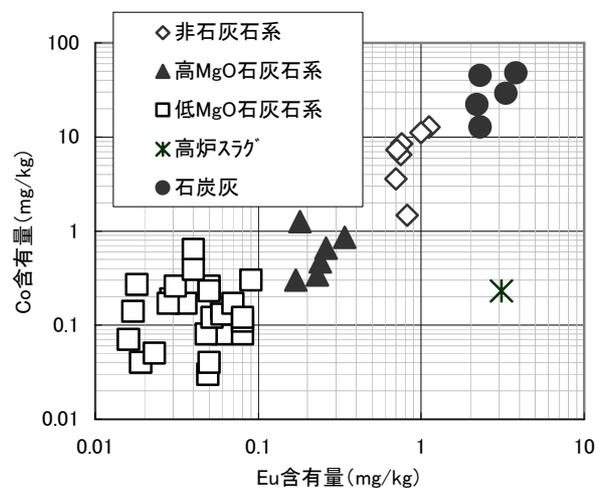


図-3 各種骨材の Eu および Co 含有量測定結果

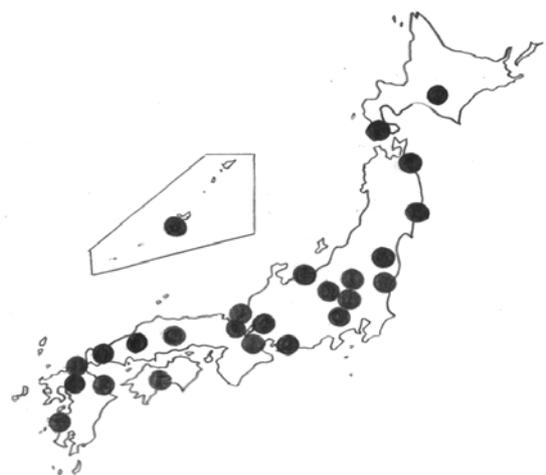


図-4 評価した石灰石試料の産地

ていない。これは濃度の差こそあれすべてのコンクリート構成材料で観察される傾向であった。

図-5 に示すように MgO 含有量約 42% のマグネサイトにあっても、川砂に比べ 1/10 の ²⁴Na

濃度であり、MgO含有量がこれよりも低い、ドロマイト及び石灰石骨材では、すべて1/10以下の²⁴Na生成濃度であった。セメントは種類に関わらず、非石灰石骨材よりも²⁴Na生成量が低く、石灰石骨材よりは²⁴Na生成量が高いものであった。この結果は、日本国内でのコンクリ

表-4 定量分析結果の一部(単位 wt%)

	石灰石A	石灰石B	石灰石C	ドロマイト	マグネサイト
ig.loss	43.5	43.2	44.1	46.8	49.5
SiO ₂	0.3	0.4	6.7	0.4	6.5
Al ₂ O ₃	0.1	0.1	0.7	0.1	0.1
Fe ₂ O ₃	0.0	0.1	0.5	0.1	0.4
CaO	54.4	55.4	42.4	34.9	1.4
MgO	1.5	0.5	4.9	17.4	41.5
SO ₃	0.00	0.03	0.00	0.02	0.00
Na ₂ O	0.01	0.01	0.00	0.00	0.03
K ₂ O	0.00	0.02	0.13	0.00	0.01
P ₂ O ₅	0.01	0.20	0.03	0.04	0.05

	砕石	川砂	砕砂	低熱セメント	高炉セメントB種
ig.loss	2.7	2.3	3.0	0.9	2.4
SiO ₂	69.6	72.2	60.3	27.1	26.4
Al ₂ O ₃	13.8	13.3	17.6	3.0	9.5
Fe ₂ O ₃	2.5	3.6	4.2	3.0	1.8
CaO	2.6	1.7	4.8	60.1	51.1
MgO	1.6	1.3	2.8	1.0	3.2
SO ₃	0.00	0.05	0.00	3.14	3.28
Na ₂ O	2.35	2.09	4.37	0.20	0.17
K ₂ O	3.92	2.53	1.91	0.28	0.55
P ₂ O ₅	0.10	0.07	0.12	0.07	0.12

	コンクリートI	コンクリートII	コンクリートIII
ig.loss	5.7	24.6	39.3
SiO ₂	61.4	32.8	3.9
Al ₂ O ₃	11.6	5.5	0.5
Fe ₂ O ₃	3.0	2.2	0.6
CaO	11.0	29.0	54.1
MgO	1.3	2.9	0.6
SO ₃	0.44	0.42	0.32
Na ₂ O	1.79	0.72	0.04
K ₂ O	2.77	1.07	0.04
P ₂ O ₅	0.08	0.05	0.38

ートの低放射化では、まず骨材の石灰石化を行うことが有効であると判断させるものである。

Gilbert(1969)によるとNa, Mg, Al, Siの各元素の単位質量当たりの²⁴Na生成比は(1)式の通りである。

$$\text{Na:Mg:Al:Si}=1:0.02:0.01:0.002 \text{---(1)}$$

この(1)式から、石灰石骨材は、そのNa₂O

含有量の低さに起因した²⁴Naの生成量の低さに大きく依存する³⁾が、高速中性子が影響する条件下では、MgO成分も²⁴Naの生成に寄与してることが懸念された。そのため高MgO含有量の石灰石の「低放射化」への適合性を検討し直す必要があった。そのため本試験の中で、MgOの影響についても検討を行った。

各成分の²⁴Naの生成への影響度を単位重量

表-5 高炉セメントの放射能濃度(単位 Bq/g)

	Be-7	Na-22	Na-24	Sc-46	Cr-51
5.5 時間後	14.3	1.37	100	13.4	6.31
26.5 時間後	14.1	1.37	39.0	13.3	6.12
60.5 時間後	13.9	1.37	7.91	13.2	3.99
155.0 時間後	13.2	1.37	0.10	12.9	3.41
	Mn-54	Mn-56	Fe-59	Co-58	Co-60
5.5 時間後	1.78	388	2.19	0.08	0.39
26.5 時間後	1.78	1.31	2.18	0.08	0.39
60.5 時間後	1.73	0.00	2.12	0.08	0.39
155.0 時間後	1.73	0.00	1.95	0.08	0.35
	Zn-65	Cs-134	Eu-152	Eu-154	
5.5 時間後	1.53	1.44	1.08	0.23	
26.5 時間後	1.53	1.44	1.08	0.23	
60.5 時間後	1.52	1.43	1.08	0.23	
155.0 時間後	1.50	1.43	1.08	0.23	

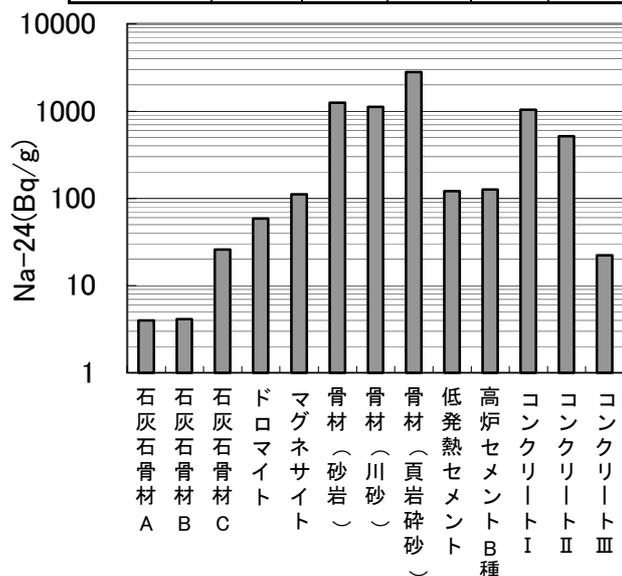


図-5 各照射試料における²⁴Naの放射能濃度

あたりの ^{24}Na 濃度比で評価すると以下の式になり、Gilbert(1969)の6.2GeV装置による照射結果(Na:Ma:Al=1:0.02:0.01)よりもMgの放射化への寄与度が低い結果を得た。

$$\text{Na}_2\text{O}:\text{MgO}:\text{Al}_2\text{O}_3 = 1 : 1/100 : 1/100 \quad (2)$$

表—6に(2)式を用い、石灰石骨材を使用したコンクリートの ^{24}Na 抑制効果を試算した結果を示す。MgOの寄与も認められるが、石灰石骨材を使用すれば、コンクリート中の ^{24}Na 生成比は、非石灰石骨材を使用した場合に比べて、1/15~1/45程度になるものと試算された。なお日本ではMgO含有量が10.5%を超えるものは、石灰石でなくドロマイトとしている⁸⁾。

表—6 試算結果： ^{24}Na の生成比

	使用骨材	成分含有量(kg/m ³)			^{24}Na 生成比(-)
		Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	
コンクリートI	非石灰石	42	29	266	1
コンクリートII	石灰石 (MgO 10.5%)	0.76	198	14	約 1/15
コンクリートIII	石灰石 (MgO 0.5%)	0.76	12	11	約 1/45

なお、分析法の精度の向上、品質ばらつき幅への対応、非粉砕コンクリート試料内における異方性、 ^3H (三重水素)の発生量の影響等把握しなくてはならない項目は残るものの、本評価において石灰石を多用したコンクリートが ^{24}Na 生成量の少ない「低放射化コンクリート」であることが示された。

5. まとめ

(1) 日本国内において、コンクリートの低放射化を検討する場合、まず骨材の石灰石化を行うことが、「低放射化」コンクリートの設計上で最も有効である。

(2) メンテナンス時における作業員の被ばくを少なくする効果を発揮するためには、Na, Mg含有量が少ないものを選択することが有利である。加速器照射実験からは石灰石では川砂の1/45程度の ^{24}Na 生成量だった。セメントは、非石灰石骨材よりも ^{24}Na 生成量が低く、石灰石骨材よりは ^{24}Na 生成量が高かった。

(3) 12GeV陽子加速器による中性子線照射実験結果での、各成分の ^{24}Na の生成への影響度は、単位質量あたりの ^{24}Na 濃度比で示すとNa₂O:MgO:Al₂O₃=1:1/100:1/100であった。

これはGilbert(1969)の6.2GeV装置による照射結果(Na:Ma:Al=1:0.02:0.01)よりもMgの放射化への寄与度が低い結果である。

(4) 放射線を受けるコンクリートの廃棄時における、放射性廃棄物発生量を低減するためには、EuとCoの含有量の少ない材料を選択することが必要である。それは「石灰石骨材などを選択すること」あるいは「高炉スラグ・石炭灰フライアッシュなどを使用しない」ことに繋がる。加速器施設や原子炉施設に用いられるコンクリートはマスコンクリートが多い。そこで本報告では、温度ひび割れを制御する面から、セメント選択にあたり高炉セメントやフライアッシュセメントではなく、「低熱ポルトランドセメント」を使用したコンクリートを評価している。

参考文献

- 1) 例えば、兵頭知典：放射線遮蔽入門，産業図書，pp.229-230,1966
- 2) 例えば、中村尚司：放射線物理と加速器安全の工学第二版，地人書館，p.509，2001
- 3) 例えば、金野正晴：熱中性子用低放射化コンクリート構造体の開発に関する研究，東北大学大学院博士学位論文，p.219，2001
- 4) CERN: Radiation Problems Encountered in the Design of Multi-GeV Research Facilities，CERN71-21，pp113-115，1971
- 5) Gilbert.W.S. et al.: Concrete Activation Experiment at the Bevatron，UCRL19，68UC41(Health & Safety), TID4500, 1969
- 6) Miura, T.et al.: Depth Profiles of Radionuclides Induced in Shielding Concrete of the 12 GeV Proton Accelerator Facility at KEK，Journal of Nuclear Sciences and Technology, pp183-183, 2000
- 7) <http://www3.justnet.ne.jp/~hagiya/reeuse.html>
- 8) 石灰石鉱業協会：石灰石の用途と特性,1986