

論文・報告

コンクリート中のセシウム拡散性試験

～フライアッシュコンクリートによる放射性物質の漏洩防止～

Cesium Ion Diffusion in Concrete by Submergence in Salt Water

北野 勇一^{*1}
Yuichi KITANO

金田 由久^{*2}
Yoshihisa KANEDA

矢島 典明^{*3}
Noriaki YAJIMA

中山 良直^{*4}
Yoshinao NAKAYAMA

塩井 健太^{*5}
Kenta SHIOI

堀池 一男^{*6}
Kazuo HORIIKE

コンクリート中の物質移行に関する既往の研究は、主に塩化物イオンおよび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、本研究では塩化セシウム水溶液中にコンクリートを浸せきし、塩化物イオンとセシウムの両方の浸透性を実験的に確認した。その結果、フライアッシュコンクリートは、塩化物イオンの拡散を抑制するばかりでなく、セシウムについても同様の効果が得られることを確認した。また、試験より求めた拡散係数を用い、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することで、フライアッシュコンクリートの低拡散性による効果を定量的に評価した。

キーワード：フライアッシュコンクリート、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、土壤などに付着、沈着した。

それから2年余りが経ち、除染が進み、今後、除染に伴う汚染物の一時保管や埋設処分が順次なされる予定である。この内、高濃度の放射性物質を含む汚染物（以下、放射性廃棄物という）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¹⁾。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(¹³⁷Cs)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、放射性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、主に塩化物イオンおよび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、本研究では、塩化セシウム水溶液中にコンクリートを浸せきし、塩化物イオンとセシウム(Cs)の両方の浸透性を実験的に確認する。

コンクリート製地下構造物としては、川田グループにて技術保有する「エコマモール」に着目し、鉄筋コンクリート(RC)とプレストレストコンクリート(PC)の両部材について検討する。また、塩化物イオンの拡散を抑制する方策としては、高炉スラグ微粉末やフライアッシュといった副産物をコンクリートに混入することが有効である^{2), 3)}。セシウムについても同様の効果が期待できると予想されるので、ここではフライアッシュコンクリートに着目し、試験により確認する。

上記の試験より得られた結果に基づき、セシウムが外部に漏洩するまでの年数(以下、漏洩年数)を数値計算により求め、フライアッシュコンクリートの低拡散性による効果を定量的に評価する。研究の成果は、通常の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漏洩年数を10倍に延長すること(通常コンクリート30年に対し、フライアッシュコンクリート300年を想定)を目指に置く。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、放射性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(¹³⁷Cs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

*1 川田建設(株)技術部技術課 課長

*2 株式会社太平洋コンサルタント 電力・原子力技術部電力技術グループ

*3 株式会社ジェイペック 資源リサイクル事業部 部長

*4 川田建設(株)技術部 次長

*5 川田建設(株)技術部技術課

*6 川田建設(株)東日本統括支店北関東事業所那須工場品質管理課 課長

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。

2. 「エコマモール」について

エコマモールは、雨水貯留槽として2004年に川田建設が開発し、国土交通省新技術情報提供システムに登録されている技術である⁴⁾。本技術は、プレキャスト・PC技術を活用することで、急速化施工や大空間確保が可能となっている(写真1)。プレキャスト接合部はグラウト材を詰め、プレストレス導入により一体化を図るとともに、水密性を高めている。

エコマモールを放射性廃棄物の保管のためのコンクリート製地下構造物として採用する場合には、施設内の運搬をフォークリフトで行え、廃棄物の搬入口を一箇所にでき、搬入口からの放射線漏れや雨水浸入の対策を万全にできるものと考えられる(図1)。また、屋根部材は、長支間(10m)用の屋根梁と、短支間(5m)用の

屋根版がある。両者を組み合わせることによって、廃棄物量や敷地形状に適応した施設の構築が可能と考えられる(図2)。

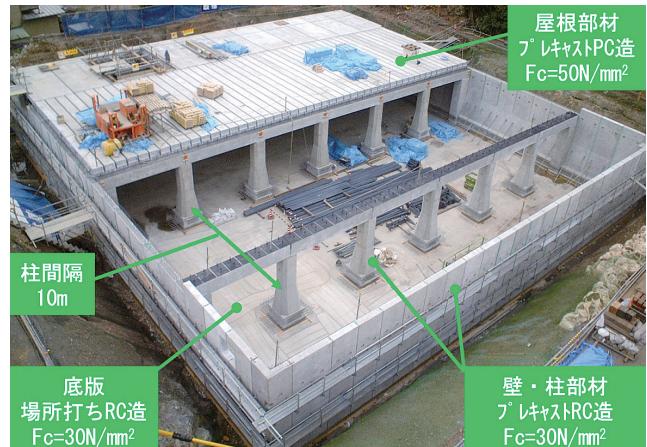


写真1 「エコマモール」 説明図

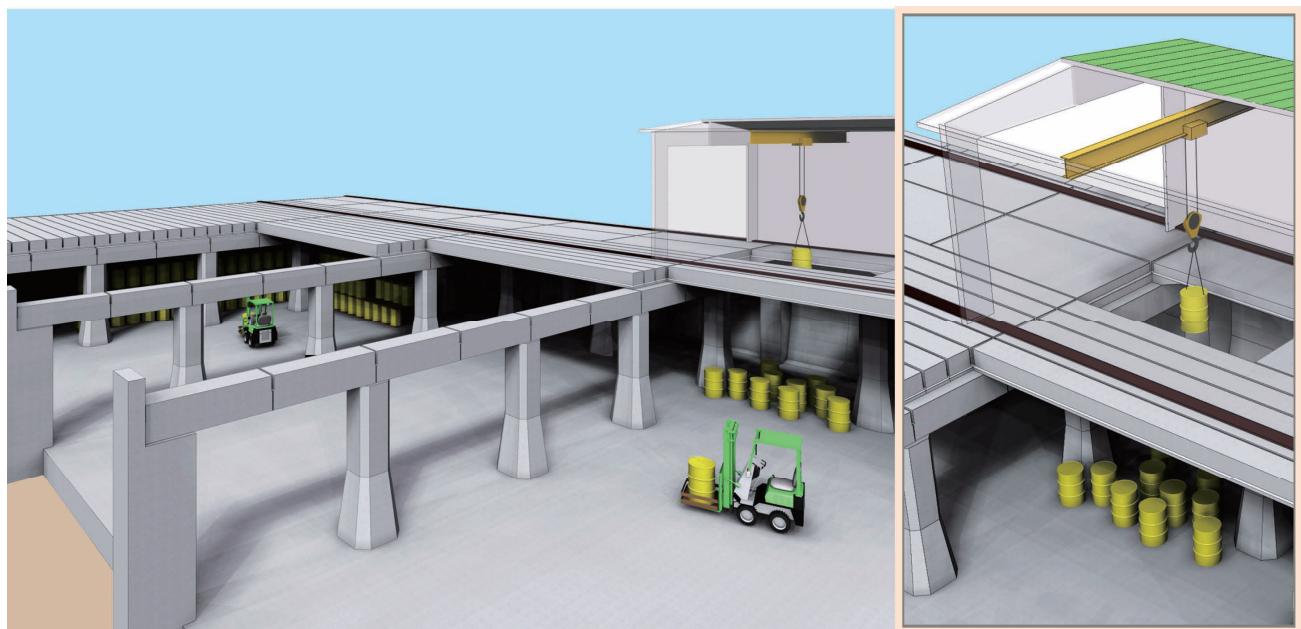


図1 放射性廃棄物の保管を想定した「エコマモール」CG図

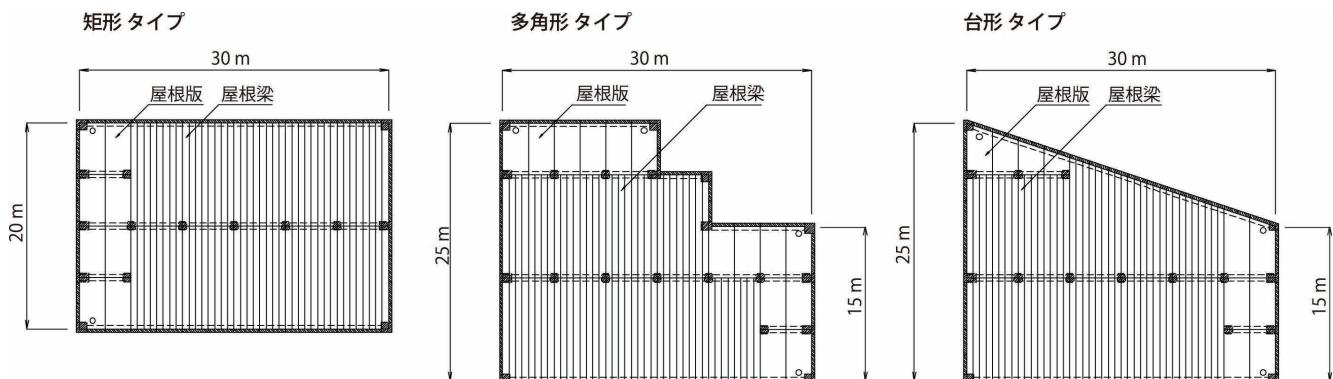


図2 敷地形状に柔軟に適応する「エコマモール」

表1 フライアッシュの品質

試料名	二酸化けい素(%)	湿分(%)	強熱減量(%)	密度(g/cm ³)	45μmふるい残分(%)	ブレーン値(cm ² /g)	フロー値比(%)	活性度指数(%)	
								28日	91日
II種品	60.7	0.1	3.0	2.24	4	4460	106	84	103
原粉	60.8	0.0	3.8	2.19	30	3820	99	81	93
JIS II種	45.0以上	1.0以下	5.0以下	1.95以上	40以下	2500以上	95以上	80以上	90以上
JIS IV種					70以下	1500以上	75以上	60以上	70以上

表2 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 ³)					圧縮強度(N/mm ²)	
			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)
FC30	N30	50	165	330	0	849	967	---	47.6
	NF30				66	769		---	48.5
FC50	H50	38.4	162	422	0	765	980	56.3	---
	HF50				84	663		58.1	---

3. セシウム拡散性に関する試験

本試験は、2章に示す「エコマモール」を構成するRC造Fc=30N/mm²(FC30)のコンクリートと、PC造Fc=50N/mm²(FC50)のコンクリートについて実施する。

(1) 実験方法

a) 使用材料およびコンクリート配合

セメントは、FC30に普通ポルトランドセメント、FC50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、火力発電所より排出される副産物であり、本実験では原粉（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。フライアッシュとして通常流通するII種品を用いないのは、環境性や社会貢献性に最大限配慮するためである。今回用いる原粉の品質は、II種品に比べフロー値比や活性度指数がやや劣るものJIS IV種には適合するものである（表1）。また、PC用モルタルとしてのフレッシュ性状や強度特性及び塩分浸透性状は、II種品と比べても遜色がなく、かつ、品質変動の影響も小さいことが確認されている⁵⁾。細骨材は碎砂、粗骨材は碎石、混和剤は高性能AE減水剤とAE剤（フライアッシュ用ではないもの）を用いる。

コンクリート配合は、通常のコンクリートである「N30」と「H50」、フライアッシュの添加率を20%としたフライアッシュコンクリート「NF30」と「HF50」の4配合とする。FC30は水セメント比50%、FC50は同38.4%である。混和剤の使用量は、所定のスランプ（通常のコンクリート12±2.5cm、フライアッシュコンクリート15±2.5cm）および空気量（4.5±1.5%）を得ら



写真2 塩化セシウム水溶液への浸せき中の試験体

れるように調整する。また、各配合とも、所定の強度を得られるものである（表2）。

b) 試験体の作製と塩化セシウム水溶液への浸せき

試験体はφ100×200mmの円柱とし、前述のコンクリートを打設する。試験体の養生は、FC30で水中7日、FC50は最高温度45℃を6時間保持した蒸気養生とする。その後、材齢28日まで封緘状態にて保管し、打設面側5cmを切断し、この切断面以外をエポキシ樹脂で被覆する。

作製した試験体は、急激な吸水を抑制するため、イオン交換水に2日間浸せきする。引き続き、塩化セシウム水溶液に試験体を6ヶ月間浸せきする（写真2）。この水溶液は、セシウムおよび塩化物イオンの濃度が3.0%になるように、塩化セシウム及び塩化ナトリウムを水に溶解して調整する。

上記の作業は、いずれも20℃の室内にて実施する。

表3 EPMA面分析結果

測定元素 と濃度	FC30		FC50	
	通常のコンクリート N30	フライアッシュコンクリート NF30	通常のコンクリート H50	フライアッシュコンクリート HF50
塩化物イオン (質量 %)				
セシウム (質量 %)				

※図示した画像の大きさは概ね縦30mm×横35mm、上側が浸透面となるようにした。また、セシウムの最大浸透深さを白点線にて表示した。

c) セシウムおよび塩化物イオン濃度の測定

浸せき終了後、試験体から浸透面中央部の幅75mm×浸透面からの深さ75mmの試料を切り出し、JSCE-G574 (EPMA法によるコンクリート中の元素の面分析方法(案))⁶⁾に準拠し、セシウムおよび塩化物イオン濃度を測定する。標準試料としては、CsI(セシウム用)とHalite(塩化物イオン用)を用いる。

(2) コンクリート中へのセシウム浸透状況

各試験体のセシウムおよび塩化物イオンの浸透状況を表3に示す。ここで、EPMA面分析はペーストに相当する部分を抽出した。表より、コンクリートの種別(FC30, FC50)に関わらず、通常のコンクリートに対し、フライアッシュコンクリートを用いることでセシウムおよび塩化物イオンの浸透が抑制されることがわかる。また、浸せき溶液中の濃度はセシウムおよび塩化物イオンとも同一(3%)としたことからすると、コンクリート中の浸透性は塩化物イオンよりもセシウムの方が小さいといえる。

次に、EPMA面分析データを浸透深さ方向に0.5mm間隔で平均し、コンクリート中のセシウムおよび塩化物イオンの濃度分布を作成したものを図3と図4に示す。ここで、各元素の浸透深さを明示するため、内在濃度を考慮し、セシウムで0.01%未満、塩化物イオンで0.05%未満の濃度プロットを削除した。図より、セシウムおよび塩化物イオンの濃度分布は、前述の表3の傾向と概ね一致することがわかる。しかしながら、塩化物イオンは浸透面から徐々に濃度が低下してコンクリート内部まで

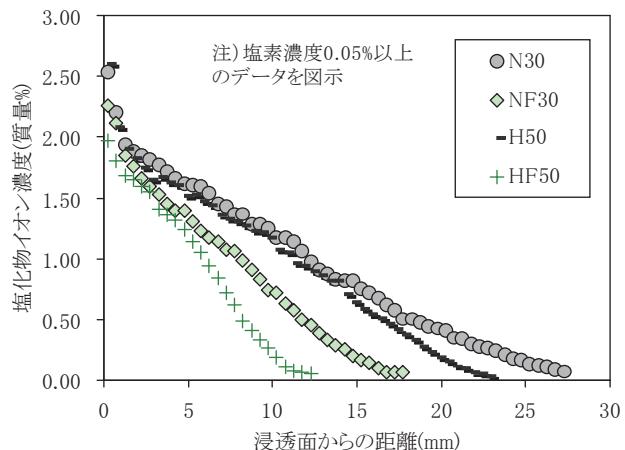


図3 コンクリート中の塩化物イオン濃度分布

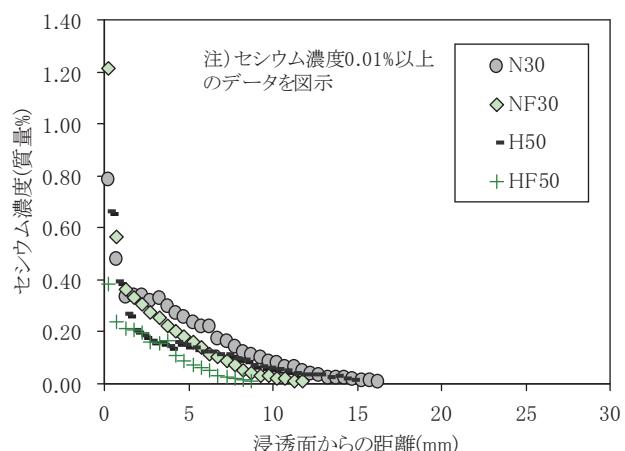


図4 コンクリート中のセシウム濃度分布

深く浸透するのに対し、セシウムは浸透面から約1mmの範囲で濃度が急激に減少して浸透が抑制されているとも読みとれる。この点については、コンクリート中にセシウムが強く吸着されたとも考えられ、今後の課題とする。

(3) セシウム拡散係数

3.(2)節に示したセシウムおよび塩化物イオン濃度分布から、フィックの拡散方程式の解で回帰し、拡散係数を求めた結果を表4に示す。表より、セシウムおよび塩化物イオン拡散係数は、フライアッシュコンクリートを用いることで、通常のコンクリートの1/2以下に低減する。このことから、フライアッシュコンクリートは、塩化物イオンの拡散を抑制するとともに、セシウムについても同様の効果が得られるといえる。

(4) セシウム漏洩年数に関する数値計算

ここでは、「エコマモール」を構成する部材のうち、外周部材で最小となる30cmのケースについて検討する(表5参照)。セシウム漏洩年数は、式(1)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0.0001に到達するまでの時間として求める。

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

ここで、 C_o :コンクリート表面のセシウム濃度(=1), c :コンクリート部材厚(=30cm), D_{Cs} :セシウム拡散係数(表4による、 $\text{cm}^2/\text{年}$), t :時間(年)

数値計算の結果を図5に示す。推定年数は、通常コンクリートで最短35年(FC30)に対し、フライアッシュコンクリートは140年(FC30)と4倍に延長される。

4. プレキャスト接合部のセシウム浸透試験

「エコマモール」を構成する部材のうち、プレキャスト部材に関しては、その接合部が弱点になるおそれがある。そこで、プレキャスト接合部(FC30の壁部材を対象とする)のセシウムの浸透性状を確認する。

(1) 実験方法

試験体は、接合部の幅を3cmとし、その両脇に既設部を設置し、そこにグラウトを注入して作製する(写真3)。試験体は2体用意し、試験体Aは配合N30の既設部と水セメント比45%のグラウト(配合G)、試験体Bは配合NF30の既設部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。また、配合Gおよび配合GFとも、所要のレオロジーと強度を有する(表6)。ただし、今回、20℃の室内実験であるため、フ

表4 拡散係数の算出結果(単位: $\text{cm}^2/\text{年}$)

	塩化物イオン 拡散係数 D_{Cl}		セシウム 拡散係数 D_{Cs}	
	FC30	FC50	FC30	FC50
通常のコンクリート	2.240	1.450	0.749	0.380
フライアッシュコンクリート	0.912	0.620	0.195	0.160
比率	41%	43%	26%	42%

表5 「エコマモール」外周部材厚の例

部材の種類と名称	コンクリート		部材厚 (最小)
	FC30	FC50	
プレキャスト 部材	屋根梁		○ 50cm
	屋根版		○ 30cm
	壁部材	○	30cm
場所打ち	底版	○	75cm

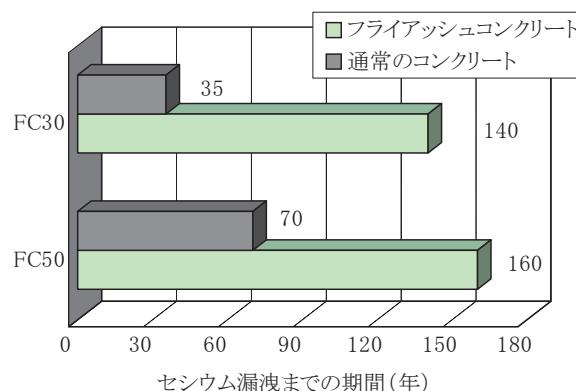


図5 セシウム漏洩年数の推定(部材厚30cm)

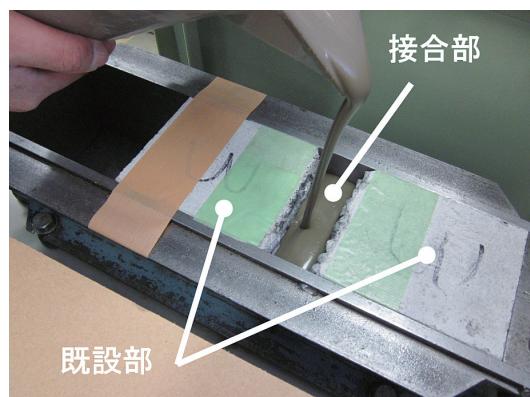


写真3 プレキャスト接合部用試験体の作製状況

表6 グラウトのレオロジーおよび強度試験結果

配合名	JP漏斗 流下時間 (秒)	圧縮強度(N/mm^2)		
		7日 (封緘)	28日 (封緘)	91日 (封緘)
G	9.90	43.9	54.1	65.0
GF	9.73	31.9	48.9	65.5
規格値	6~14	30N/mm ² 以上		

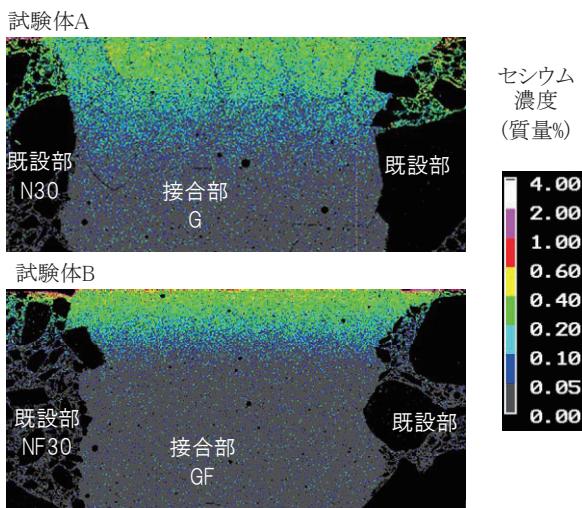


図6 EPMA面分析によるセシウム浸透状況

イアッシュを混入した配合GFについては、冬期に材齢7日で所定の強度を得られないおそれがあり、注意を要する。

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（材齢28日より6ヶ月間）およびセシウム濃度測定を3.(1)節と同様の方法にて実施する。

（2）実験結果

EPMA面分析によるセシウム浸透状況を図6に示す。両試験体とも、既設部と接合部の界面でセシウムの浸透が顕著になる傾向は認められない。また、接合部に着目すると、試験体Bの方がセシウムの浸透が抑制される。

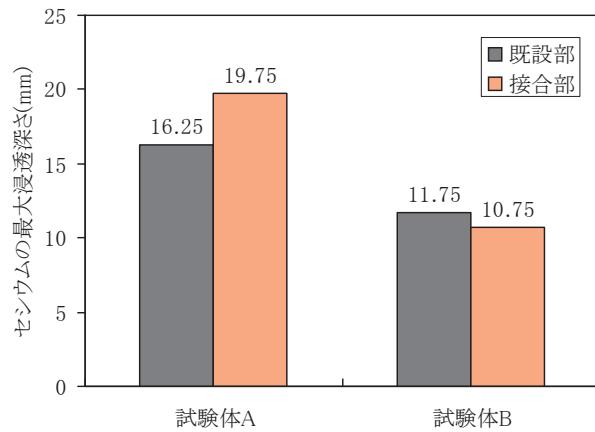
セシウム濃度分布を求め、セシウムの最大浸透深さ（濃度0.01%以上となる浸透面からの距離の最大値）を整理した結果を図7に示す。セシウムの最大浸透深さは、試験体Aでは既設部よりも接合部の方が大きく、一方、試験体Bでは接合部の方が既設部より小さくなる。

以上より、接合部に充てんするグラウトについても、フライアッシュを混入することで、フライアッシュコンクリートを用いたプレキャスト部材（FC30）と同等のセシウムの低拡散性を有することが確認された。

5.まとめ

本研究を通じ、以下の結論を得た。

- ① セシウム拡散性試験を行った結果、セシウムおよび塩化物イオンの拡散係数は、フライアッシュコンクリートを用いることで、通常のコンクリートの1/2以下に低減する。
- ② 上記試験より求めた拡散係数を用い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140年と4倍に延長され



※既設部については、図4の結果を用いた。

図7 セシウムの最大浸透深さ

る。

- ③ プレキャスト接合部のセシウム浸透試験を実施した結果、接合部の界面でセシウムの浸透が顕著になることは認められない。また、フライアッシュコンクリートを用いたプレキャスト部材と同等のセシウム低拡散性とするには、接合部に注入するグラウトにフライアッシュを混入する必要がある。

なお、結論②に関しては、セシウムの漏洩年数を10倍に延長するという目標を達成することはできなかった。これは、今回の実験において、塩化セシウム水溶液への浸せき開始材齢が28日であり、フライアッシュコンクリートにおいてポゾラン反応の進行が不十分であったことが影響している可能性もある。そこで、現在、浸せき開始材齢や浸せき期間を変化させた実験に着手し、引き続き、コンクリート中のセシウム拡散性について検討を進める予定である。

参考文献

- 1) 環境省ホームページ (<http://www.env.go.jp/>)
- 2) 土木学会：高炉スラグ微粉末を用いたコンクリートの施工指針、1996.6.
- 3) 土木学会：フライアッシュを用いたコンクリートの施工指針（案）、1999.4.
- 4) 国土交通省新技術情報提供システム：NETIS登録No.HR-050005-A (<http://www.netis.mlit.go.jp/>)
- 5) 北野勇一、塩井健太、堀池一男、矢島典明：フライアッシュの品質がPC用モルタルの性状に及ぼす影響、コンクリート工学年次論文集 Vol.35, No.1, pp.85-90, 2013.7.
- 6) 土木学会：2007年制定コンクリート標準示方書【規準編】土木学会規準および関連規準、2007.5.