パルスパワー技術によるコンクリート瓦礫の 除染・再利用に関する研究

坂本 浩幸^{1,*}, 赤木 洋介², 山田 一夫³, 舘 幸男⁴,
福田 大祐⁵, 石松 宏一⁵, 松田 樹也⁵, 齋藤 希⁵,
上村 実也⁵, 浪平 隆男⁵, 重石 光弘⁵

Decontamination of Radioactive Concrete Waste and Reuse of Aggregate Using Pulsed Power Technology

Hiroyuki SAKAMOTO^{1,*}, Yosuke AKAGI², Kazuo YAMADA³, Yukio TACHI⁴,
Daisuke FUKUDA⁵, Koichi ISHIMATSU⁵, Mikiya MATSUDA⁵, Nozomi SAITO⁵,
Jitsuya UEMURA⁵, Takao NAMIHIRA⁵ and Mitsuhiro SHIGEISHI⁵

¹Taiheiyo Consultant Co., Ltd., 2-27-8 Higashinohonbashi, Chuo-ku, Tokyo 103-0004, Japan

²Mitsubishi Materials Co., 1002-14 Mukoyama, Naka-shi, Ibaraki 311-0102, Japan

³National Institute for Environmental Studies, 10-2 Fukasaku, Miharu-town, Fukushima 963-7700, Japan

⁴Japan Atomic Energy Agency, 4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Ibaraki 319-1194, Japan

⁵Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto-shi Kumamoto 860-8555, Japan

(Received March 17, 2017; accepted in revised form February 13, 2018; published online May 14, 2018)

Concrete debris contaminated with radioactive cesium and other nuclides has been generated by the accident in the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. Moreover, there is concern that a large amount of radioactive concrete waste will be generated by the decommissioning of nuclear power plants in the future. Although conventional techniques are effective in decontaminating concrete with flat surfaces such as floors and walls, it is not clear what techniques to apply for decontaminating radioactive concrete debris. In this study, focusing on a pulsed power discharge technique, fundamental experimental work was carried out and the applicability of the technique to decontaminating radioactive concrete debris associated with the accident in the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant was evaluated. The decontamination of concrete by applying the aggregate recycling technique using the pulsed power discharge technique was evaluated by measuring the radioactivity concentration of the divided aggregate and sludge from the contaminated concrete using a Ge-semiconductor detector. It indicated a reduction of the radioactivity concentration in the recovered aggregate and an increase in the radioactivity concentration in the sludge. These findings suggest that the division of the contaminated concrete debris into aggregate and sludge could result in the decontamination and reuse of the aggregate, which would reduce the amount of contaminated concrete debris.

KEYWORDS: *radioactive waste, contaminated material, decontamination, radioactive concrete waste, pulsed power technology, cesium, Fukushima Dai-ichi nuclear power plant, nuclear accident, recycled aggregate*

I. 緒 言

福島第一原子力発電所では、事故に伴う炉心溶融および水素爆発等によってセシウム(以下、「Cs」と記す)等の放射性物質によって汚染されたコンクリート系の廃棄物が多量に発生している¹⁾。それらは大きく2つに分類することができる。1つは原子炉建屋の爆発によって周囲に飛散し

¹ (株)太平洋コンサルタント

² 三菱マテリアル(株)

³ (国研)国立環境研究所

⁴ (国研)日本原子力研究開発機構

⁵ (国大)熊本大学

* Corresponding author, E-mail: Hiroyuki_Sakamoto@taiheiyo-c.co.jp

た様々な形状をもつ「瓦礫」であり、もう1つは、将来の原子炉建屋等の廃止措置に伴って生じる「解体廃棄物」である²⁾。

爆発等によって生じた瓦礫は多様な大きさと形状を有しており、爆発前に建屋内雰囲気放出されたCs等の核分裂生成物の付着、さらに飛散後の放水、冷却水の注入や降雨等の影響により浸透したものと考えられる²⁾。Csを中心とした表面汚染が主と推定されるが、その他の核種の存在、内部への浸透についても考慮する必要がある。これを踏まえれば、個々のコンクリート系廃棄物の汚染状況の把握や汚染レベルによる分別方法等の手法開発が今後の重要な課題になると考えられる。また、除染・再利用を考える場合には、複雑な形状をもつ瓦礫に対して、既存技術の適用が困難であることから、このような形態の瓦礫に対する技術開発も重要な課題となると考えられる³⁾。

建屋等の解体廃棄物は、壁や床などの原状を保っているものと爆発等の影響で原状を留めていないものの双方が想定される点に加え、高濃度汚染水との長期間に渡る接触による内部浸透状況も含め、より多様な核種による汚染と幅広い汚染レベルを考慮する必要²⁾がある。これらのうち原状を保っているコンクリートに対しては、従来の除染・解体技術の適用が可能であると考えられる。例えば、床や壁などの平滑な面に対しては、既往の物理的・機械的な除染技術が適用可能であり、これらの技術については諸外国での廃止措置において、遠隔での操作事例も含めて多数の実績がある⁴⁾。その他の解体、廃棄体化等の技術についても、基本的には従来技術の適用・応用により検討がなされるものと思われる。これらの建屋等の解体廃棄物に対する最大の課題は、汚染状況(汚染核種、汚染レベルや浸透深さ等)を予測・把握することであり、その状況に応じて除染、解体、廃棄体化、処分までを含めた最適な検討がなされる必要がある。一方、原状を保っていないコンクリートに対しては、複雑形状の汚染した表面のみを取り除く適切な技術が現状では存在しない。

福島第一原子力発電所から生じるコンクリート系放射性廃棄物の合理的な処理・処分を検討するうえで、複雑な形状を有し、かつ、すでに多量に発生しており、今後さらに発生する可能性が想定される瓦礫状のコンクリート廃棄物への対策は重要な検討課題である。放射性Csは、微細な粘土粒子に吸着^{5,6)}しセメントペーストに固定されていると考えられる。そこで、複雑な形状を有する瓦礫への除染・再利用技術としてパルスパワーに着目し、その適用性について評価を実施した。パルスパワー技術は、極短時間に大電力を与えることで物質を絶縁破壊に至らしめ、また放電プラズマによる大膨張と高熱を発生させ、その結果生じる衝撃によって、セメントペーストと骨材を分離するものであり、例えば、建設・土木分野でセメント骨材の再利用の観点で検討されてきた技術である^{7~11)}。これまでに廃コンクリート塊より粗骨材を分離、回収するための高度再

生処理への適用が検討されてきた。このパルスパワーの適用によって、既往の単純な機械的破碎方法では困難とされていた骨材に残存するモルタル付着分を大幅に低減させ、骨材には損傷を与えず、本来の品質を損なわないままに骨材を分離回収可能となっている^{7~11)}。

本研究では、実際の瓦礫に近いと考えられる福島第一原子力発電所の事故で主に放射性Csによって低濃度に汚染したコンクリート試料を対象としたパルスパワーによるコンクリートの除染性能の評価試験を実施し、実際のコンクリート系廃棄物への適用を想定した場合の効果や課題を整理した。具体的には、放射性Csの分布・回収率やセメントと骨材の分離性能等の基礎データを取得し、放射性Csの浸透状況との関連も含めてその除染・再利用の可能性を分析するとともに、今後の検討課題を整理した。

II. コンクリートの除染・再利用方法の検討

1. コンクリートの除染技術

既存のコンクリート除染技術は、床や壁等のフラットな表面形状を対象としたものがほとんどであり、表層や浸透層を物理的・機械的に切削、破碎して除染するものが多い。これらの技術は、諸外国の原子炉解体や除染作業での実績があり、遠隔装置化され実証されている技術である⁴⁾。一方で、瓦礫等の複雑形状の廃棄物を除染する技術は事例が少なく、機械的除染では容易に近づけるフラットな表面に対して有効で、裂け目、接続部や接近を制限された場所の除染は難しく、あるいは不可能であるとしている⁴⁾。コンクリートの形状に関わらず適用できる除染技術は現状では存在しない。

一般産業界では、廃コンクリートを粉碎し、機械的すりもみ法による骨材を分離回収する技術が実用化¹²⁾されており、コンクリート中でのCs等の核種分配がセメントペーストと骨材とで大きく異なり、セメントペーストに主に存在する状況であれば、分離回収技術により除染・再利用を行うことができる可能性がある。また、高品質な骨材を回収して発電所内で再利用することにより、新たに建設する施設のために発電所内に持ち込む資材を低減することが可能となる。

破碎による骨材の分離回収技術は、機械的なすりもみ法^{13~15)}とパルスパワー放電^{7~11)}による方法に大別される。機械的なすりもみ法には粗砕したコンクリートをそのまま破碎する偏心ロータ方式¹²⁾やスクリー磨砕方式¹³⁾と事前に加熱した後破碎する加熱すりもみ方式¹⁴⁾などがある。機械的なすりもみ法は、一般産業界で実用化されており工業規模での処理実績を有している。加熱すりもみ法は、コンクリートを事前に300℃程度に加熱してセメントペースト部分を脆弱化させた後に機械的なすりもみを実施することで、セメントペーストの付着量の少ない高品質な骨材を回収することができる。機械的なすりもみ法は、破碎したコンクリートをすり合わせることで脆弱なセメントペースト

と骨材を分離する技術であるが、コンクリートの汚染部分と非汚染部分の摩擦によって二次汚染が発生する可能性がある。また、乾式処理されることから汚染した粉塵の発生に対する対応が必要となる。

一方、パルスパワー放電による骨材の回収技術は現時点で工業規模での実績はないが、コンクリートをすり合わせることなくセメントペーストと骨材を分離することが可能であり、水中で処理されることから汚染した乾燥粉塵が飛散することはなく湿潤状態のスラッジとして微粉を回収することができる。ただし、水を使用することにより2次汚染水が発生する可能性があることについては留意が必要となる。

2. パルスパワー放電によるコンクリートの除染の原理

パルスパワー放電によるコンクリートの破碎装置の概念を Fig. 1 に示す。

コンクリートにパルスパワーを印加すると、その内部の無数の間隙中で放電が発生し、そこにプラズマが発生する。次にその無数のプラズマへ大電流が流れることで、放電プラズマ路が形成され、その結果としてコンクリート中のセメントペーストが脆弱化する。さらに、その放電プラズマ路が大電流であるため瞬時に加熱・膨張することで衝撃波が形成される。この衝撃波がコンクリート内部に進展すると、衝撃波はセメントペーストと骨材の界面にて透過波および反射波となり、そこに引張応力が発生してセメントペーストと骨材が界面できれいに分離されることになる。このパルスパワー技術の適用によって、既往の単純な機械的破碎方法では困難とされていた骨材に残存するモルタル付着分を大幅に低減させ、骨材には損傷を与えず、本来の品質を損なわないままに骨材を分離回収可能としている。

福島第一発電所内の瓦礫については、コンクリートの表面に Cs 等が付着し、その後の放水、冷却水の注入や降雨等の影響によって内部へも浸透しているものと思われる。

Fig. 1 Conceptual diagram of the concrete fragmentation apparatus based on the pulsed power discharge underwater

コンクリート内部の間隙中を拡散する過程で、Cs に対する高い吸着性をもち比表面積が大きい微細な粘土粒子等に吸着されるため、微細な粘土粒子に比べ緻密で比表面積の小さい骨材に吸着している割合は Cs に対して高い吸着性を有する特殊な骨材を除いて低いと考えられる。ここで、パルスパワーによって骨材とセメントペーストをきれいに分離することができれば、汚染密度の低い骨材と Cs が吸着していると考えられる粘土粒子を含むセメントペーストを分離することが可能になると考えられる。一般に、コンクリートはその質量の 70% 以上を骨材が占めており、汚染コンクリートから汚染していない骨材取り出すことで廃棄物を減容できる可能性がある。

パルスパワーによる骨材再生では、Fig. 1 に示すように処理対象とするコンクリートを金属製の籠に収納して水中で処理される。網籠様の陰極と銅線の陽極の間にパルス電流が流れ、破碎された骨材やセメントペーストの内、網目より小さくなった粒子は網目から水槽の底に落下し、落下した後はパルスによって発生するエネルギーをほとんど受けなくなる。機械的骨材再生技術では放射性 Cs で汚染した粉塵の発生が避けられないが、パルスパワーによる骨材再生では粉塵の発生はなく、放射性 Cs で汚染した微粉はスラッジとして容易に回収できると考えられる。また、パルスパワーによる骨材とセメントペーストの分離技術では、従来実施されている機械的方法に比べ、セメントペーストの付着の少ない高品質な骨材を再生(回収)することが可能であり、回収される骨材の Cs 濃度を著しく低減できる可能性がある。なお、初期の汚染状態あるいは除染過程での骨材への Cs の吸着可能性を考えた場合、上記のような骨材の再生と再利用が困難になることも考慮する必要があるが、このような場合には、骨材を廃棄体の充填材に使用することより発生する廃棄体の減容化に貢献することも重要である。

III. 試験方法

除染試験は、福島第一発電所の事故に伴って汚染した道路用側溝のコンクリート製の蓋と、東日本大震災の津波の到来に伴って瓦礫状になった後、福島第一発電所の事故に伴って汚染したコンクリートを対象に実施した。コンクリート試料の汚染状況は、イメージングプレートによる放射能分布測定により明らかにした。コンクリートの汚染状況の測定は、比較的平滑な破断面の表面汚染の状況の評価するとともに、コンクリート試料の切断面の放射能の分布を測定することによって放射性 Cs のコンクリート内部への浸透状況を確認した。また、パルスパワーによってコンクリート試料を骨材とスラッジに分離・回収し、回収した骨材、スラッジおよび処理水は、それぞれ Ge 半導体検出器による波高分光分析によって放射能濃度を測定した。分離した骨材、スラッジおよび処理水に含まれる放射性 Cs の割合からパルスパワーの骨材分離による放射性 Cs の除

染性能を回収した骨材の初期放射能に対する割合(以下、存在割合)と質量(以下、回収率)の関係として評価した。

1. 処理対象とした試料

道路用側溝のコンクリート製の蓋は、道路の側溝の蓋として使用されていたときにコンクリートの上面より汚染したと考えられ、主に上面のみ汚染が確認されている。コンクリートは、健全な状態で事故発生後約3年半の期間道路の側溝の蓋として風雨にさらされていた。コンクリートの汚染している上面が10×10 cmとなるようにコンクリートカッターを使用して切断し、除染試験に使用した。

瓦礫状のコンクリートは、東北地方太平洋沖地震に伴い発生した津波によって福島第一発電所サイト外の海岸付近のコンクリート建造物が破壊され、瓦礫状になった後に汚染したと考えられる。津波によって破壊されたコンクリートは、不定形で外力によって物理的に壊されたコンクリートの破断面(以下、破断面と記す)を含む試料全体の汚染が確認されている。瓦礫状のコンクリートは、事故発生後約4年半の期間、瓦礫状となったコンクリート構造物の周辺で風雨にさらされていた。瓦礫状のコンクリートは、コンクリート製の蓋の10×10 cmと同程度の質量(約2.4 kg程度)となるように切断して試験に使用した。

2. コンクリート試料の汚染状況の評価

除染試験に用いるコンクリート試料の放射性Csの分布状況(浸透状況)は、イメージングプレートを用いたベータ線オートラジオグラフィーを使用して測定した。放射能の分布状況は、津波によって瓦礫状になった後に汚染したコンクリートの比較的平らな破断面および切断機により切断したコンクリートの切断面の測定を実施した。

(1) イメージングプレートによる放射能分布測定方法(破断面の測定)

イメージングプレートを使用したオートラジオグラフィー法によりコンクリート試料破断面の放射性Csによる汚染状況を測定した。鉛の遮蔽体内にイメージングプレートを設置し、イメージングプレート上に比較的平らな破断面を置いて所定時間露光を実施した。

(2) イメージングプレートによる汚染の浸透状況の測定(切断面の測定)

イメージングプレートを使用したオートラジオグラフィー法によりコンクリート試料内部に浸透した放射性Csの分布状況を測定した。鉛の遮蔽体内にイメージングプレートを設置し、切断したコンクリート試料の切断面をイメージングプレート上に置いて所定時間露光を実施した。

測定装置は、バリアブルイメージアナライザー Typhoon (Amersham Bioscience 社製)を使用した。ピクセルサイズは25 μm、試料表面の露光時間は2 h、試料断面の露光時間は240 hとし、イメージングプレートはBAS IP SR

2040 E 28-9564-77を使用した。

3. パルスパワーによるコンクリートの破砕試験

パルスパワーによるコンクリートの破砕状況は、コンクリートの強度や骨材、セメントペーストの品質および劣化状況等によって異なり、印加する電圧とパルスのショット回数および網籠電極の目開きによって変化するため、これらをパラメータとした。回収した骨材およびスラッジの質量は、回収した試料を105℃の乾燥器で1日乾燥した後に質量および放射能濃度を測定してそれぞれの回収率および存在割合を評価した。

(1) コンクリート試料の破砕条件

コンクリート試料の破砕は、5 mm、2.5 mm および1.2 mmの3種類の網目サイズをもつ網籠電極を使用して、大きな骨材(以下、粗骨材という)と小さな骨材(以下、細骨材という)を3段階処理することにより、骨材に付着しているセメントペーストの少ない品質の高い骨材の回収を試みた。

パルス破砕によるコンクリートの骨材とセメントペーストを分離するエネルギーは、電極に印加する電圧と放電回数で決定される。コンクリートから骨材とセメントペーストを分離する最適な電圧と放電回数は、処理対象となるコンクリートの強度、骨材の特性(硬さや形状など)および処理するコンクリートの量によって変化する。これまでの小型破砕装置による試験の実績¹⁶⁾から、破砕される骨材量を減らしてセメントペースト部のみを破砕する最適な条件として印加する電圧は300 kVとした。ショット回数はコンクリートの破砕状況を確認して試料ごとに決定した。

(2) パルス破砕試験の手順

パルス破砕試験は、試験水槽に網籠電極を設置して水道水を満たし、網籠電極にコンクリート試料を約2.4 kg入れた。試験水槽の蓋をして上部から高圧電極を挿入(固定)して網籠電極をアースに接続した。高圧電極をコンデンサーに接続し、パルス制御装置および発振器によって制御された所定の電圧およびパルスの照射回数でパルス破砕を実施した。

試験の手順

一次破砕

- ① 試験水槽に網籠電極の台、網籠電極(5 mm)、コンクリート供試体および水を入れる。
- ② 試験水槽に蓋をして高圧電極を固定し網籠電極をアースする。
- ③ コンクリート供試体に所定の電圧に調整したパルスを所定回数放電する。
- ④ 網籠電極の上に残っている骨材のセメントペースト付着状況を目視観察する
- ⑤ ③と④の操作を繰り返し、骨材に付着しているセメントペーストの少なくなったところでパルス放電を終了し、トータルの放電回数を集計する。

- ⑥ 網籠電極の上に残った試料を骨材として回収する。(骨材 1)
- ⑦ 破碎されて網籠電極の下に落下した試料を回収する。
- ⑧ 試験水槽から処理水として上澄み水を回収する。
- ⑨ 網籠電極の下に落下した試料を 1.2 mm のふるいでふるい、1.2 mm 以上の試料を二次破碎の対象試料とし、1.2 mm 以下の試料を一次破碎で発生した微粉とする。(微粉 1)

二次破碎

- ① 試験水槽に網籠電極の台、網籠電極(2.5mm)、一次破碎で網籠電極の下に落下した試料の内、1.2mm 以上の試料および水を入れる。
- ② 一次破碎と同様の手順で試料を破碎する。
- ③ 2.5 mm の網籠電極の上に残った試料を骨材として回収する。(骨材 2)
- ④ 網籠電極の下に落下した試料を 1.2 mm のふるいでふるい、1.2 mm 以上の試料を三次破碎の対象試料とし、1.2 mm 以下の試料を二次破碎で発生した微粉とする。(微粉 2)

三次破碎

- ① 試験水槽に網籠電極の台、網籠電極(1.2 mm)、二次破碎で網籠電極の下に落下した試料の内、1.2 mm 以上の試料および水を入れる。
- ② 一次破碎、二次破碎と同様の手順で試料を破碎する。
- ③ 1.2 mm の網籠電極の上に残った試料を骨材として回収する。(骨材 3)
- ④ 網籠電極の下に落下した試料を三次破碎で発生した微粉とする。(微粉 3)

回収した骨材および微粉は、105℃の乾燥器内で一晩乾燥し、質量(絶乾質量)を測定した。骨材、微粉および処理水は、Ge 半導体検出器を用いた波高分光分析により ^{137}Cs の濃度を測定した。また、骨材は、セメントコンクリートやセメントモルタルとして再利用することを考慮して、コンクリート材料として使用する骨材の基本的な性能である絶乾密度および吸水率の簡易測定を実施した。

^{137}Cs の濃度測定は、Ge 半導体検出器に同軸型検出器 EG&G ORTEC GMX-25200-P、マルチチャンネル波高分析器として SEIKO EG&G MCA-7700 を使用し、 γ 線スペクトル分析プログラムに SEIKO EG&G DS-P600(ガンマスタジオ)を用いて実施した。

(3) 回収した骨材の簡易物性評価試験

再生骨材の品質については日本工業規格(以下、「JIS」と記す)で定められているが¹⁷⁻¹⁹⁾、本試験において回収した骨材の品質は、コンクリートとして再利用する場合の用途や再利用可能性を検討する上で重要な要因と考えられる。

コンクリートに使用する再生骨材の品質を規格化された方法に従って評価するためには、多量の再生骨材が必要になるが、本研究では汚染した瓦礫状のコンクリートの除染

性能の評価に主眼を置いており、回収される骨材量は骨材の品質評価を実施するために十分な量を確保することができない。そこで、本研究においては、骨材の重要な品質項目の1つである絶乾密度と吸水率について簡易測定(JISに定められた試料の質量に満たない使用による測定)を実施し、再利用可能性の目安を得るデータとした。回収した骨材の絶乾密度および吸水率は、再生コンクリートのJISに規格された試験方法に準拠して実施した。

(4) 除染性能の評価

パルスパワーによって分離した粗骨材(5 mm 以上の骨材)、細骨材(1.2~5 mm の骨材)およびスラッジ(1.2 mm 以下の粒子)の質量と放射能濃度および処理水の水量と放射能濃度を測定することにより除染性能を評価した。

試験に用いたコンクリートの初期放射能の総量は、回収した骨材、スラッジおよび処理水の放射性 Cs の和とした。ただし、放射性 Cs 濃度の測定値が定量下限値未満であった場合には、0 Bq/kg として計算した。

除染性能を評価する放射性 Cs は、 ^{134}Cs は半減期が短く除染後の放射能測定が困難になっていることから ^{137}Cs のみを対象とした。

IV. 試験結果および考察

1. 放射性 Cs 分布の測定結果と考察

(1) イメージングプレートによる放射能分布測定結果(破断面の測定)

東日本大震災の津波によって瓦礫状になった後に汚染したコンクリート試料の破断面の汚染状況についてイメージングプレートによる放射能分布の測定結果とコンクリートの測定面の画像を重ね合わせた結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2 の赤色の線は、粗骨材とモルタル部分の境界を示している。

試料の破断面の Fig. 2 の①の部分では、粗骨材と粗骨材の間のモルタル部分に汚染を示す赤い領域の集中が確認されている。これは、モルタル部分のセメントペーストに存在している空隙(細孔部分)に放射性 Cs を含む雨水が浸透したため、強い汚染が発生したものと考えられる。②の部分では粗骨材の表面にも弱い汚染が確認されているが、③の粗骨材表面の汚染の程度は低く、コンクリート内部への汚染水の浸透は、主にモルタルの空隙部分を通して発生していると考えられる。

(2) イメージングプレートによる汚染の浸透状況の測定(切断面の測定)

東日本大震災の津波によって瓦礫状になった後に汚染したコンクリート試料の切断面の汚染状況についてイメージングプレートによる放射能分布の測定結果とコンクリートの測定面の画像を重ね合わせた結果を Fig. 3 に示す。

試料の切断面では、Fig. 3 の④の部分でコンクリートの破断面の汚染がコンクリートのモルタル部分に浸透していることが確認されている。また、⑤の粗骨材の表面部分で

Fig. 2 Contamination of fragmented surface of the radioactive concrete debris

Fig. 3 Contamination of cut surface of the radioactive concrete debris

は、粗骨材近傍のモルタル部分が強く汚染しているにも関わらず汚染状態が低いことが確認されている。一方、⑥の骨材では、コンクリートの破断面の粗骨材表面に汚染が付着していることが確認できる。⑤および⑥の個々の粗骨材の性状については、詳細な差異は不明であるが、骨材の種類や性状によって、セシウムの付着の程度が異なることが推定される。

また、コンクリート切断面の観察結果から放射性 Cs は、これまで健全なコンクリートの表面からの汚染で観察されている放射能分布²⁰⁾と同様に、コンクリートの表面近傍に留まっておりモルタル部分についてもコンクリート内部への深い浸透汚染は確認されなかった。

2. パルスパワーによる破砕試験の結果と考察

(1) パルスパワーによるコンクリート破砕試験

道路用側溝コンクリート製蓋の破砕試験の条件を Table 1 に、瓦礫状コンクリートの破砕試験の条件を Table 2 に示す。

道路用側溝コンクリート製蓋の破砕処理では、乾燥したコンクリートの質量 1 kg 当たり 475 kJ から 733 kJ のエネルギーを使用しており、瓦礫状コンクリートの破砕処理

Table 1 Operational conditions of pulsed power discharge of concrete covers for roadside ditch

Specimens	1-1	1-2	1-3	1-4
Discharge voltage (kV)	300	300	300	300
Total No. of discharge to the 3rd fragmentation	1,750	1,150	1,350	1,350
Total discharge energy to the 3rd fragmentation (kJ)	1,575	1,035	1,215	1,215
Discharge energy per unit weight of oven-dry concrete (kJ/kg)	733	475	545	541

Table 2 Operational conditions of pulsed power discharge of concrete debris

Specimens	2-1	2-2	2-3
Discharge voltage (kV)	300	300	300
Total No. of discharge to the 3rd fragmentation	365	345	315
Total discharge energy to the 3rd fragmentation (kJ)	328.5	310.5	283.5
Discharge energy per unit weight of oven-dry concrete (kJ/kg)	121	137	151

は、同様に 121 kJ から 151 kJ のエネルギーを使用した。瓦礫状コンクリートは道路用側溝コンクリート製蓋に比べ 1/4 程度のエネルギーで破砕されている。瓦礫状のコンクリートから回収された骨材には、セメントペーストの塊が多く残り骨材自体の割れが進行していた。破砕対象となるコンクリートのセメントペーストの強度や使用された骨材の性質(硬さ、脆さ等)およびコンクリートの劣化状況により、破砕性状に大きく影響を与えることが確認された。

(2) 回収した骨材の簡易物性試験結果

道路用側溝のコンクリート製蓋から回収した骨材の物性評価結果を Fig. 4 に、瓦礫状コンクリートから回収した骨材の物性評価結果を Fig. 5 に示す。

パルスパワーによって回収された骨材は、一般に再生骨材に分類される。日本建築学会の建築工事標準仕様書・同解説 JASS 5N 原子力発電所施設における鉄筋コンクリート工事²¹⁾には、特殊なコンクリートとして再生骨材を使用した再生骨材コンクリートが規定されている。JASS 5N に規定されている再生骨材コンクリートで使用可能な骨材は、JIS A 5021:2011「コンクリート用再生骨材 H」¹⁷⁾に規定される「再生骨材 H」および「再生細骨材 H」に適合し、かつ絶乾密度、吸水率、粒形判定実績率、微粒分量、塩化物量と粒度分布が定められている。原子力施設で再利用可能な再生骨材の品質は、再生粗骨材および再生細骨材ともに絶乾密度 2.5 g/cm³ 以上、吸水率は、再生粗骨材に対して 2.0% 以下、再生細骨材に対して 3.0% 以下となっている。

道路用側溝のコンクリート製蓋から回収した骨材の簡易測定による絶乾密度および吸水率は、試料 1-2 から回収

Fig. 4 Properties of aggregate from concrete covers for the roadside ditch

Fig. 5 Properties of aggregate from radioactive concrete debris

した骨材 3 (右図中央のプロット) を除き JASS 5N の品質基準を満たす (図中赤線より右下側) 結果となった。試料 1-2 の骨材 3 は、粒子径 1.2 mm から 2.5 mm の微細な骨材であるが、試料 1-2 の累積回収率が 54.2 wt% とコンクリート蓋の 4 つの試料の中で最も高く、他の処理条件に比べてセメントペーストの骨材への付着が多くなっていることが、JASS 5N の基準を満たしていない原因と考えられる。

瓦礫状コンクリートから回収した骨材の絶対密度および吸水率は、道路用側溝のコンクリート製蓋から回収した骨材に比べて著しく品質が劣る結果となった。再生骨材の品質としては、JIS A5022 付属書 A¹⁸⁾ に示される再生骨材 M に適合する品質であり、JASS 5N の品質基準を大きく下回る結果となった。瓦礫状のコンクリートは破碎処理に必要であったエネルギーが道路用側溝の蓋に比べて 1/4 程度と少なく、もとのコンクリートの強度や使用されている骨材の強度が低いため、回収された骨材の品質もよくなかったと推察される。

本試験においては、処理後の試料量を十分確保することができないことから、絶対密度および吸水率ともに簡易な方法によって目安となる測定値を得ている。回収した骨材の品質を適切に評価するためには、より多くの汚染したコンクリートを処理して、規格に整合した試験方法で測定値を得る必要がある。また、福島第一発電所で発生した瓦礫状コンクリートを対象とした破碎試験を実施し、骨材の回

収率や回収した骨材の品質を確認することが重要である。

原子力発電所の建設では、日本建築学会の建築工事標準仕様書・同解説²¹⁾に規定される高品質な骨材が使用されていることから、パルスパワー放電による破碎処理と微粉の分離によってより高い除染性能が期待できると考える。もし高い除染性能が得られた場合には、パルスパワー放電で回収した骨材は高い品質で回収することが可能であることから、回収した骨材は高品質再生骨材として福島第一発電所内での新規コンクリート工事に再利用することが可能であり、単に汚染コンクリートの汚染部分を分離するのみではなく外部から持ち込む資材 (骨材) を減らすことに貢献する。

3. パルスパワーによるコンクリートの除染試験の結果と考察

(1) 道路用側溝のコンクリート製蓋の除染試験結果

道路用側溝のコンクリート製蓋のパルスパワーによる破碎試験の結果を Table 3 に、放射性 Cs の存在割合と累積回収率の関係を Fig. 6 に示す。Fig. 6 の Aggregate は回収した骨材、powder は回収した微粉を示している。

累積回収率は、一次破碎で回収された骨材 1、二次破碎で回収された骨材 2、三次破碎で回収された骨材 3、三次破碎で回収された微粉 3、二次破碎で回収された微粉 2、一次破碎で回収された微粉 1 の順にそれぞれの質量を加算し、その質量を全質量で除して算出した。存在割合は、

Table 3 Result of pulsed power discharge of concrete covers for roadside ditch

Specimens	1-1		1-2		1-3		1-4	
	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)
Aggregate 1 (<5 mm)	9.8	0.0	13.5	0.4	17.5	0.3	9.4	0.1
Aggregate 2 (5-2.5 mm)	16.4	4.2	20.3	3.7	17.0	2.7	17.9	2.4
Aggregate 3 (2.5-1.2 mm)	13.1	3.4	20.4	11.6	18.3	11.1	16.4	7.2
Powder 3	35.8	32.3	20.4	24.8	22.5	25.2	29.3	32.5
Powder 2	7.5	9.4	6.9	7.4	7.2	8.1	9.4	10.5
Powder 1	17.4	50.7	18.5	52.1	17.5	52.5	17.6	47.4

Table 4 Result of pulsed power discharge of concrete debris

Specimens	2-1		2-2		2-3	
	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)	Recovery rate (wt. %)	Abundance ratio of Cs (%)
Aggregate 1 (<5 mm)	12.5	2.5	18.8	5.1	18.8	5.3
Aggregate 2 (5-2.5 mm)	16.8	9.8	9.5	5.5	9.5	6.2
Aggregate 3 (2.5-1.2 mm)	18.0	18.0	14.7	12.4	16.3	14.9
Powder 3	13.7	11.5	18.3	17.2	22.6	24.9
Powder 2	13.1	12.3	14.4	15.1	11.4	11.3
Powder 1	25.8	45.9	24.2	44.6	21.4	37.4

Fig. 6 Relationship between cumulative recovery rate and abundance ratio of Cs for concrete covers for the roadside ditch **Fig. 7** Relationship between the cumulative recovery rate and abundance ratio of Cs for radioactive concrete debris

同様に回収した骨材および微粉に含まれる放射性 Cs の含量を全放射性 Cs で除して 1 から減算して算出し百分率で表記した。

一次破碎で回収された骨材 1 には、放射能がほとんど含まれず(初期放射能の 0.4% 以下)、回収割合は 9.4 wt% から 17.5 wt% となった。回収された骨材 1 から骨材 3 に存在する放射能は、初期の放射能の 7.6% から 15.7% になっており、回収割合は、39.3 wt% から 54.2 wt% であった。一方、一次破碎で回収された微粉 1 は、初期の放射能の 47.4% から 52.5% の放射能を有しており、その質量は初期のコンクリートの 18.5 wt% から 17.4 wt% となっていた。

それぞれの試料に含まれる骨材やセメントペーストの付着状況が異なることから、Table 1 および Table 2 に示さ

れるように試料ごとにパルス印加回数が異なり、試料ごとの印加エネルギーは異なっている。一方、同じ道路用側溝コンクリートから切断した存在割合と累積回収率との関係を示した Fig. 6 では、累積回収率と放射能の存在割合がほぼ同じ傾向を示している。本試験の結果ではパルスパワーによる三次破碎を実施することにより、放射能を初期放射能の 1/10 に除染した約 40 wt% の再生骨材を得ることができ、初期放射能の 90% を約 60 wt% の微粉に分離する結果となった。

また、パルスパワーによる一次破碎を実施して 1.2 mm 以下の微粉 1 を分離することにより、汚染したコンクリートの放射能を約 1/2 に低減することが可能になる。パルスパワーによる一次破碎で発生した微粉 1 は、いずれの試料についても約 18 wt% となっており、汚染したコンク

リートの82 wt%の放射能濃度を初期の約1/2に低減する結果となった。

(2) 瓦礫状になった後に汚染したコンクリートの除染試験結果

瓦礫状コンクリート試料のパルスパワーによる破碎試験の結果をTable 4に、放射性Csの存在割合と累積回収率の関係をFig. 7に示す。Fig. 7のAggregateは回収した骨材、powderは回収した微粉を示している。

パルス破碎による骨材1から骨材3の回収率は、パルスの放電回数(放電エネルギー)によって異なっている。骨材として回収された骨材1から骨材3の合計では、回収率の最も高い試料で47.3%、回収率の最も低い試料で約43.0%であった。いずれの試料についても放射性核種の多くは微粉に含まれており、特に一次破碎から発生する微粉1には初期放射能の37.4%から45.9%が含まれる結果となった。

放射能の存在割合は本試験の結果からパルスパワーによる三次破碎を実施することにより、試料No.2-1では初期放射能の30.2%に除染した骨材を47.3 wt%、試料No.2-2では初期放射能の23.1%に除染した骨材を43.0 wt%、試料No.2-3では初期放射能の26.4%に除染した骨材を44.6 wt%回収することができた。

コンクリート製側溝の蓋による試験では、パルスパワーによる3次処理によって、放射能濃度が初期放射能の約1/10に除染した骨材を約40 wt%回収しているが、瓦礫状になった後に汚染したコンクリートでは約30 wt%に留まる結果となった。また、一次破碎から発生した約18 wt%の微粉に約50%の放射性Csが存在していた。Fig. 7に示した瓦礫状汚染コンクリートの存在割合と累積回収率の関係は、Fig. 6に示したコンクリート製側溝の蓋の試験結果に比べて同一累積回収率における存在割合が高くなっており、除染性能が劣る結果となった。

この除染性能低下の結果の要因としては、破断面の骨材が汚染していた影響とコンクリートに使用されていた骨材の品質の影響が考えられる。破断面の放射能分布を測定したFig. 2から、コンクリート破断面の放射性Csは、主にモルタル部分に多く分布しているが一部の骨材の表面にも汚染が確認されている。したがって、破断面の骨材に付着している放射性Csは、パルスパワーによる除染処理後も回収した骨材に残ると考えられるため、コンクリート製側溝の蓋に比較して除染性能が劣る要因となっている。また、回収した骨材の物性(絶乾密度および吸水率)がコンクリート製側溝の蓋に比べて著しく悪いことから、回収した骨材に付着しているセメントペーストが多くなっていると考えられる。このセメントペースト部分に残存している放射性Csが回収した骨材の除染性能を低下させる要因となったと考えられる。

パルスパワー処理に使用した処理水は、すべての処理条件で検出下限値を下回り、検出下限値の最も高い値は

13 Bq/kgであった。

4. パルスパワーの今後の適用性と課題

IV-3.までの結果から、除染や骨材再利用の技術的な可能性が確認できた。除染の効果を定量的に評価するためには、対象となる汚染コンクリートの汚染レベルや除染後の取り扱い(再利用方法など)を含めた検討が必要となり、これらの検討は今後の課題である。

また、福島第一発電所内で発生している瓦礫状の汚染コンクリートでは、放射性Csのみならず ^{60}Co 、 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{90}Sr などによる汚染も確認²²⁾されている。本研究で実施した放射性Csのみに汚染したコンクリートのパルスパワー放電による除染試験では、処理水へのセシウムの溶解は確認されていない。しかしながら、放射性Csの汚染密度の極めて高い瓦礫状コンクリートの除染性能や処理水への溶解については明らかになっていない。また、他の放射性元素のコンクリート中の分布状況や除染性能の確認および処理水への溶解特性についても、今後の検討課題となる。

本研究の結果から除染と再利用の可能性が示されたが、今後定量評価や適用に向けては更なる検討が必要である。

V. まとめ

放射性Csで汚染した道路用側溝のコンクリート製蓋および瓦礫状になった後に汚染したコンクリートを対象としてパルスパワー放電によるコンクリートの破碎と骨材回収による除染試験を実施した。

放射性Csによる汚染は、瓦礫状になった後に汚染したコンクリートの切断面の放射能分布を確認した結果、表面近傍に留まっておりモルタル内部へ浸透していないことを確認した。破碎して露出した骨材表面の放射性Csの沈着は、骨材の種類によって異なり、一部の骨材では放射性Csの沈着が確認されているが主にセメントペースト部分にセシウムが存在していることを確認した。

放射性Csによって汚染した道路用側溝のコンクリート製蓋の除染性能を評価した結果、初期の放射能を1/10に低減した骨材をコンクリート質量の40 wt%以上回収できる可能性を確認した。一次破碎で発生する微粉は初期の放射能の1/2を有しており、コンクリート質量の18 wt%に分離することができた。一方、瓦礫状になった後に汚染したコンクリートの除染試験では、初期の放射能を1/10に低減した骨材を回収した場合、コンクリート質量の30 wt%程度の回収率に留まる結果となった。瓦礫状になった後に汚染したコンクリートでは、破断面に露出している骨材が汚染している影響のみならず、使用されている骨材性状の影響を受け、骨材自身の破碎が進行してセメントペーストの付着が多い骨材が回収されたことも影響していると考えられる。

パルスパワー放電による汚染コンクリートの除染性能は、汚染コンクリートの強度や使用されている骨材の品質

の影響を受けると考えられ、低品質な骨材を使用したコンクリートの除染では骨材の破碎が進行して骨材の回収率が悪くなるとともにコンクリートの除染性能が低下すると推定される。

瓦礫状のコンクリート廃棄物に対する除染と再利用の可能性が示されたが、今後定量評価や適用に向けては更なる検討が必要と考えられる。

これら一連の研究においては、JST 育成研究、環境省循環型社会形成推進科学研究費補助金 K1923, K2046, K2168, JSPS 科研費 JP21510099, JP24310058, JP16H04390 の助成を受けた。

— 参考文献 —

- 1) Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc., *Shiryo 3-4 Hoshasei Haikibutsu Shori Shobun* [Gareki Bassaiboku no Kanrijokyo], *Hairo Osensui Taisaku Chiumu Kaigo/Jimukyokukaigi* (30th), 2016 May 26, [Japanese], (Internet), http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images1/images1/d160630_09-j.pdf#search, (cited 2017 Jan. 25).
- 2) Japan Atomic Energy Agency, *Fukushima Daiichi Hatsu-densho Jiko Niyori Hasseisuru Hoshaseihaikibutsu no Shori Shobun Kenkyu-Kenkyu Kaihatsu Kadai no Chushutsu to Kaiketsuni Muketa Kangaekata Tokubetsu Inkai*, 2014 Mar., [Japanese], (Internet), http://www.aesj.or.jp/special/report/2013/s_haikibutsusyorisyobun20140331.pdf#search=, (cited 2017 Jan. 25).
- 3) Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation, *Technical Strategic Plan 2016 for Decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station of Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc.*, 2016 Jan. 13, [English], (Internet), http://www.dd.ndf.go.jp/en/strategic-plan/book/20160926_SP2016eFT.pdf, (cited 2017 Jan. 25).
- 4) The American Society of Mechanical Engineers, *The Decommissioning Handbook*, Chapter 19, ISBN: 0791802248 (2004).
- 5) M. Okumura, H. Nakamura, M. Machida, "Mechanism of strong affinity of clay minerals to radioactive cesium; First-principles calculation study for adsorption of cesium at frayed edge sites in muscovite" *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82**(2), 033802 (2013).
- 6) N. Kozai, T. Ohnuki, M. Arisaka, M. Watanabe, F. Sakamoto, S. Yamasaki, M. Jiang, "Chemical states of fallout radioactive Cs in the soils deposited at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident" *J. Nucl. Sci. Technol.*, **49**(5), 473-478 (2012).
- 7) M. Shigeishi, T. Namihira, M. Ohtsu, H. Akiyama, "Parusupawa niyoru konkurito karano sokotsuzai no bunri kaishu," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **28**[1], 1475-1480 (2006), [in Japanese].
- 8) S. Inoue, J. Araki, T. Aoki, S. Maeda, S. Iizasa, M. Takaki, D. Wang, T. Namihira, M. Shigeishi, M. Ohtsu, H. Akiyama, "Coarse aggregate recycling by pulsed discharge inside of concrete," *Proc. 2nd Euro-Asian Pulsed Power Conf.*, Vilnius, Lithuania, Sep. 22-26 (2008).
- 9) S. Maeda, M. Shigeishi, M. Ohtsu, T. Namihira, "Parusu hoden ho niyoru hai konkurito no saikotsuzai heno saisei ni kansuru kiso jikken," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **30**[2], 463-468 (2008), [in Japanese].
- 10) S. Iizaka, M. Shigeishi, T. Namihira, "Recovery of high quality aggregate from concrete using the Pulsed Power Technology," *Clean Technol.* 2010, www.ct-si.org, ISBN 978-1-4398-3419-0 (2010).
- 11) S. Iizaka, M. Shigeishi, K. Ishimatu, T. Namihira, "Morutaru buno seishitsuga parusu hodenho niyoru konkurito no hasai katei ni oyobosu eikyo," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **32**[1], 1559-1564 (2010), [in Japanese].
- 12) A. Shintani, K. Yoda, T. Onodera, T. Nishikawa, "2 Shurui no Saisei Sokotsuzai Konkurito niyoru Gemba Tekiyou-jirei" *Proc. Jpn. Concrete Inst.*, **28**[1], 1463-1468 (2006), [in Japanese].
- 13) D. Tsuji, T. Yonezawa, K. Yanagihashi, T. Iwashimizu, "Henshin rota shiki shorisochi niyori seizoshita saisei kot-suzai oyobi saisei konkurito no seishitsu," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **26**[1], 1539-1544 (2004), [in Japanese].
- 14) H. Kimura, I. Fujiwara, N. Hashimoto, Y. Sakazume, "Genshiryoku shisetsu no haishisochi niyori hassei suru kaitai konkurito no sairiyo hohono kakuritsu," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **26**[1], 1439-1444 (2006), [in Japanese].
- 15) H. Shima, K. Konosu, K. Hashimoto, Y. Koga, "Kanetsu surimomi ho niyoru konkurito kai karano kohinshitsu kot-suzai kaishu gijutsu no kaihatsu," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **22**[2], 1093-1098 (2000), [in Japanese].
- 16) H. Sakamoto, S. Shimoda, K. Yamada, T. Namihira, M. Shigeishi, Y. Tachi, "Evaluation of concrete waste generated by Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident, (2) Decontamination of radioactive concrete waste using pulsed power discharge," *Proc. Fall Meeting of the AESJ*, Sijzuoka, Japan, Sep. 9-11, 2015, ISBN 978-4-89047-162-1 (2015), [CD-ROM].
- 17) Japan Industrial Standards Committee, JIS A 5021, "Recycled aggregate for concrete-class H," (2011).
- 18) Japan Industrial Standards Committee, JIS A 5022, "Recycled concrete using recycled aggregate class M," (2012).
- 19) Japan Industrial Standards Committee, JIS A 5023, "Recycled concrete using recycled aggregate class L," (2012).
- 20) K. Yamada, S. Takai, M. Osako, "Uota jietto niyoru konkurito heno Cs shinto fukasa sokutei," *Konkurito Kogaku Nenji Rombun Shu*, **35**[1], 1945-1950 (2013), [in Japanese].
- 21) Architectural Institute of Japan, *Japanese Architectural Standard Specification, JASS 5N Reinforced Concrete Work at Nuclear Power Plants*, (2013), [in Japanese].
- 22) K. Tanaka, A. Shimada, A. Hoshi, M. Yasuda, M. Ozawa, Y. Kameo, "Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, Nos. 7-8, 1032-1043, DOI: 10.1080/00223131.2014.921583, (2014).