

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

(4) セメント系材料に対する Cs、Sr の収着挙動のモデル化(案)

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

(4) Modeling of sorption behavior of Cs and Sr for cement-based materials

*富田 さゆり¹, 細川 佳史², 芳賀 和子¹, 山田 一夫³, 丸山 一平⁴, 五十嵐 豪⁵, 駒 義和⁶¹太平洋コンサルタント, ²太平洋セメント, ³国立環境研究所, ⁴名古屋大学, ⁵東京大学, ⁶日本原子力機構

福島第一原子力発電所の廃炉時に発生する大量のコンクリート廃棄物の処分計画において、事故後から廃炉時までの放射性核種の移行予測が必要である。本報では、セメント系材料中の Cs、Sr 移行予測のため、C-S-H と Cs、Sr の収着挙動をモデル化した。模擬変質試料に対する収着を再現し、モデルの妥当性を評価した。

キーワード: 収着, 相平衡モデル, セメント, Cs, Sr, 変質, 溶脱, 炭酸化, 福島第一原子力発電所

1. 緒言

福島第一原子力発電所の廃炉作業を進める過程で、事故後から将来にわたる汚染分布を推定することは、作業環境改善や最終的な廃棄物量を検討する上で重要である。コンクリート中の核種の移動・収着挙動は、材料(セメント種類や骨材)と状態(経年変化等)が影響する。処分対象物に含まれる放射性核種のうち Cs と Sr は、セメント系材料中のケイ酸カルシウム水和物(C-S-H)に収着され、収着量には C-S-H の CaO/SiO₂モル比(C/S比)が大きく影響する。C/S比は、セメント種類、溶脱や炭酸化等の経年変化によって変わるため、C/S比の変化に対応できる相平衡モデルが必要である。本報では、表面錯体反応を用いた C-S-H と Cs、Sr の収着挙動をモデル化し、このモデルを用いて模擬変質試料に対する収着や浸透挙動予測を試みた。

2. モデル化およびモデルの適用性検討

2-1. C-S-H と Cs、Sr の相互作用のモデル化

C/S比を変えた合成 C-S-H (C/S=0.6~1.2) に対する Cs、Sr の収着試験結果^[1]を用いて、表面錯体反応を用いた C-S-H と Cs、Sr の相互作用をモデル化した。モデル化には、Nonat の C-S-H 溶解平衡モデル^[2]を、熱力学的相平衡計算ツールである Phreeqc に実装したコードを用いた。C-S-H への Cs、Sr 収着は、C-S-H 表面のシラノール基と Cs、Sr との表面錯体反応によって生じると仮定し、表1に示すシラノール基と Cs、Sr の反応とその熱力学的平衡定数を上記 Phreeqc に組み込んだ。熱力学的平衡定数の値は、合成 C-S-H による収着試験結果にフィッティングさせて求めた。一例として C/S比 1.2 の C-S-H の Cs、Sr 収着をフィッティングさせた結果を図1に示す。

2-2. 模擬変質試料の収着挙動評価

2-1 で作成したモデルを用いて、溶脱もしくは炭酸化させた OPC ペースト粉末試料に対する Cs、Sr の収着試験結果^[1]を再現した。試験結果と計算結果を比較した結果の一例を、図2に示す。計算結果は試験結果をおおむね再現することができており、本研究で作成した C-S-H の Cs、Sr 収着モデルは、両元素と C-S-H の相互作用を評価できると判断した。今後、C-S-H 以外の鉱物と Cs、Sr の相互作用のモデル化を検討するとともに、コンクリートの汚染範囲の推定や廃棄物量の予測、放射性廃棄物処分施設のセメント系材料の長期的な核種の移行評価に活用していきたいと考えている。

謝辞

本研究は、文部科学省の国家課題対応型研究開発推進事業「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」・「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」において実施した。

参考文献

[1] K. Haga, S. Watanabe, K. Yamada, Quantification of interaction between alkali metal ions and C-(A)-S-H/cement paste for a wide range of ion concentrations, 15th International Congress on the Chemistry of Cement (2019) (in press).

[2] A. Nonat: The structure and stoichiometry of C-S-H, Cement and Concrete research, 34, pp.1521-1528 (2004)

*Sayuri Tomita¹, Yoshifumi Hosokawa², Kazuko Haga¹, Kazuo Yamada³, Ippei Maruyama⁴, Go Igarashi⁵ and Yoshikazu Koma⁶.

¹Taiheiyo Consultant, ²Taiheiyo Cement, ³NIES, ⁴Nagoya Univ., ⁵Univ. of Tokyo, ⁶JAEA.

表1 C-S-H のシラノール基と Cs、Sr の反応式

熱力学的平衡定数	反応式
log Kcs	$-\text{SiOH} + \text{Cs}^+ = -\text{SiOCs} + \text{H}^+$
	$-\text{SiOSi}_{0.5}\text{OH} + \text{Cs}^+ = -\text{SiOSi}_{0.5}\text{OCs} + \text{H}^+$
log Ksr(1)	$-\text{SiOH} + \text{Sr}^{2+} = -\text{SiOSr}^+ + \text{H}^+$
	$-\text{SiOSi}_{0.5}\text{OH} + \text{Sr}^{2+} = -\text{SiOSi}_{0.5}\text{OSr}^+ + \text{H}^+$
log Ksr(2)	$-\text{SiOH} + 0.5\text{Sr}^{2+} = -\text{SiOSr}_{0.5} + \text{H}^+$
	$-\text{SiOSi}_{0.5}\text{OH} + 0.5\text{Sr}^{2+} = -\text{SiOSi}_{0.5}\text{OSr}_{0.5} + \text{H}^+$

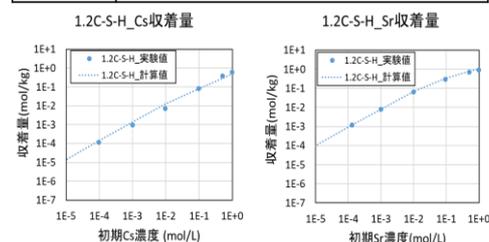
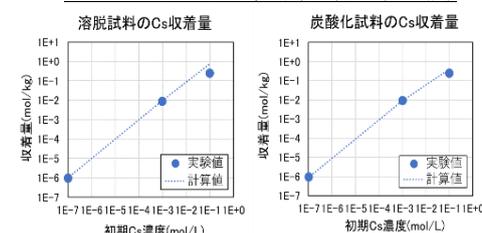


図1 C-S-H(C/S1.2)の Cs、Sr 収着フィッティング結果

図2 模擬変質試料の Cs 収着計算結果
(左: 溶脱試料, 右: 炭酸化試料)