

# 論文 放射性物質に汚染された塩分含有コンクリートがらの封じ込め要素実験

清宮 理<sup>\*1</sup>・内藤 英晴<sup>\*2</sup>・佐野 清史<sup>\*3</sup>・羽瀨 貴士<sup>\*4</sup>

要旨：東日本大震災の津波により，海水に曝された大量のコンクリートがらが発生し，その処理が苦慮されている。さらにその後の福島第一原発の水素爆発により，放射性物質が付着したコンクリートをより安全に処理する技術が望まれている。筆者らは，塩分を含み放射性物質に汚染されたコンクリートがらを，特に港湾区域において効率的に処理する技術の一つとして，海水や海砂の使用も可能な流動性の高いコンクリートにより封じ込める方法について検討した。また，放射性物質に汚染されたコンクリートがらをコンクリートにより封じ込めるときの処理方法について基礎的検討を行い，外側を埋設型枠や放射線遮蔽シートで覆うことがより安全な処理方法になることを見出した。

キーワード：放射性物質，コンクリートがら，封じ込め技術，再生利用，海水・海砂練りコンクリート

## 1. はじめに

東日本大震災では津波により約 2,273 万トンの廃棄物が発生し現在処分が進められている<sup>1),2)</sup>。このうち発生総量の約 20% に相当するコンクリートがらは最終処分場に運ばれるが，建設資材として再生利用することを図れば処分量を減らすことになり有効である。

再生利用する場合，コンクリートがらはふるいにより 100～300mm，40～100mm，40mm 以下などの大きさに分級され，使用目的に応じて適切な粒度に調整してコンクリート用材料などとして使用される。

津波による浸水域は 561km<sup>2</sup> で海水が広範囲に滞留しコンクリートに付着している。また多くのコンクリート材料の骨材（砂や碎石）が海水に浸かったと推測出来る。このため海水に浸かった骨材は鉄筋コンクリートに原則使用できない。ただ無筋コンクリートでは注意して使用可能である。現在日本では塩分の混じったコンクリートは原則的に耐久性に問題があるので使用されていない。海水に浸かったコンクリートがらや骨材を洗浄するには，真水を用意しかつ洗浄水の処理も必要となり，時間と費用がかかるため，塩分を含んだコンクリートの諸性状を把握した上でこの再利用をする必要がある。

福島第一原発の水素爆発などで大気中に放出された放射性物質は，地上に降下することによりコンクリート表面に付着した。この付着した放射性物質は洗浄やはつりにより除去可能だが，除去した物質や水の処理に時間と費用がかかる。原子炉等規制法では 100Bq/kg がコンクリートがらを安全に再利用できる基準で 8000Bq/kg がコンクリートがらを安全に処理できる基準としている。

100Bq/kg 以上に放射性物質に汚染されたコンクリートがらや骨材を利用する方法として，これらをコンクリートなどの放射能遮蔽物質で封印して貯蔵したり，再利用する方法が考えられる。本論文では，このような放射性物質を封じ込める方法における，放射性物質の溶出に関する基礎的な検討内容について述べる。

## 2. コンクリートがらの利用方法

コンクリートがらを粗骨材の一部として使用する場合，人頭大（300mm 程度）の大きさで用いる方法と，通常の粗骨材の大きさまで粉砕して用いる方法の 2 通りが考えられる。前者（300mm 程度）では，図 1 に示すように予め型枠内に流動性のあるコンクリートやモルタルを打ち込んでおき，その後に破砕したコンクリートがらを投入するポストパッドコンクリートの要領で躯体を構築する。またコンクリートがらを型枠内に積み上げて置き，そこに流動性の高いコンクリートやモルタルを充填するプレパッドコンクリートとしての施工も可能である。その際，必要に応じて振動締め固めを行う。

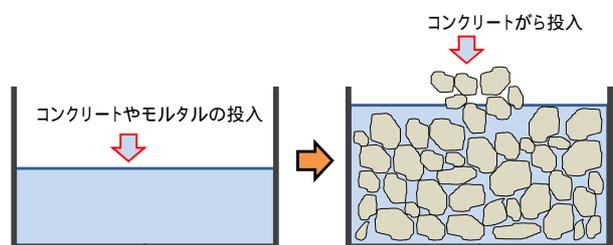


図 - 1 ポストパッド方式によるコンクリートがらの封じ込め方法

\*1 早稲田大学 創造理工学部 社会環境工学科 教授 工博（正会員）

\*2 五洋建設(株) 技術研究所 土木技術開発部 専門部長 博(工)（正会員）

\*3 東洋建設(株) 土木事業本部 土木技術部 部長 博(工)（正会員）

\*4 東亜建設工業(株) 技術研究開発センター グループリーダー 博(工)（正会員）

このとき型枠としては、放射能を封じ込める目的で高強度で（圧縮強度は  $70\text{N}/\text{mm}^2$  程度）、かつ耐久性に優れた厚さ 50mm 程度のステンレスファイバーなどを混入した埋設型枠を使用する。埋設型枠はコンクリート硬化後に取り外すことなく残置する。また必要に応じて放射線防止シートを埋設型枠内面に貼り付けて放射線の透過を抑える。港湾区域での施工の概要を図 2 に示す。これは作業台船上に設置したミキサなどのコンクリート製造設備を用い、コンクリートがら、海水、海砂などを使用してコンクリート部材を構築する方法の例である。コンクリートがらは原子力発電施設や周辺の施設の解体から出るものを想定している。陸上ではコンクリートがらの仮置き、解体などに制約が多く、管理がしやすい作業船台船での製造作業を想定している。

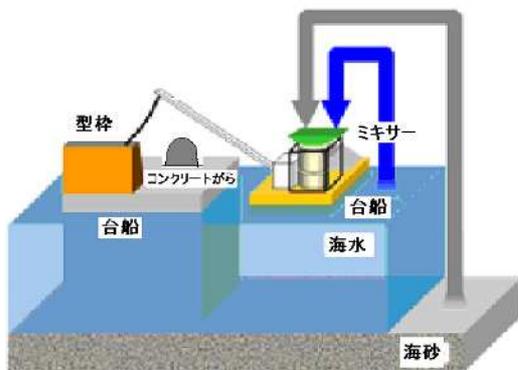


図 - 2 作業台船上での製造例

このように製造されたコンクリートは、ブロック製作やケーソン上部工の施工、防潮堤嵩上げなど多目的な使用が可能である。また、放射性物質に汚染されたコンクリートがらを洗浄することなく所定の寸法に粉砕すれば、粗骨材として利用できる。なお、使用するコンクリートは、海水や海砂の使用も可能な流動性の高いコンクリートを対象としている<sup>3),4)</sup>。

### 3. 封じ込めに用いるコンクリートの基本性状

ここでは先ず、海上で入手が容易な海水や海砂を用いて製造する流動性の高いコンクリートにより放射性物質を封じ込める場合を想定し、海水を用いてコンクリートを練混ぜた時の、塩分がコンクリートの品質に及ぼす影響を調べることにした。コンクリートの配合としては、練混ぜ水に上水道水、細骨材に陸砂を使用した基本配合（OC）に加え、練混ぜ水に海水、細骨材に海砂を使用した配合（SW-SS）と、練混ぜ水に海水、細骨材に陸砂を使用した配合（SW-LS）の3種類とした。なお、コンクリートの水セメント比は 45%、単位粗骨材絶対容積は  $0.330\text{m}^3/\text{m}^3$  の一定とし、スランブフローが  $600\pm 50\text{mm}$  の

範囲になるよう単位水量と混和剤の添加率を調整した。

練混ぜ水として用いた海水は相模湾で採取したものであり、海水中に質量比で 1.80%の塩化物イオンを含有していた。海砂は除塩処理していないものを使用しており、塩化物イオン量は質量比で 0.187%であった。また、塩分が混入しても高い流動性を発揮するように、増粘効果を併せ持つ高性能 AE 減水剤を新たに開発した。

試験項目は、流動性と力学特性とした。スランブフローは、練混ぜ完了後に試験を行った後、試料を静置した状態で、最長 90 分後までフロー500mm 到達時間（ $T_{500}$ ）および停止時間（ $T_{\text{stop}}$ ）の経時変化も確認した。練混ぜ完了後からの経過時間とスランブフローの関係を図 - 3 に示す。全ての配合で練混ぜ完了後のスランブフローが 600mm 以上となり、優れた流動性を有することが認められた。海水と海砂を使用した配合（SW-SS）では練混ぜ完了から 90 分後まで、基本配合（OC）と海水と陸砂を使用した配合（SW-LS）では約 60 分後まではスランブフローの目標値（ $600\pm 50\text{mm}$ ）を維持できた。

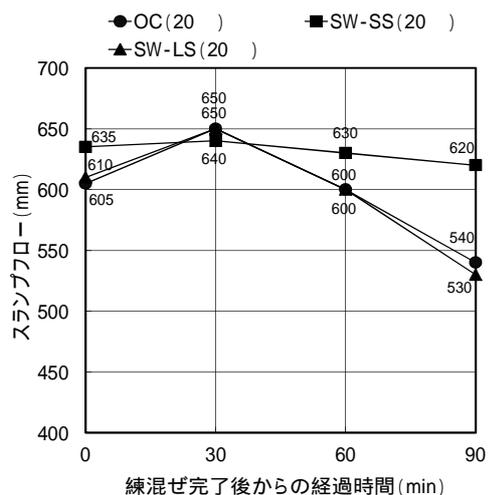


図 - 3 スランブフローと経過時間の関係

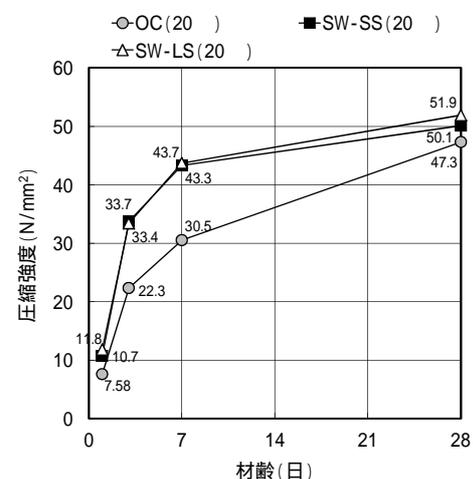


図 - 4 圧縮強度と材齢の関係

なお、今回検討した配合では、500mm フロー到達時間は3～5秒程度、フロー停止時間は30～40秒程度であった。従来の増粘剤系の高流動コンクリートと比較すると、500mm フロー到達時間とフロー停止時間は早まっており、特にフロー停止時間については20秒程度短縮している。このことから、コンクリートの流動時間の短縮は、打込みに要する時間の短縮に繋がるため、施工効率の向上の観点からは有利であるといえる。

材齢と圧縮強度の関係を図-4に示す。海水や海砂を使用した配合（SW-SS・SW-LS）の圧縮強度は、基本配合（OC）に比べて特に初期材齢において大きく、材齢3日で50%増、材齢7日で40%増であった。そして、材齢28日では10%ほど大きくなっている。コンクリート中に塩化ナトリウムなどが含有することで、硬化が促進されるため、初期強度が大きくなるのが本検討においても

確認された。

#### 4. 放射性物質封じ込めのためのモルタル要素試験

高濃度に汚染されたコンクリートがらは、そこから放射性物質が規制値以上に漏洩しないことが要求される。放射性物質の漏洩防止の手段として、地中深く埋設するコンクリート容器が提案されている。ここでは、放射性物質を封じ込めたコンクリートを再利用することを想定し、埋設型枠や漏洩防止シートで覆うことにより遮蔽した場合に、コンクリートがらからの放射性物質の漏洩状況に関する要素試験を行いその適用性を確認した。なお、粗骨材はモルタルより浸透係数が非常に小さいことから、主にモルタルより放射性物質が外部に漏出すると考えられる。また、放射性物質の漏洩に対する埋設型枠や漏洩防止シートの効果を検証することを目的としたことより、

表-1 セシウム同位体の諸物性

名称	特徴
セシウム 133	セシウム唯一の安定同位体。放射能無し。
セシウム 134	中性子線により放射化。原発事故により飛散。半減期 2年。47.9TBq/g
セシウム 135	反応過程で生成を抑制されている。半減期 230 万年。42.7MBq/g
セシウム 137	ウラン核分裂生成物。原発事故により飛散。半減期 30年。3.215TBq/g

表-2 放射線量と使用セシウム量換算

項目	放射能 (Bq/kg)	コンクリート中のセシウム濃度 (kg/m <sup>3</sup> ) <sup>1</sup>	モルタル中のセシウム濃度 (kg/m <sup>3</sup> ) <sup>2</sup>
本試験における設定値	8.7×10 <sup>13</sup>	27.0	43.4 (質量比:2%)
EPMA 測定下限値	8.7×10 <sup>11</sup>	0.270	0.434 (200ppm 程度)
指定廃棄物として国が処理	8000 以上	2.49×10 <sup>-9</sup> 以上	4.00×10 <sup>-9</sup> 以上
再利用が可能な範囲	100 以下	3.11×10 <sup>-11</sup> 以下	5.00×10 <sup>-11</sup> 以下

1 コンクリート中の粗骨材 1000kg/m<sup>3</sup> が全て左記の放射能で汚染されていたと仮定

2 コンクリート中モルタル分が 1:3 モルタル、セシウムが全てモルタル分に移動したと仮定

表-3 試験の要因と水準

試験体の諸元		水準など
モルタル 封じ込め	モルタル中のセシウム量	1 水準 (質量比 2%)
	セメント種類	1 水準 (普通ポルトランドセメント)
	水セメント比	1 水準 (50%)
	セメント:細骨材比	1 水準 (1:2)
	セシウム添加方法	1 水準 (練混ぜ時同時添加)
埋設型枠 (1:2 モルタル)		埋設型枠無しを含む 4 水準 <ul style="list-style-type: none"> <li>・ N セメント使用, W/C=50%, 1:2 モルタル</li> <li>・ BB セメント使用, W/C=30%, 1:2 モルタル</li> <li>・ BB セメント使用, W/C=30%, 1:2 モルタル</li> </ul> + 放射線遮蔽防水シート 1 枚
曝露環境		2 水準 (上水浸漬・人工海水浸漬)

コンクリートがらを入れずにモルタルのみにて試験体を製作することとした。現在、試験体を製作し測定を開始した初期段階のため、ここでは実験内容と初期状況について報告する。

表 - 1 にセシウムの同位体の諸物性を示す。本試験においては、放射線の影響を回避しつつコンクリート中のセシウムの移動を評価する目的達成のため、非放射性安定同位体であるセシウム 133 を用いた。

表 - 2 に放射能をセメント系材料中のセシウム濃度に換算した値を示す。コンクリート中の粗骨材 1000kg/m<sup>3</sup> が全て指定廃棄物下限値 8000Bq/kg を上回る 1.0 × 10<sup>4</sup>Bq/kg 程度の放射性物質に汚染され、その原因物質が全てセシウム 137 と仮定しても、モルタル中のセシウム濃度は 5.00×10<sup>-9</sup>kg/m<sup>3</sup> となり、非常に微量である。

放射性物質封じ込めに関する試験条件を表 - 3 に示す。パラメータとして、埋設型枠の有無とその性能、暴露環境として上水と海水の 2 種類を設定し、他の諸元は固定した。表 - 4 にモルタルの使用材料の物性値を、表 - 5

にモルタルの配合を示す。ここではセシウムの溶出に着目しているため試験体は上水で練り混ぜることとした。

使用セシウム量に関して、封じ込めるモルタルは水セメント比 50%の普通セメントによるものである。埋設型枠の製作には、普通セメントと高炉セメントを使用した。水セメント比はそれぞれ 50%と 30%である。本試験においては、試算と測定計器の精度を考慮して、試験モルタル中のセシウム濃度が 2.0%となるよう、セシウム 133 からなる塩化セシウム(CsCl)を試験体に添加した。

試験諸元を表 - 6 に示す。パラメータには、埋設型枠の有無、およびその性能・暴露環境として上水と海水の 2 種類を設定し、他の諸元は固定とした。試験体製作の概要を図 5 に示す。試験体は直径 50mm、高さ 100mm のモルタル製とした。紙製の円筒型枠底部に厚さ 10mm の埋設型枠を置き、その上にセシウム含有のモルタルを流し込んだ。その後この試験体を塩化ビニール製の筒内に置き、空隙にエポキシ樹脂を充填して密閉し、埋設型枠面以外の箇所から放射性物質が漏出しないようにした。

表 - 4 モルタルの使用材料

材料名	記号	品質など
普通ポルトランドセメント	C	密度：3.16g/cm <sup>3</sup>
細骨材	S	鬼怒川産川砂 FM：2.52 絶乾密度：2.25g/cm <sup>3</sup> 吸水率：2.97%
高炉スラグ微粉末 4000	BFS	密度：2.90g/cm <sup>3</sup> 比表面積：4410cm <sup>2</sup> /g
練混ぜ水	W	上水道水
混和剤	Ad	ポリエーテル系高性能減水剤
塩化セシウム	CsCl	純度：99.9% (Cs：Cl = 133：35.5)
放射線遮蔽防水シート	-	質量：3700g/m <sup>2</sup> 厚み：2.1mm

表 - 5 使用モルタルの配合

使用部位	単定量 (kg/m <sup>3</sup> )					
	C	BFS	W	S	Ad	CsCl
N セメント使用, W/C50%, 埋設型枠	636	-	318	1272	-	-
BB セメント使用, W/C30%, 埋設型枠	361	361	217	1444	3.61	-
封じ込めモルタル	636	-	318	1272	-	57.9

表 - 6 試験ケース

浸漬溶液	埋設型枠無し	N セメント使用埋設型枠	BB セメント使用埋設型枠	BB セメント使用埋設型枠 + 放射線遮蔽シート
上水				
海水		-		-

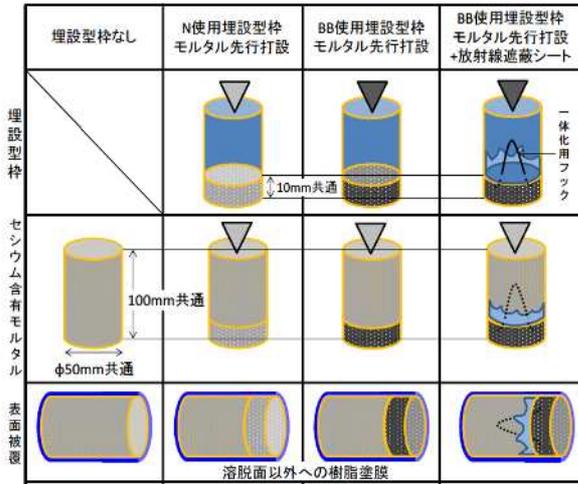


図 - 5 試験体製作の概要

試験ケースに応じて、埋設型枠を想定したセシウムを含まないモルタルと放射線遮蔽ポリウレタンシートを先行して配置した。ここで、シートに期待する役割は放射線を遮断すること、コンクリートにひび割れが生じて止水性を確保することである。また、耐久性、耐火性に優れていることも重要な選択要因である。このシートは2mm厚さでX線を数10%、数枚重ねるとほぼ99%放射線を遮蔽できる。一方γ線遮蔽効果は1枚で1.3%、10枚で16%で、γ線の遮蔽効果はやや小さい。この材料の引張強度は26-32 N/mm<sup>2</sup>、伸びは21-31%であり、高周波により現場で自由に接合できる特徴を持つ。また、埋設型枠の厚さは普通50mm程度であるが今回は一律10mmとした。実物と比較して試験体では埋設型枠の厚さが薄くシートの枚数も少なくしているが、それぞれの効果がどの程度かを調べるのを今回の試験目的とした。なお、実物大での効果は、拡散係数などの材料物性値から推定可能と考える。海水はJIS A 6205に準拠してNaCl、Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、MgCl<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>Oなどを上水に添加して製造した。

写真 - 1 に試験体の製作状況を示す。セシウムを含むモルタルを打ち込み養生した後、試験体表面は溶脱面とする底面以外に樹脂被膜を塗布することでセシウムの移動方向を限定した。また塩ビ管により樹脂被膜を防護するとともに、試験は浸漬溶液の成分分析を原子吸光度法を用いて行う。また、所定の期間浸漬試験を行った供試体断面のセシウム移動の評価を蛍光X線分析にて行った。強度試験として5×10cmの円柱供試体を用いて材齢28日強度試験を行った。その結果、普通セメントを用いた水セメント比50%では37.8N/mm<sup>2</sup>、高炉セメントの水セメント比30%では49.5 N/mm<sup>2</sup>、セシウム入りのモルタルでは39.9 N/mm<sup>2</sup>であった。これら試験体を上水と海水が入った容器内に設置して溶出量を計測することにした。溶液中に溶出した量は、原子吸光度法にて行う。

この原子吸光度法では溶液中における水分子や配位子との化学結合を高熱ですべて切断し、生成する中性原子蒸気による光の吸収を利用している。Csの1000ppmの希釈液を標準とし検定により溶出した量の測定を行った。測定感度は0.1ppm～10ppmである。溶液採取量は100-200cc/1回である。



写真 - 1 試験体の製作状況

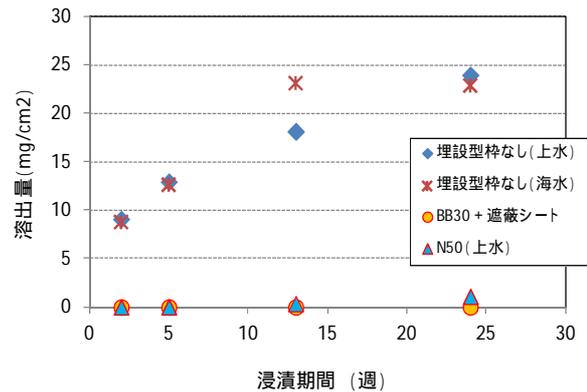


図 - 6 溶出量の計測結果(経時変化)

図 - 6 に溶出量の時系列を示す。型枠無しの場合は浸漬2週目からかなり溶出していることが分かる。一方、型枠がある場合は、溶出は24週でもほぼ遮蔽されている。蛍光X線分析では試験体をまず1cmごとに切断し、切断した試料を粉砕し微粉碎状態にしたのち、金枠内に成型し圧縮して円盤状に再整形を行い蛍光X線分析装置で測定を行った。写真 - 2 にこの状況を示す。

図 - 7 には、浸漬24週間後の蛍光X線分析による試験体内のセシウム含有量の表面からの深さ方向への分布を示す。型枠とシートでは、ほぼセシウムは型枠内に浸透していない。型枠のみの場合は若干浸透しているが、この時期では外部にはセシウムは溶出していないことが分かる。セシウムがコンクリートの浅い部分から拡散して溶出すると仮定すると、式(1)のフィックの第二法則と累積溶出量を表す式(2)により、見かけ上の拡散係数を求めることができる。

(a)試験体切断



(b)粉碎作業



(c)再成型



(d)測定状況



写真 - 2 蛍光 X 線分析装置による溶出量の測定状況

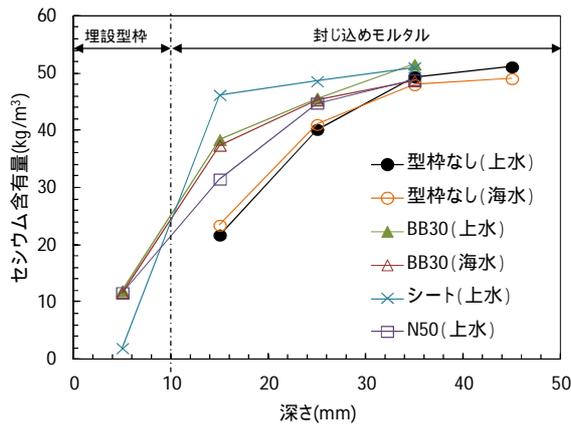


図 - 7 浸漬 24 週後の試験体内のセシウム含有量分布

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{ae} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad \dots\dots (1)$$

$$M = 2C_0S \sqrt{D_{ae} \frac{T}{\pi}} \quad \dots\dots (2)$$

ここに、 $C$ : 拡散物質の濃度、 $C_0$ : 初期濃度、 $S$ : 表面積、 $T$ : 時間、 $M$ : 累積溶出量、 $D_{ae}$ : 見かけの拡散係数。

浸漬 24 週間後において、型枠がない場合には  $1.16 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ 、型枠のみの場合には  $2.43 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ 、型枠とシートの場合には  $2.92 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$  の見かけ上の拡散係数が得られた。型枠とシートを併用することで拡散係数は非常に小さな値となった。なお、埋設型枠と放射線防止シートの個別の拡散係数の計算は今後の課題とした。

## 5. まとめ

- (1) 新たに開発した増粘剤一液型高性能 AE 減水剤を用いることにより、コンクリートに海水と海砂を使用した場合でも優れた自己充てん性を得ることができ、放射線物質の封じ込めに利用できると考えられる。
- (2) コンクリートに海水や海砂を用いることにより、上水道水や陸砂を用いた場合に比べて初期材齢 (3~7 日) における強度発現性が向上する。
- (3) 小型の試験体を用いてセシウムを海水、上水中への溶出量を測定したところ、浸漬 24 週間の測定期間では、埋設型枠や遮蔽シートを用いることにより溶出量をゼロか、大幅に押さえることが確認できた。見かけ上の拡散係数も非常に小さな値であった。

## 6. あとがき

ここでは、塩分を含み放射性物質に汚染されたコンクリートがらを、コンクリート製埋設型枠および放射線遮蔽ポリウレタンシートや、海水や海砂で製造したコンクリートにより作業台船上で封じ込める方法を検討した。放射線の漏出を大幅に低減できれば、製作したコンクリートブロックを貯蔵施設内に置くだけでなく、自然条件・社会条件にもよるが、護岸工事などに適用できる可能性があると考えている。

放射性物質に汚染されたコンクリートを封じ込めるモルタル要素試験を開始し、今後 3 年にわたり計測を行う予定である。今後この試験結果を順次報告したい。

なお、本研究は早稲田大学、五洋建設(株)、東亜建設工業(株)、東洋建設(株)および BASF ジャパン(株)が共同で実施している。また(社)日本作業船協会の「放射線環境下における作業船の利活用に関する研究開発」として研究助成を得た。実験の実施に当たっては日本コンクリート技術(株)、RECO エンジニアリング(株)、ジェイアール総研エンジニアリング(株)の協力を得た。

## 参考文献

- 1) 環境省: 放射性物質汚染対処特措法
- 2) 環境省: 廃棄物特定産業廃棄物関係ガイドライン, 平成 23 年 12 月
- 3) 竹中寛, 内藤英晴, 羽瀨貴士, 清宮理: 海水および海砂を用いた自己充てん型コンクリートの基礎特性, コンクリート工学年次論文集, Vol.34, No.1, pp.1912-1917, 2012.6
- 4) 清宮理: 海水・海砂を用いる自己充てん型コンクリート, 未来材料, Vol.25, No.5, pp.47-52, 2013.2