

## 論文・報告

# コンクリート中のセシウム拡散性試験（続）

## ～「エコマモール」の汚染廃棄物貯蔵庫への適合性について～

Sequel of Cesium Diffusion Test in Concrete

北野 勇一 \*<sup>1</sup>  
Yuichi KITANO中山 良直 \*<sup>2</sup>  
Yoshinao NAKAYAMA塩井 健太 \*<sup>3</sup>  
Kenta SHIOI堀池 一男 \*<sup>4</sup>  
Kazuo HORIIKE

コンクリート中の物質移行に関する既往の研究は、塩化物イオンや二酸化炭素に関するものが多く、セシウムの浸透挙動については、十分に解明されていない。そこで、筆者らはプレキャスト PC 部材を活用したコンクリート製地下構造物「エコマモール」への汚染物の貯蔵を想定した場合のセシウム拡散性試験を実施し、コンクリート中のセシウム浸透挙動について明らかにしてきた。しかし、目標とするセシウム漏洩年数の達成には至らず、また、プレキャスト部材目地部に充填するグラウトについてはセシウム浸透が若干大きくなるという課題が残された。本稿では、これらの課題を解決するために引き続き実施した各検討について報告する。

キーワード：プレキャスト PC 部材、目地グラウト、セシウム、低拡散性

### 1. はじめに

2011年3月11日の東日本大震災後に起きた福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が環境に放出された。放射性物質の一部は地上に降り注ぎ、家屋や道路、草木、土壌などに付着、沈着した。

それから3年余りが経ち除染も進み、今後、本格的な復興を成し遂げるためにも、除染に伴う汚染物の一時保管や埋設処分が急ピッチで進められるものと考えられる。この内、高濃度の放射性物質を含む汚染物（以下、汚染廃棄物という）は、コンクリート製地下構造物などに保管することが計画されている<sup>1)</sup>。これは、コンクリートが放射性物質から発せられる放射線を遮る能力（遮へい性）に優れるためである。

一方、我々国民に永く影響を及ぼすおそれのある放射性物質は、核種の半減期がより長い放射性セシウム(<sup>137</sup>Csで約30年)である。セシウムは水に容易に溶ける性質があり、雨水や地下水の影響でセシウムイオンとしてコンクリート中を拡散し、年月を経て、コンクリート製地下構造物の外部へ漏れ出すおそれがある。

このように、汚染廃棄物の保管に用いるコンクリートには、遮へい性（高いほど良い。ただし、性能はコンクリートの比重と厚さでほぼ決まる）と拡散性（低いほど良い）が要求される。

ところで、コンクリート中の物質移行に関する既往研究は、塩化物イオンや二酸化炭素に関するものが多く、

セシウムの浸透挙動については、十分に解明されていない。そこで、筆者らはプレキャスト PC 部材を活用したコンクリート製地下構造物「エコマモール」への汚染廃棄物の貯蔵を想定した場合のセシウム拡散性試験を実施し、プレストレストコンクリート (PC) 部材および鉄筋コンクリート (RC) 部材に用いるコンクリートに対するセシウムの浸透挙動について明らかにしてきた<sup>2)</sup>。しかし、セシウムの浸透を大幅に抑制すると予想したフライアッシュコンクリートを用いても目標とするセシウム漏洩年数の達成には至らず、また、プレキャスト部材目地部に充填するグラウトについてはセシウム浸透が若干大きくなるという課題が残された。本稿では、これらの課題を解決するために実施した各検討について報告する。

なお、本研究の成果は、普通コンクリートに比べ、フライアッシュコンクリートを用いることでセシウムの漏洩年数を10倍に延長すること（たとえば、前者30年に対し、後者300年を想定）を目標に置く。これは、現在検討が進められている中間貯蔵施設とは別に、汚染廃棄物の最終処分を対象とし、放射性セシウムの濃度が概ね安全な状態に落ち着くこと（<sup>137</sup>Csを根源とする保管物の放射能濃度が仮に100万Bq/kgとすると、国際的に定められるクリアランスレベル1000Bq/kg以下の濃度に低減するのに半減期の10倍に相当する300年を要する）を想定したものである。

\* 1 川田建設株式会社技術課 課長

\* 2 川田建設株式会社 部長

\* 3 川田建設株式会社技術課

\* 4 川田建設株式会社統括支店北関東事業所那須工場品質管理課 課長

表1 コンクリート配合および強度試験結果

種別	配合名	水セメント比 (%)	単位量 (kg/m <sup>3</sup> )					圧縮強度 (N/mm <sup>2</sup> )	
			水	セメント	フライアッシュ	細骨材	粗骨材	7日 (蒸気)	28日 (水中)
RC	N30	50	165	330	0	849	967	---	47.6
	NF30				66	769		---	48.5
PC	H50	38.4	162	422	0	765	980	56.3	---
	HF50				84	663		58.1	---

セメントはRCに普通ポルトランドセメント、PCに早強ポルトランドセメントを用いる。フライアッシュは原粉（火力発電の際にボイラの燃焼ガスから電気集塵機で採取され、分級等の処理が特になされていないもの）を用いる。細骨材は砕砂、粗骨材は砕石を用いる。

表2 コンクリート試験体一覧

種別	配合名	養生方法	浸せき期間	
			6ヶ月	12ヶ月
RC	N30	水中7日後に封緘	N30A	N30B
	NF30		NF30A	NF30B
PC	H50	蒸気養生後に封緘	H50A	H50B
	HF50		HF50A	HF50B

## 2. セシウム浸透挙動に関する再評価

「エコモール」を構成するRC造  $F_c = 30\text{N/mm}^2$  と、PC造  $F_c = 50\text{N/mm}^2$  のコンクリートについて実施した以下の試験から、セシウム浸透挙動に関する再評価を行うことにする。

### (1) 試験方法

#### a) コンクリート配合

表1にコンクリート配合を示す。RC用コンクリートは水セメント比50%、PC用コンクリートは同38.4%とする。また、配合N30と配合H50は結合材がセメントのみの普通コンクリートであり、配合NF30と配合HF50はフライアッシュを20%添加したフライアッシュコンクリートである。混和剤は高性能AE減水剤とAE剤を用い、これらの使用量は普通コンクリート  $12 \pm 2.5\text{cm}$ 、フライアッシュコンクリート  $15 \pm 2.5\text{cm}$  および空気量  $4.5 \pm 1.5\%$  が得られるように調整する。

#### b) 試験体の作製および浸せき

実験に用いる試験体一覧を表2に示す。試験体は直径100mm、高さ200mmの円柱とし、表1に示した各種コンクリートを打設する。RC用コンクリートは、材齢1日で脱枠し、直ちに20℃の水中にて材齢7日まで養生する。PC用コンクリートでは、最高温度45℃を6時間保持する蒸気養生を行い、材齢1日で脱枠する。所定の養生を終えた後、打設した上面側より5cmの位置で切断し、この切断した面を除き、エポキシ樹脂で被覆する。

作製した試験体は材齢28日まで封緘状態で保管後、セシウム(Cs)および塩化物イオン(CI)の濃度を3.0%に調整した20℃の塩化セシウム-塩化ナトリウム混合水溶液に所定期間浸せきする。

#### c) EPMA法による測定

浸せきが終了した試験体を用い、浸透面中央部の幅75mm、浸透面からの距離75mmの大きさの試料を切り出し、JSCE-G574に準拠するEPMA法によりCsおよびCIの濃度の測定を行う。

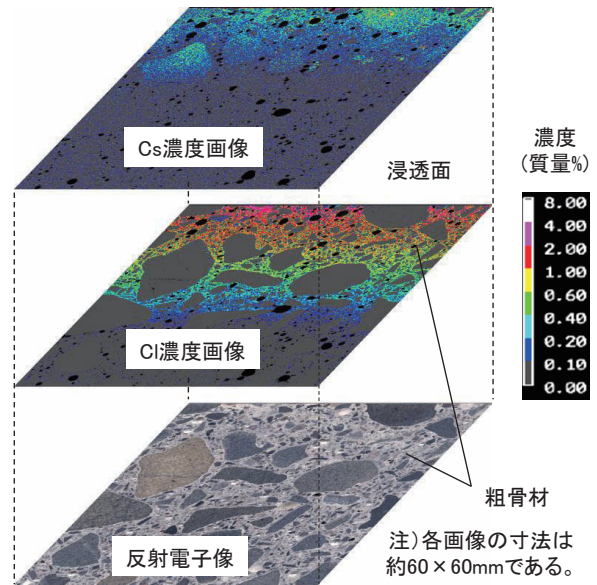


図1 EPMA法による測定結果（試験体N30B）

### (2) コンクリート中のセシウム浸透性状

EPMA法による測定結果の一例として、試験体N30BのCsおよびCIの濃度画像（文献2ではペースト部のみを表示して骨材は非表示としたが、本図ではペースト部と骨材のすべてを表示した）と反射電子像を図1に示す。図より、塩化物イオンは骨材を避けるようにコンクリート中に浸透しているのに対し、セシウムは骨材の有無を問わずにコンクリート中に浸透し、かつ、粗骨材のセシウム濃度が周辺より明らかに高くなっている。

EPMA法による測定結果をもとに、浸透深さ方向に0.5mm毎にペースト相当部の濃度を平均し、RC用コンクリートのCsおよびCI濃度分布を作成したものを図2

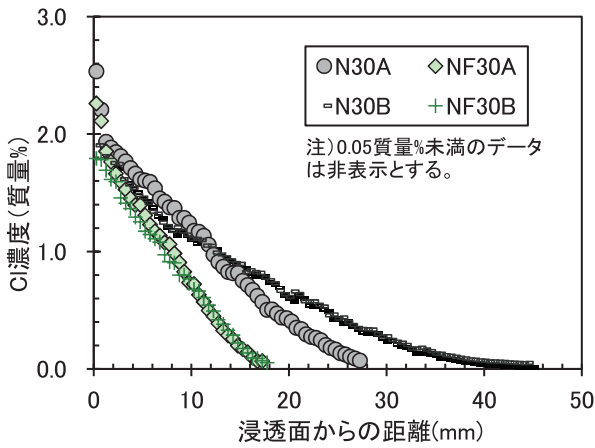


図2 RC用コンクリートにおける塩化物イオン濃度分布

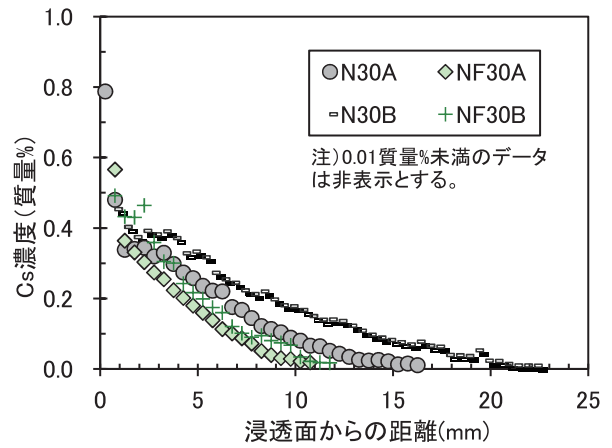


図3 RC用コンクリートにおけるセシウム濃度分布

と図3に示す。図より、ClおよびCsとも浸透面から内部に向かい濃度が逐次減少する傾向にあり、塩化物だけでなくセシウムもセメント硬化体中をイオンとして拡散していると推察される。また、普通コンクリートでは浸せき期間が6ヶ月(N30A)から12ヶ月(N30B)に進むとCsおよびClともにより内部に浸透するのに対し、フライアッシュコンクリートでは、CsおよびClともに深さ方向への浸透が停滞している様子が見て取れる。

(3) セシウム拡散係数の再評価

前項に示したセシウム濃度分布から、フィックの拡散方程式の解で回帰し、セシウム拡散係数を求める（この方法を拡散方程式法と称す）。この方法ではセシウムの浸透停滞現象を考慮できず、フライアッシュコンクリートを用いた場合の低拡散性を過小に評価する。そこで、後藤らの研究<sup>3)</sup>を応用し、セシウム浸透深さと浸せき時間が式(1)の関係にあることからセシウム拡散係数を求める（この方法を浸透深さ法と称す）。

$$x = 2k \cdot \sqrt{D_{Cs,PD} \cdot t} + \alpha \quad (1)$$

ここで、 $D_{Cs,PD}$ ：浸透深さ法によるセシウム拡散係数、 $x$ ：セシウム濃度が0.01質量%となるセシウム浸透深さ、 $k$ ：傾き、 $t$ ：浸せき時間、 $\alpha$ ：切片。

上記2手法によりセシウム拡散係数を求めた結果を表3に示す。表より、フライアッシュコンクリートのセシウム拡散係数は、拡散方程式法( $D_{Cs,FE}$ )で普通コンクリートの1/2以下と算出されるに留まるが、浸透深さ法( $D_{Cs,PD}$ )では1/100まで低減することが明らかになった。

(4) セシウム漏洩年数

ここでは、エコマールを構成する部材のうち、外周部材で最小となる30cmのRCおよびPCの2ケースについて検討する。セシウム漏洩年数は、式(2)を用い、コンクリート表面からセシウムが浸透し、30cm先のコンクリート内部のセシウム濃度 $C_{out}$ が0.001に到達するまでの時間として求める。

表3 セシウム拡散係数算出結果

種別	配合名	拡散係数 (cm <sup>2</sup> /年)	
		拡散方程式法 $D_{Cs,FE}$	浸透深さ法 $D_{Cs,PD}$
RC	N30	0.749 (100)	0.254 (34)
	NF30	0.195 (26)	0.007 (1)
PC	H50	0.380 (100)	0.298 (78)
	HF50	0.160 (42)	0.002 (1)

括弧内は、拡散方程式回帰分析法で得られた普通コンクリートのセシウム拡散係数を100とした場合の比率。

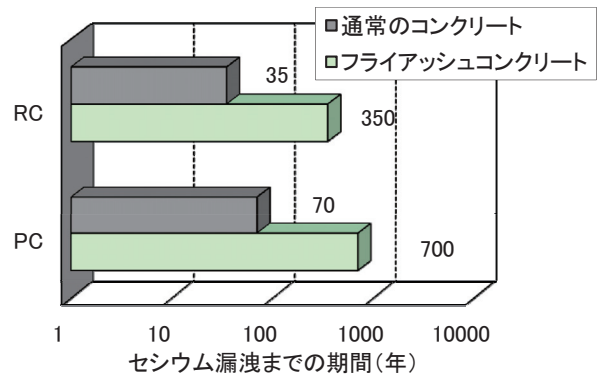


図4 セシウム漏洩年数の推定（部材厚30cm）

$$C_{out} = C_o \left\{ 1 - \operatorname{erf} \left( \frac{c}{2\sqrt{D_{Cs} \cdot t}} \right) \right\} \quad (2)$$

ここで、 $C_o$ ：コンクリート表面のセシウム濃度（=10）、 $c$ ：コンクリート部材厚（=30cm）、 $D_{Cs}$ ：セシウム拡散係数 (cm<sup>2</sup>/年) で、N30とH50は表3中の拡散方程式法( $D_{Cs,FE}$ )の値とし、この値の1/10の値をNF30とHF50の値（浸透深さ法 $D_{Cs,PD}$ の約10倍の値）として保守的に用いる、 $t$ ：時間（年）。

計算結果を図4に示す。セシウム漏洩年数は普通コンクリートで最短35年に対し、フライアッシュコンクリートで350年と10倍に延長されることが確認された。



### 3. 目地グラウトのセシウム浸透性評価

「エコマール」を構成する部材のうち、プレキャスト部材の目地部が弱点になるおそれがある。そこで、以下の要領にて実施した試験から、目地グラウトのセシウム浸透性を確認する。

#### (1) 試験方法

試験体は、予め作製した既設コンクリートを目地幅3cmを残して設置し、グラウトを注入して作製する（写真1）。目地グラウト試験体一覧を表4に示す。試験体GAは配合N30の普通コンクリートと水セメント比45%のグラウト（配合G）、試験体GFAと試験体GFBは配合NF30のフライアッシュコンクリートとフライアッシュを20%置換した水結合材比45%のグラウト（配合GF）の組み合わせとする。セメントは普通ポルトランドセメント、フライアッシュはⅡ種品、グラウト用混和剤は非膨張タイプ（使用量は結合材の1%とする）を用いる。

グラウト打込み後はラップで覆い20日間保管し、脱枠後、側面1面を除く5面をエポキシ樹脂で被覆する。この試験体について塩化セシウム水溶液への浸せきおよびセシウム濃度測定を2.(1)と同様の方法にて実施する。

#### (2) 目地グラウト中のセシウム浸透性状

EPMA法による測定結果の一例を図5に示す。図より、既設コンクリートとグラウトとの目地部界面でClおよびCsの浸透が先行することはなく、ClおよびCsともほぼ均一に浸透している様子がわかる。

EPMA法による測定結果をもとに、目地グラウトのCsおよびCl濃度分布を作成したものを図6および図7に示す。コンクリートの場合と同様に、フライアッシュを混和した配合GFについては、塩化物イオンおよびセシウムとも深さ方向への浸透が停滞している様子が見取れる。一方、コンクリートの場合と異なり、塩化物イオンの浸透深さとセシウムの浸透深さがそれほど変わらず、セシウムがより深くまで浸透することが確認される。

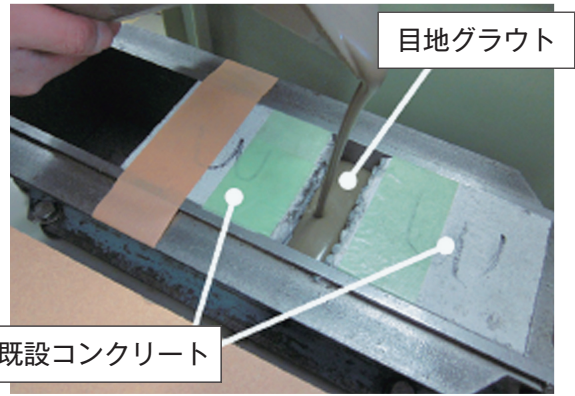


写真1 目地グラウト試験体

表4 目地グラウト試験体一覧

種別	配合名	養生方法	浸せき期間	
			6ヶ月	12ヶ月
目地グラウト	G	封緘	GA	---
	GF		GFA	GFB

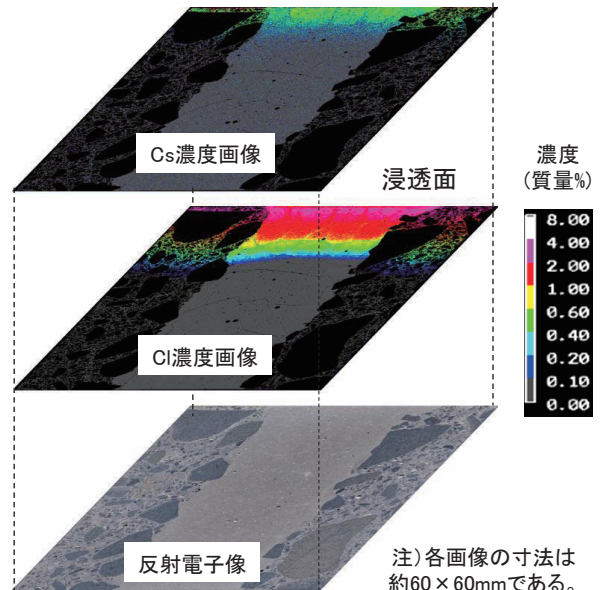


図5 EPMA法による測定結果（目地グラウト試験体GA）

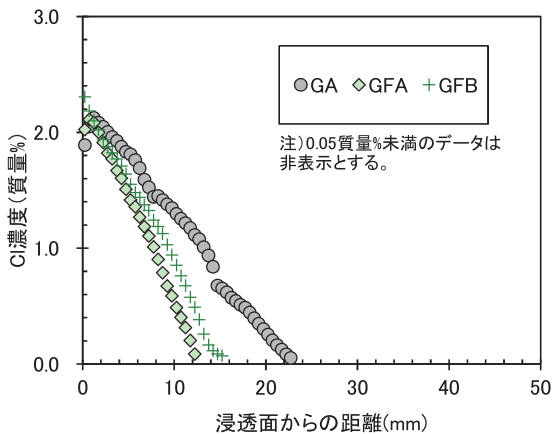


図6 目地グラウトにおける塩化物イオン濃度分布

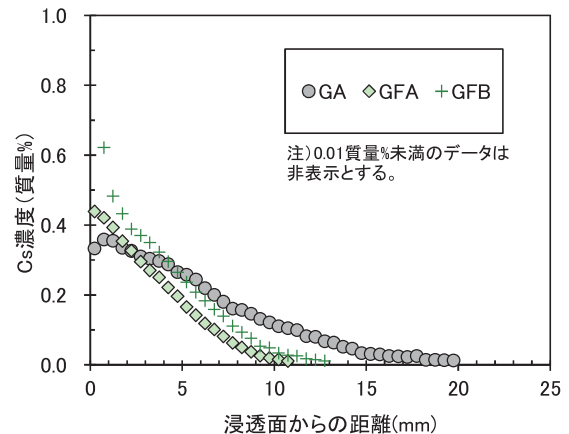


図7 目地グラウトにおけるセシウム濃度分布

(3) 目地グラウトへのセシウム浸透促進要因

前項(2)の事象発生の原因について詳細に検討するため、EPMA法の測定を行った供試体の片割れを用い浸透面から深さ10mmまでを微粉砕し、ICP-MS測定により全Cs量および可溶性Cs量を同定した。その結果を表3に示す。全Cs量に対する可溶性Cs量の割合はコンクリート試験体で41%であり、目地グラウトの85%に対して大幅に小さい。つまり、コンクリート中の骨材へ浸透したCs(図1参照)は固定化された状態にあると言える。

また、配合N30と配合NF30を対象に別途ペースト供試体を作製し、既往の試験方法<sup>4)</sup>を参考に粒径0.1mm以下に微粉砕した試料5gを20℃で10mmol/lのセシウム水溶液50ml(液固比10)に7日間浸せきさせ(1日1回ハンドシェイク)、0.45μmのフィルターにより固液分離し、ICP-MSを用いて液相中のCs量を測定した。セシウムの分配比 $R_d$ は式(3)によって算出する。

$$R_d = \frac{V}{M} \cdot \frac{C_0 - C}{C} \quad (3)$$

ここで、 $V$ :液相体積、 $M$ :固相重量、 $C_0$ :初期濃度、 $C$ :平衡後濃度。

その結果、ペーストに対するセシウムの分配比は0.5ml/g以下と小さいことが確認された(表6参照)。つまり、前項(2)で確認された事象はセシウムがグラウトやコンクリート中のペースト部に取着せず、主に骨材に取着することに起因すると言える。

(4) 目地部におけるセシウム漏洩年数

目地部におけるセシウム浸透解析は式(4)に示す2次元差分法にて検討する。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \quad (4)$$

ここで、 $C$ :セシウム濃度、 $D_x$ 、 $D_y$ :x,y方向のセシウム拡散係数( $\text{cm}^2/\text{年}$ )、 $t$ :解析時間(年)。

解析モデルは図8に示すように、幅3cmの目地グラウトの上下部分をコンクリートとし、1cm四方の正方形要素をx,y方向に十分な寸法で配し、表面要素からセシウムが浸透し、これ以外の外周要素は対称境界としたものである。コンクリートの拡散係数は配合NF30で保守的な値として $D_x = D_y = 0.075\text{cm}^2/\text{年}$ とする。目地グラウトの拡散係数は図7をもとに算出すると表7のようになるが、これについても保守的な値として配合Gでは $D_x = D_y = 0.834\text{cm}^2/\text{年}$ 、配合GFでは $D_x = D_y = 0.364\text{cm}^2/\text{年}$ とする。また、初期条件は $C = 0$  ( $x > 0, t = 0$ )、表面要素の境界条件は $C = C_0 = 10$ とする。

なお、フライアッシュコンクリートを用いた場合のセシウム浸透停滞が起きる以前の高拡散性の影響は数十年オーダーでは微々であることを事前確認している。

目地グラウトに配合Gを用いたケースにおける解析

表5 微粉砕試料によるセシウム分析結果

供試体名	Cs量 (mg/kg)		可溶性 / 全 (%)
	全	可溶性	
コンクリート	2140	870	41
目地グラウト	3070	2600	85

表6 セシウム取着試験結果

配合名	Cs濃度 (mg/l)		液相体積 (ml)	固相重量 (g)	分配比 (mg/l)
	初期	平衡後			
N30	1362	1362	50	5	0.0
NF30	1362	1301			0.5

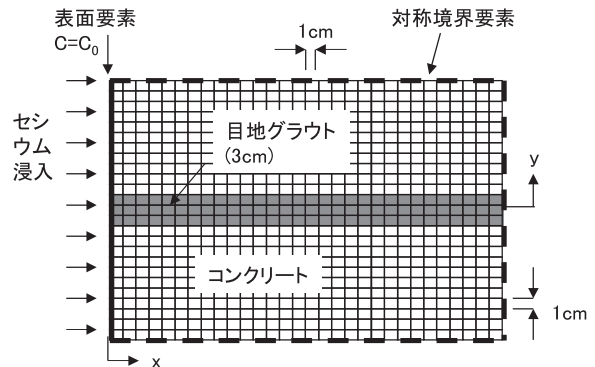


図8 セシウム浸透解析モデル

表7 セシウム拡散係数算出結果

種別	配合名	拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{年}$ )	
		拡散方程式法 $D_{Cs,FE}$	浸透深さ法 $D_{Cs,PD}$
目地	G	0.834	---
	GF	0.364	0.036

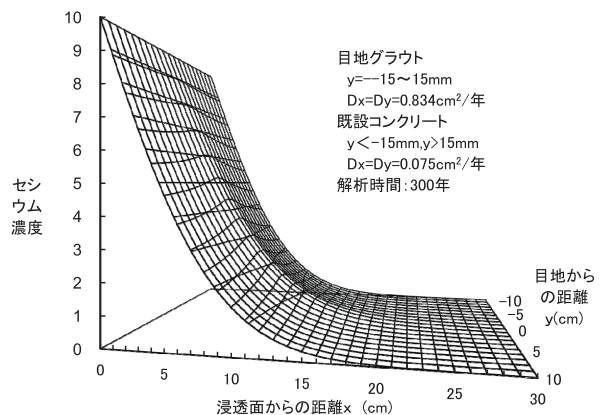


図9 目地部近傍のセシウム浸透解析結果

時間300年時点のセシウム浸透解析結果を図9に示す。図より、y座標中央に当たる目地グラウトの近傍で若干ではあるがセシウム濃度が高まっている様子がわかる。この現象を詳細に把握するため、各要素においてセシウム濃度 $C$ が0.001に初めて到達する解析時間を求めた結

果を図 10 に示す。これより、目地グラウトのセシウム高拡散性が目地周辺コンクリートへのセシウム浸透に悪影響を及ぼす傾向が認められるものの、解析時間 300 年時点での影響範囲は目地近傍 15cm 程度に留まることがわかる。プレキャスト壁部材の標準幅は 250cm であることからすると、目地グラウトとして配合 G を用いたとしても、大半の部分は目地部の影響を受けないと言える。さらに、目地グラウトがそれ単体のみで構成される場合と、上述のように複合体の場合にてセシウム漏洩年数を推定した結果を表 8 に示す。目地グラウトはそれ単体では早期にセシウムが漏洩するが、複合体となることでセシウム漏洩年数が相当に延長され、配合 G で 220 年、配合 GF で 250 年と推定される。

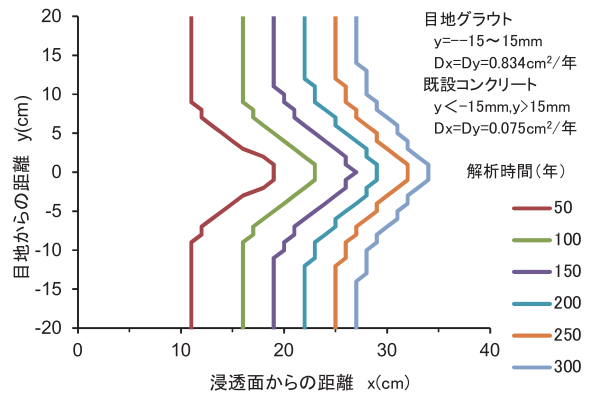


図 10 セシウムが各要素に到達する解析時間

表 8 目地グラウトにおけるセシウム漏洩年数の推定

種別	配合名	部材厚 30cm の推定漏洩年数 (年)	
		単体	複合体
目地	G	30	220
	GF	75	250

単体：目地グラウトのみとして式 (2) より推定した。

複合体：目地グラウトとプレキャスト PC 部材のコンクリートを組み合わせ、式 (4) より推定した。

#### 4. まとめ

今回実施した検討の範囲において、以下の結論を得た。

##### 【セシウム浸透挙動に関する再評価】

- ① セシウムは塩化物イオンに比べてコンクリート中の浸透が小さくなる。また、フライアッシュコンクリートを用いることにより、コンクリート中のセシウム浸透が抑制される。
- ② フライアッシュコンクリートを用いる場合は、セシウムの浸透停滞が生じる。浸透停滞後のセシウム拡散係数を求めると、フライアッシュコンクリートは普通コンクリートに比べ 1/100 程度以下の低拡散性を有すると評価される。
- ③ 上記より求めた拡散係数を用い（フライアッシュコンクリートに関しては保守的に普通コンクリートの 1/10 とする）、コンクリート製地下構造物におけるセシウム漏洩年数を推定した結果、通常コンクリートで最短 35 年に対し、フライアッシュコンクリートは 350 年と 10 倍に延長される。

##### 【目地グラウトのセシウム浸透性評価】

- ④ プレキャスト部材目地部のセシウム浸透試験を実施した結果、目地界面付近においてセシウムの浸透が先行することは認められないものの、コンクリートの場合と異なり、セシウムがより深くまで浸透する。これは、セシウムが骨材には吸着する一方でフライアッシュの有無によらずグラウトにはほとんど吸着しないことに起因する。
- ⑤ 目地部におけるセシウム浸透解析を行った結果、通常のグラウトを用いた場合、目地グラウト単体では最短 30 年となるのに対し、プレキャスト部材と目地グラウトとの複合体の場合は 220 年に延長される。このように、目地グラウトが高拡散性を有していても目地部が幅 3cm であればセシウム漏洩年数に与える影響は大幅に抑制される。また、その影響範囲も目地近傍 15cm 程度である。

以上より、プレキャスト PC 部材を活用したコンクリート製地下構造物「エコマモール」への汚染廃物の貯蔵を想定した場合、フライアッシュコンクリートを用いることで目標とするセシウム漏洩年数を概ね達成できることがわかった。ただし、目地部についてはフライアッシュを用いたグラウトであってもセシウム漏洩年数が 250 年（複合体として解析）と推定され、目標の 300 年を達成できなかったため、目地部に防水対策を講じるなどの対応を要する。

なお、フライアッシュを細骨材と置き換えて利用する場合には結合材量の増加に伴う自己収縮の増大が懸念されるが、材齢 28 日（20℃ 保管）における自己収縮ひずみは配合 NF30 で  $20 \times 10^{-6}$ 、配合 HF50 で  $200 \times 10^{-6}$  であり、それほど大きくならないことを別途確認している。詳細については、次の機会に報告したい。

#### 参考文献

- 1) 環境省ホームページ (<http://www.env.go.jp/>)
- 2) 北野勇一, 金田由久, 矢島典明, 中山良直, 塩井健太, 堀池一男: コンクリート中のセシウム拡散性試験, 川田技報 Vol.33, pp.31-36, 2014.1.
- 3) 後藤誠史, 常谷正己, 柳田洋明, 近藤連一: セメント硬化体中の塩素イオンの拡散, 窯業協会誌, 87 [3], pp.16-23, 1979
- 4) 日本原子力学会: 吸着分配係数の測定方法 (AESJ-SC-TR001), 2006.10.