

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 505-1 Radioactive Waste Management

📅 Wed. Sep 8, 2021 4:00 PM - 5:15 PM JST | Wed. Sep 8, 2021 7:00 AM - 8:15 AM UTC | 🏠 Room A

[1A09-12] Contaminated Concrete

chair: Yoshihiro Kitatsuji (JAEA)

4:00 PM - 4:15 PM JST | 7:00 AM - 7:15 AM UTC

[1A09] Infiltration behavior of Sr and Cs and its prediction in a concrete

*Norikazu Kinoshita¹, Hitoshi Nakashima¹, Yuki Sasaki¹, Kazuyuki Torii¹, Keisuke Sueki² (1. Shimizu, 2. Univ. of Tsukuba)

4:15 PM - 4:30 PM JST | 7:15 AM - 7:30 AM UTC

[1A10] Chemical State Analysis of Strontium Attached to Structural Materials of Reactor Building

*Yuko Kimoto¹, Kai Yoneyama¹, Isamu Sato¹, Haruaki Matsuura¹, Eriko Suzuki² (1. Tokyo City University, 2. Japan Atomic Energy Agency)

4:30 PM - 4:45 PM JST | 7:30 AM - 7:45 AM UTC

[1A11] Study on the Radionuclide Contamination Mechanisms of Concrete and the Estimation of Distribution of Radionuclides

(12)The Cs/Sr penetration in the real concentration ranges in concrete for 1 year

*Kazuo Yamada¹, Yasumasa Tojo², Sayuri TOICA³ (1. NIES, 2. Hokkaido U., 3. THC)

4:45 PM - 5:00 PM JST | 7:45 AM - 8:00 AM UTC

[1A12] Diffusion behavior of iodide and cesium ions in hardened cement paste

*Takaya Kawato¹, Keisuke Ishida², Takeshi Yamamoto¹, Daisuke Minato¹, Kiyoshi Fujisaki², Takafumi Hamamoto², Morihiro Mihara³ (1. CRIEPI, 2. NUMO, 3. JAEA)

5:00 PM - 5:15 PM JST | 8:00 AM - 8:15 AM UTC

Time reserved for Chair

コンクリートへの Sr と Cs の浸透挙動とその予測

Infiltration behavior of Sr and Cs and its prediction in a concrete

*木下 哲一¹, 中島 均¹, 佐々木 勇気¹, 鳥居 和敬¹, 末木 啓介²

¹清水建設, ²筑波大学

Sr と Cs の溶液にコンクリート試験体を浸漬し、浸透の様子を EPMA を用いて分析した。セメントペーストへのこれらの元素の分配係数も分析した。コンクリート試験体への浸透の傾向を示すと共に、分配係数を用いた浸透予測について報告する。

キーワード：浸透、分配係数、拡散係数

1. 緒言

福島第一原子力発電所のような事故炉や通常の原子力発電所の廃炉において、放射性核種が浸透したコンクリートは、汚染した部位を除去することで、廃棄物の減容化が可能になる。特に Cs や Sr は水溶性であるため、浸透による汚染が懸念される。本研究では一般的なコンクリートに Cs と Sr を浸透させて浸透の様子を観測すると共に、分配係数の測定から拡散モデルを用いて浸透予測することを目的とした。

2. 実験

コンクリート供試体（φ100×200 mm）を CsCl (1%) と SrCl₂ (10%) の混合溶液に一定期間浸し、EPMA を用いて断面で Cs と Sr の濃度分布を分析した。またコンクリート供試体と水:セメント:砂比が同じ粉体モルタル試料を別途用意して Cs と Sr の分配係数を測定した。

3. 結果と考察

浸透5か月後の EPMA による Sr と Cs の分布を図1に示す。Sr は深い浸透、Cs は浅い浸透が見られた。骨材中の浸透や骨材との界面を伝った浸透は見られず、モルタル部分の浸透のみを考慮すればよいことが分かった。また、浸透時間1か月、3か月、5か月の試料では、深度分布に有意な差が見られなかった。試験体を溶液に浸した直後の短い時間に急激な浸透が進んだものと考えられる。

一方で、モルタルへの分配係数は Sr は 2.3 mL/g、Cs は 510 mL/g と測定された。この分配係数を用いて拡散係数は式(1)を用いて推定することができる。

$$\text{拡散係数} = \frac{\text{空隙率} \times \text{水の拡散係数}}{\text{空隙率} + \text{乾燥密度} \times \text{分配係数}} \quad (1)$$

本研究において試験体中の空隙率は測定していないため、一般的なコンクリートの空隙率 10-20%を用いると拡散係数は Sr では $(1.3-14) \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{y}$ 、Cs は $(5.8-64) \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{y}$ と見積もられた。この拡散係数に基づき、Sr と Cs が 50 年間浸透したコンクリート中の深度分布は図2のように推定される。使用済燃料プール等の長期間の浸透あるコンクリートは、Cs は数 mm 削れば十分な除染が可能であるが、Sr は数十 mm の除染が必要となる。

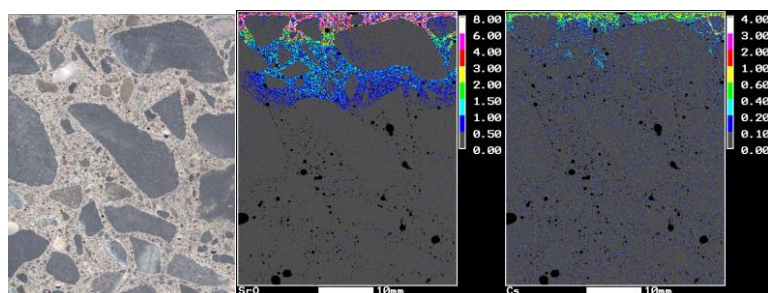


図1 試料測定面の写真(左)と EPMA による Sr (中央) と Cs (右) 濃度分布

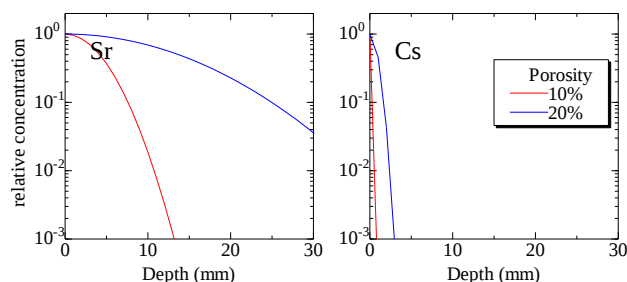


図2 拡散に基づく浸透により予想される 50 年後の深度分布

*Norikazu Kinoshita¹, Hitoshi Nakashima¹, Yuki Sasaki¹, Kazuyuki Torii¹, and Keisuke Sueki²

¹Shimizu Co., ²Univ. of Tsukuba

原子炉建屋構造材に付着したストロンチウムの化学状態解析

Chemical State Analysis of Strontium Attached to Structural Materials of Reactor Building

*木本 裕子¹, 米山 海¹, 佐藤 勇¹, 松浦 治明¹, 鈴木 恵理子²

¹ 東京都市大学, ² 日本原子力研究開発機構

東電福島第一原子力発電所の廃炉においては、それに伴う解体廃棄物を安全かつ合理的に管理することが必要である。そのためには、原子炉建屋等において大量に存在するコンクリート構造材への放射性物質の付着・浸透メカニズムを把握しその性状に応じた処理・処分を施す必要がある。本研究では、コンクリート構造材への Sr の浸透メカニズムを把握することを目的に、浸透試験を実施した。その結果、Sr は pH によって浸透挙動が変化することが明らかとなった。

キーワード(keywords): 東電福島第一原子力発電所, コンクリート, Sr, EXAFS

1. 背景と目的

東京電力福島第一原子力発電所の廃炉においては、それに伴う解体廃棄物を安全かつ合理的に管理することが必要である^[1]。Cs に関してはその浸透挙動に関する多くの評価例が存在するが、Sr に対するデータは少ない。そのため、原子炉建屋等において大量に存在するコンクリート構造材への Sr の放射性物質の付着・浸透メカニズムを把握し、その性状に応じた適切な処理・処分を施す必要がある。本研究は対陰イオンの異なる水溶液、SrCl₂ 及び Sr(OH)₂ 水溶液を用いた Sr のコンクリートに対する浸漬試験及び浸漬後コンクリートの EXAFS 分析、蛍光 X 線分析を実施し、コンクリートへの Sr 浸透メカニズムの把握を目的とする。

2. 方法

本学・都市工学科の協力のもと作製したコンクリートを対象に Sr 浸透試験及び試験後の試料に対して蛍光 X 線分析、EXAFS 測定を行った。1M SrCl₂ または Sr(OH)₂ 水溶液に 1 日浸漬したコンクリート試験片を表面から 0.5mm ずつ 3.0mm まで削り、その際に得られるコンクリート粉末を測定試料として Sr K α 線に着目した蛍光 X 線分析を行うことで、Sr の浸透深さ分布を把握した。測定後、検量線を引くことにより強度から Sr 含有重量へと変換した。EXAFS 測定は高エネルギー加速器研究機構、PF、BL27B ビームラインにおいて、透過法で Sr K 吸収端に着目して行い、得られたコンクリート中の Sr 近傍構造に対して比較、検討を行った。

3. 結果及び考察

浸透試験後のコンクリート試料を対象に蛍光 X 線分析によって測定し、検量線によりコンクリート中の Sr 含有重量に図の縦軸を変換した結果より(図 1)、表面から 3.0 mm まで Sr が分布していることが確認出来たが、対イオンにより浸透挙動に差が見られた。また、Cs との比較をした結果、Sr 水溶液に浸漬させた場合、液性がアルカリ性である Sr(OH)₂ よりも液性が中性寄りである SrCl₂(塩化物)の方が浸透量が大きくなったが、Cs 水溶液に浸漬させた場合ではアルカリ性の CsCl よりも中性である CsI の方が比較的浸透量が大きくなる結果となり、コンクリート(アルカリ性)に対する溶液側の pH の差の影響が Sr・Cs とで異なる結果を示した。図 2 は EXAFS 測定の結果であり、横軸が原子間距離、縦軸がその距離に存在する原子の存在確率を表している。SrCl₂・Sr(OH)₂ 水溶液ともに EXAFS 構造関数にみられる第一近傍のピークは 2Å 付近に確認できた。Sr(OH)₂ 水溶液にコンクリートを浸漬した場合では、Sr がコンクリート中 Ca と置換することから、Sr と O の相関とその存在量を表す第一近傍ピークの強度が深さごとに小さくなるが、コンクリートの主成分は Ca であるため、配位構造は深さ方向に対してほぼ変わらないと考えられ、強度の相違は存在量が異なるためと推察される。一方、Sr と比べ Cs は深さ方向のピークの表れ方が Sr ほどきれいな減少傾向を示さなかったことから、Cs と Sr とでは浸透の機構が異なる可能性が示唆される。今後は pH を変化させた浸漬液を用意し、EXAFS 解析においてはフィッティングにより構造パラメータを求め、浸透挙動の機構解明につなげていく予定である。

参考文献

[1] 小崎等、2018 3L01 日本原子力学会春の年会、コンクリート廃棄物管理シナリオ解析

*Yuko Kimoto¹, Kai Yoneyama¹, Isamu Sato¹, Haruaki Matsuura¹, Eriko Suzuki² ¹Tokyo City University., ²JAEA.

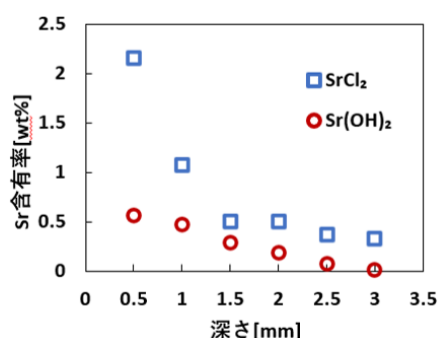


図 1 XRF 分析によるコンクリート深さ方向の Sr 含有量分布

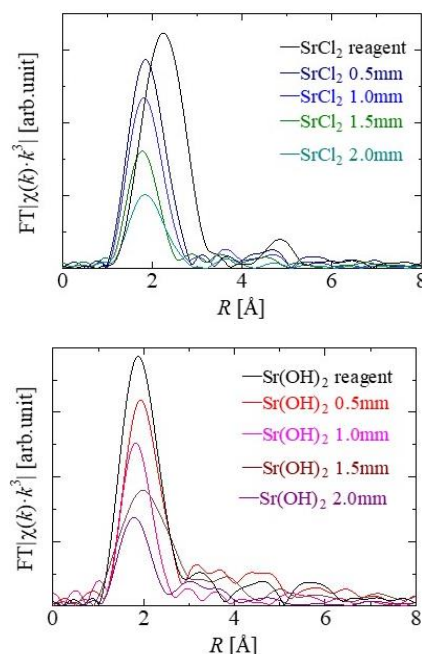


図 2 SrCl₂(上)及び Sr(OH)₂(下)浸透試験による Sr 含有試料の EXAFS 構造関数

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 (12) 実濃度範囲でのコンクリートへの1年間でのCs/Sr浸透

Study on the Radionuclide Contamination Mechanisms of Concrete and the Estimation of Distribution of Radionuclides

(12) The Cs/Sr penetration in the real concentration ranges in concrete for 1 year

*山田 一夫¹, 東條 安匡², 富田 さゆり³

¹国立環境研究所, ²北海道大学, ³太平洋コンサルタント

本稿では、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に対するシリーズ講演における、事故後の現実の濃度範囲のCsとSrがコンクリートに1年間で浸透した状況を講演する。

キーワード: 浸透, Cs, Sr, コンクリート, イメージングプレート, 実濃度, 変質, 炭酸化, 乾燥

福島第一原子力発電所(1F)建屋コンクリートへの放射性CsとSrの浸透に関して、2020年度にシリーズ発表(7)として報告した短期材齢のコンクリートへのCsとSrの浸透を、より長期の材齢の結果と比較する。

試料は普通セメントモルタルであり、骨材は微粒分を除去した石灰石と1Fで使用された川砂である。濃度100mM、1mM、10 μ MのCsCl溶液、10 μ MのSrCl₂溶液に浸漬した。溶液はCs-137とSr-90で標識し、浸漬後、1.6mm薄片を切り出し、濃度既知の試料と同時にイメージングプレートに暴露することで、物質濃度プロファイルを取得した。結果を図1に示す。(a)は飽水健全試料、(b)は飽水炭酸化試料、(c)は乾燥炭酸化試料である。(c)は表層が疎水化していたため、材齢16時間までは減圧吸水させた。

飽水健全試料では、表面濃度は変化しないが、深部への濃度勾配が緩やかになっており、全濃度範囲でCsが30mm以深に到達した。飽水炭酸化試料では、4mmの炭酸化領域では強いCsの濃縮が認められるが、長期材齢では深部の濃度が増加し、この水準のみ溶液中のCs濃度が低下したが、試料内部での再分配は進行し、深部までCsが浸透した。乾燥炭酸化試料では、Csでは表面濃度も経時増加し、かつ深部の濃度も増加した。一方、Srは、表面濃度は経時増加したが、深部の濃度の増加はなく、Srの浸透速度はCsよりも遅い。

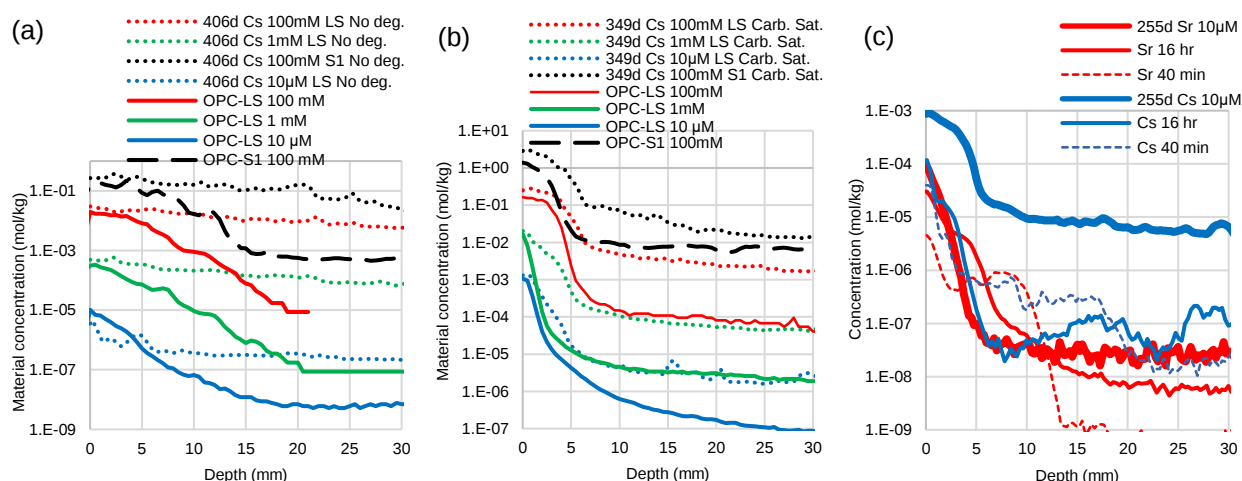


図1 普通セメントモルタルへのCsとSrの浸透プロファイル (a)飽水健全試料、(b)飽水炭酸化試料、(c)乾燥炭酸化試料(骨材はLS)。(a),(b)の実線は56日。LS:石灰石、S1:川砂

謝辞 本研究は、文部科学省英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 JPJA20P12345678 の助成を受けた。

* Kazuo Yamada¹, Yasumasa Tojo², Ssyuri Tomita³

¹NIES, ²Hokkaido Univ., ³Taiheiyu Consultant³

硬化セメントペースト中のヨウ素イオンおよびセシウムイオンの拡散挙動

Diffusion behavior of iodide and cesium ions in hardened cement paste

*川戸 陸也¹, 石田 圭輔², 山本 武志¹, 湊 大輔¹, 藤崎 淳², 浜本 貴史², 三原 守弘³

¹電力中央研究所, ²原子力発電環境整備機構, ³日本原子力研究開発機構

硬化セメントペースト (HCP) 中のヨウ素イオン (I⁻) とセシウムイオン (Cs⁺) の拡散挙動を観察するために、5 年間以上湿空養生した異なる水セメント比の供試体に対し、I⁻と Cs⁺をトレーサーとした一面解放浸漬試験を実施し、電子線マイクロアナライザー (EPMA) を用いた深さ方向の元素濃度面分析を行った。

キーワード: 拡散挙動, EPMA, ヨウ素, セシウム, セメントペースト, 浸漬試験

1. 緒言 包括的技術報告書^[1]では、TRU 等廃棄物の処分施設においてパッケージ間充填材やパッケージ内充填材にはセメント系材料の使用が検討されている。この評価でのセメント系材料には、核種の収着による移行遅延機能が期待されているものの状態設定の不確実性から、核種移行解析において間隙水中に溶出した核種は構造躯体内で瞬時に混合すると仮定されている。そこで、本研究では処分システムのセメント系材料による核種の移行遅延性能をより確からしく評価するために I⁻と Cs⁺について HCP を用いた浸漬試験を実施し、I⁻および Cs⁺の拡散挙動を調べた。

2. 実験 供試体は不活性ガス雰囲気下 20℃相対湿度 98%で 5 年以上養生した 2×2×4cm の HCP を用いた。水セメント比 (W/C) 0.35 と 0.55 の 2 水準に対し、遮水性樹脂でコーティングし 2×2cm の一面を解放した状態で試験溶液に浸漬した。試験溶液にはトレーサーイオンとして I⁻および Cs⁺をヨウ化セシウムの化学形態で添加した (濃度 I=20,000 ppm)。試験溶液は純水と試験期間中の供試体のカルシウム (Ca) の溶脱を抑制するために水酸化カルシウム飽和水溶液 (CH) の 2 水準を用いた。浸漬期間は 4 週間および 52 週間とした。所定の浸漬期間が経過した試料を解放面に垂直方向で切断し、EPMA を用い元素濃度分布を分析した。

3. 結果・考察 図-1 に 52 週間の元素分布図を示す。試験溶液の違いに着目すると純水では Ca の溶脱が確認できるが、CH では Ca の溶脱は解放面近傍に留まっている。I の分析結果に着目すると Ca 溶脱界面には比較的高濃度で濃集していたが、拡散深さは Ca 溶脱の有無にかかわらず同程度であった。Cs の結果に着目すると、Ca の溶脱領域には比較的高い濃度で存在していることが確認できたが、その濃度は全体的に I の濃度と比べ低かった。また、W/C の違いは I、Cs とともに拡散深さおよび濃度に影響を及ぼした。これは、W/C の違いによる HCP の間隙率や細孔構造の違いによるものだと考えられる。

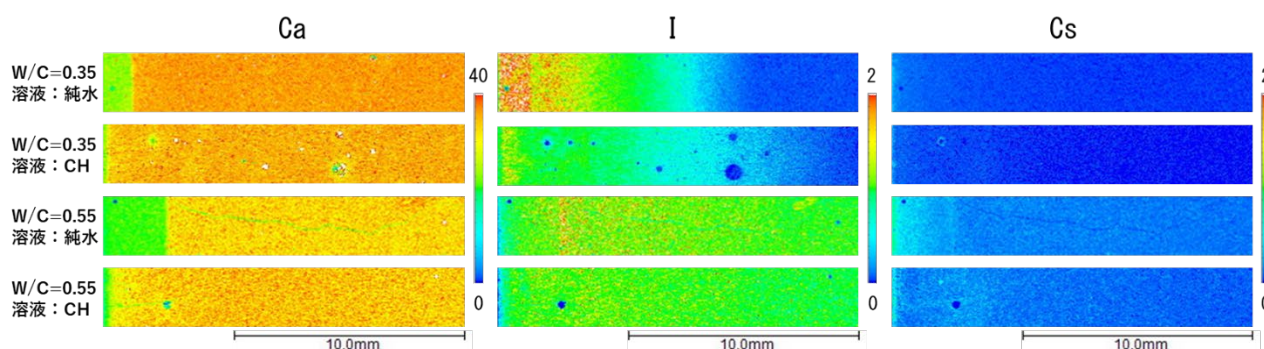


図-1 浸漬期間 52 週間の深さ方向元素分布図 (各図の左側が解放面。右にカラーバー(mass%)を示す。)

参考文献

[1] 原子力発電環境整備機構: 包括的技術報告書 (NUMO-TR-20-03) (2021)

*Takaya Kawato¹, Keisuke Ishida², Takeshi Yamamoto¹, Daisuke Minato¹, Kiyoshi Fujisaki², Takafumi Hamamoto² and Morihiro Mihara³

¹CRIEPI, ²NUMO, ³JAEA