

令和 3 年 5 月 13 日現在

機関番号：82101

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21998

研究課題名(和文)放射性同位元素を用いたコンクリート中への微量有害イオンの浸透評価手法確立への挑戦

研究課題名(英文)A challenge for the establishment of the evaluation method of the penetration of minor harmful ions in concrete by using radio isotopes

研究代表者

山田 一夫(Yamada, Kazuo)

国立研究開発法人国立環境研究所・福島支部・主任研究員

研究者番号：30590658

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：イメージングプレート(IP)を用いた放射性同位元素(RI)のオートラジオグラフにより、モルタルへの濃度 $10\mu\text{M}$ のCsとSrの同時浸透を分離定量する方法の技術開発を行った。分離は、Cs-137とSr-90の放射する線のエネルギー差を利用し、厚さ 0.1mm のアルミ板による減衰率の違いから、両者を判別した。定量分析には、RI濃度既知のセメントペーストを別途作製し、IPに同時に暴露し、得られた信号を対比することで実施した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、コンクリートへセシウムとストロンチウムが同時に浸透した場合に関して、両元素の浸透分布を分離定量するものである。この技術により、福島第一原子力発電所事故後の建屋コンクリートの処理・処分における汚染状況解析、同汚染分布予測のための浸透実験解析、同事故で生じた環境汚染による汚染廃棄物等の処分施設への放射性セシウムとストロンチウムの浸透予測のための基礎実験が、本研究により可能となった。

研究成果の概要(英文)：A separating quantification method for Cs and Sr simultaneous penetration of $10\mu\text{M}$ in mortar based on the autoradiograph using imaging plate (IP) for radioisotopes (RI) has been developed. The separation was realized by using the energy difference between the beta-rays of Cs-137 and Sr-90. From the difference of the degree of attenuation when the samples were exposed under the shielded condition by aluminum plate of 0.1mm were applied. For quantification, cement pastes containing RI whose concentration is known were fabricated separately as standards and those are exposed on IP simultaneously with mortar samples for evaluation and the signals from samples and standards were compared.

研究分野：材料科学

キーワード：分離定量 セシウム ストロンチウム コンクリート 浸透 イメージングプレート オートラジオグラフ 低濃度

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所事故に伴う放射性核種により汚染されたコンクリート建屋の処理・処分や、汚染廃棄物のコンクリート製処分施設設計には、コンクリートへの放射性核種の浸透を理解することが求められる。被ばくの観点から特に重要な核種はCs-137とSr-90である。これらの元素のコンクリートへの浸透挙動を考える際、以下の課題があった。

- ・ コンクリートへのイオン浸透分析には各種の手法があるが、事故に伴う核種の移動を考えるには、濃度が1~10 μ M程度と極低濃度であり、放射性同位元素(RI)を用いるしかない。
- ・ コンクリートへの塩素浸透に関しては膨大な研究事例があるが、アルカリ金属の挙動の評価例は少なく、CsとSrが共存するケイでの測定例は見当たらない。
- ・ コンクリートには骨材が含有され、またひび割れも含まれる。したがって、単純な浸透深さの評価ではなく、2次元マッピングが求められる。これには、イメージングプレート(IP)によるオートラジオグラフが有効であるが、Cs-137とSr-90が同時に浸透する場合、両者が相互作用する可能性があり、分離定量する必要がある。両者を分離する方法は提案されているが、マッピングに応用する技術は確立されていない。

2. 研究の目的

前記の背景から、極低濃度のイオン溶液から、Cs-137とSr-90のコンクリートへの浸透について、両者を分離定量マッピングする方法を開発することとした。分離には、Cs-137とSr-90からの線のエネルギーが異なることを利用し、遮蔽体の有無による減衰の差を利用する。実際の検討では、マッピングに適した遮蔽の方法の最適化、浸透へのイオン濃度の影響とCs-137とSr-90の浸透の違い、両者が同時に浸透する際の分離定量手法の開発、本手法の空間分解能の把握を目的とした。

3. 研究の方法

研究は、モルタルへRIで標識した溶液からのCs-137とSr-90の浸透実験を行い、浸透断面を得るための加工を行い、IPによるオートラジオグラフ像を取得し、Cs-137とSr-90を分離定量マッピングする手法を開発することとした。そのため、以下の項目を検討することとした。

- 1) 遮蔽板の密度を変えた場合の制動放射線の発生の影響
- 2) イメージングプレートの遮蔽板厚さの空間分解能への影響
- 3) 試料測定時の位置決め治具の検討
- 4) 浸透への濃度影響の評価
- 5) 異なる核種の浸透挙動評価
- 6) 分離定量分析の実施手順の検討
- 7) 空間分解能の明確化

コンクリートは粗骨材を含み試料寸法が大きくなるため、RI試験の制約上、細骨材のみからなるモルタルを用いた。代表的な実験条件を表1に示す。

一定期間、モルタルをRI溶液浸漬後、1.6mm厚さの薄片を切り出し、浸透面をIPに、標準試料とともに暴露した。図1に測定の様子を示す。

表1 使用したモルタル試料

試料	骨材	濃度 (mol/L)	
		Cs	Sr
1	石灰石	2.5 \times 10 ⁻⁵	0
2	川砂	2.5 \times 10 ⁻⁵	0
3	石灰石	2.5 \times 10 ⁻⁵	9.0 \times 10 ⁻⁵
4	川砂	2.5 \times 10 ⁻⁵	9.0 \times 10 ⁻⁵

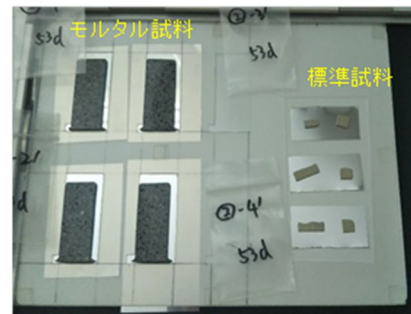


図1 試料測定の様子

4. 研究成果

(1) 定量精度の確保

本研究の目的には、IPによる信号の繰り返し再現性が重要となるため、まず、この検討を行った成果について説明する。

分離定量には、遮蔽板の有無による信号の変化を評価するが、IP上での試料位置が異なると、測定後の演算に支障をきたすため、位置決めのため、試料形状に合わせたプラスチック板を準備し、測定場所の再現性を図った(図1)。

IPによる定量測定には、測定再現性の確認が必要である。既往の研究から、IPに蓄積された信号は、RIの暴露時間に比例する。

Cs-137(1.00 \times 10⁴Bq)及びSr-90(2.50 \times 10³Bq)の標準面線源(日本アイソトープ協会より購入、

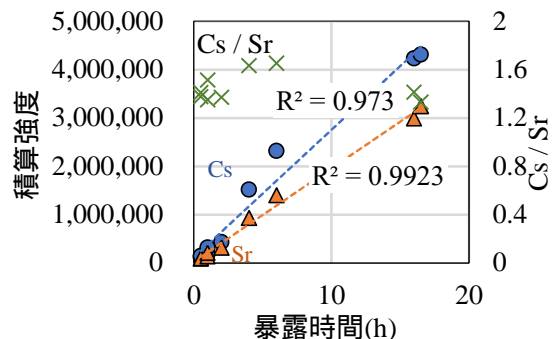


図2 暴露時間と積算強度及びCs/Sr比の関係

直径1インチのコイン状)を用い、暴露時間とIPの積算強度の関係を調べた結果を図2に示す。おおむね直線関係が得られているが、一定時間での変動係数は10%程度あり、定量分析としては不十分である。IPに蓄積された信号は種々の影響を受ける。この影響を避けるために、暴露は恒温槽内で一定温度とし、標準試料と同時に暴露し、暴露後は30分の冷却時間を置き計測した。IPの個体差も影響するため、遮蔽板の有無の評価には同一のIP板を使用した。

また、IPに蓄積された信号は、通常、白色光により消去できるとみなされるが、数日から数週間の時間を経過して、IPに蓄えられた信号が再度、潜像として現れてくることが報告されている。潜像を消去する目的で、270nm以下をテンパックスガラスにより遮蔽した紫外光照射し、かつ白色項により信号を消去して用いることとした。

これらの対策を施してもなお、同一のIP内部において、標準濃度試料からの信号が一定とならない場合が認められた。図3に標準濃度試料をIPへ暴露した際の濃度分布を示す。左の図では、同じ標準濃度試料が異なる濃度として測定されている。右の図では左上の部分では同じ白から赤で濃度が表示され

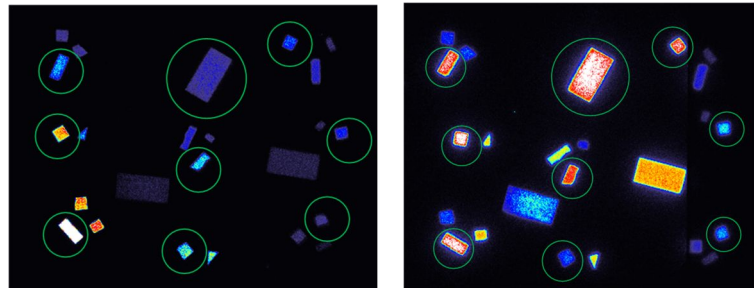


図3 標準濃度試料のIP像(丸は同じ濃度の試料) 暖色系の色がより高濃度を示す。

均一であるが、右下では青で低濃度に測定された。現状、この濃度分布をなくして測定する手法を開発するまでに至っておらず、同一のIP板であっても測定ごとに、感度村が発生したりしなかったりした。そこで、対策として、評価対象試料を囲むように標準濃度試料を複数配置し、標準濃度試料の強度が一定とみなせる測定データを使用することとした。

(2) Cs-137とSr-90の分離に及ぼす遮蔽板の影響

浸透への濃度影響については、100nmから100mMの範囲において、粘土を含有しない石灰石モルタルにおいて、Csの拡散係数はほぼ一定であること、CsとSrは相互作用することなく浸透することが、別事業[1]から明確になった。そこで本研究では、Cs-137とSr-90の分離定量に及ぼす遮蔽板の影響を中心に検討を行った。

遮蔽板には、PET(1.37g/cm³, 0.5mm)、Al(2.7g/cm³, 0.1mm)、SUS(7.7g/cm³, 0.01mm)の三種類を用いた。遮蔽能力は、おおそ密度×厚さで決まり、密度が高い物質を用いることで遮蔽体の厚さを薄くすることができる。一方で遮蔽板の密度が高いほど、制動X線が多く発生しIPに干渉する可能性がある。先行研究では制動X線を抑制するために低密度のPET板を使用した。厚さが大きくなるとIPと試料の距離が大きくなり、線の拡散が大きくなることから空間分解能が低下した。そこで、今回は、密度が大きく、薄い遮蔽板も使用することとした。

線のエネルギーが高いほど遮蔽による減衰は小さくなる。Cs-137の線のエネルギー(最大0.512MeV)に比べ、Sr-90の線のエネルギー(最大2.28MeV)は高い。したがって、両者の線のエネルギーの差が、遮蔽体での減衰率に大きな差をもたらす。

遮蔽の有無ごとに、Cs-137とSr-90による信号とそれらの濃度の関係を次式に示す。

$$S = S_{Cs} + S_{Sr} = A \times I_{Cs} + B \times I_{Sr}$$

$$S_{遮蔽} = S_{Cs_{遮蔽}} + S_{Sr_{遮蔽}} = A_{遮蔽} \times I_{Cs} + B_{遮蔽} \times I_{Sr}$$

S_{Cs} : Cs-137によるエネルギー強度
 S_{Sr} : Sr-90によるエネルギー強度
 I_{Cs} : 試料のCs-137の放射能(Bq/kg)
 I_{Sr} : 試料のSr-90の放射能(Bq/kg)
 A, B : 補正係数

この時、係数A, Bは濃度既知の標準試料を測定することで以下の式によって算出される。

$$A = I_{Cs} / S_{Cs} \quad B = I_{Sr} / S_{Sr}$$

$$A_{遮蔽} = I_{Cs} / S_{Cs_{遮蔽}} \quad B_{遮蔽} = I_{Sr} / S_{Sr_{遮蔽}}$$

このことを利用しCs-137とSr-90の分離定量を行った結果を図3に示す。いずれも実線が、Cs、Sr混合溶液浸漬試料のPSL値(IPから読み取った信号で濃度に比例する換算値)から分離定量を試みたもの、点線がCs、Sr単独溶液浸漬試料の実測PSL値である。なお、Srについては、Sr単独溶液浸漬試料が無いため、前述のようにCsとSrの相互作用は無視し得る仮定の下、Sr+Cs混合溶液浸漬試料のPSL値からCs単独溶液浸漬試料のPSL値を引いて描いていた。

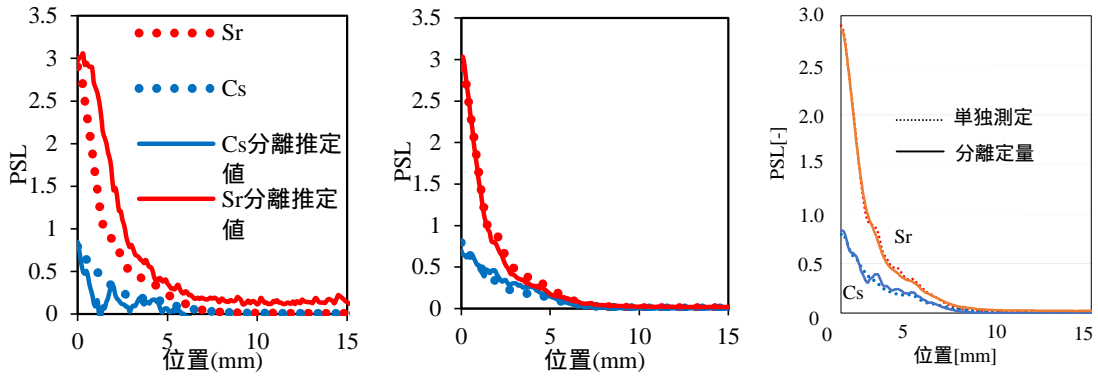


図4 遮蔽板が分離に及ぼす影響
(左：PET0.5 mm、中央：SUS0.01 mm、右：Al0.1 mm)

PET 使用時 (図3左) では大まかにはCs-137、Sr-90の侵入状況を評価できているが、4mmまでの侵入深度において線のエネルギーが高いSr-90を過大に評価しており、その分Csは過少に評価されていると考えられる。SUSを使用した分離(図3中央)では、Cs-137、Sr-90どちらの場合でも、単独浸漬試料のPSL値とほぼ同じ形状となり、高い空間分解能での分離に成功した。SUSは0.01mmと薄く、線の拡散が小さく抑えられ、空間分解能が低下しなかったとされる。PETの厚さは0.5mm、SUSでは0.01mmであるが、PETを使用した場合に明らかに分離精度は落ちており、反対にSUSを使用した際には良い精度での分離定量に成功したことから、分離定量時の空間分解能の精度について遮蔽板の厚さは重要な要素であることが示唆され、反対に密度増加による特性X線の発生量増加はさほどIPの分解能に影響しないと考えられる。また、Alを使用した場合(図3右)も、SUSと同じ精度の分離が可能であった。

(3) 分離定量マッピング

CsとSrの混合溶液(10 μ M)に浸漬したモルタル断面における線の強度分布のIP像と分離定量マッピングの結果を図5に示す。IP像から、上右の遮蔽なしに対し、上左のAl 0.1 mm遮蔽の方が像がぼやけており、このIP像の読出しは同じ0.05 mm/ピクセルであるが、0.1 mmの遮蔽が空間分解能を低下させていた。

IP像の試料部分に、200 \times 100のメッシュを設置し、各メッシュの信号を読み出し、遮蔽の有無による演算を行い、結果をコンター図にしたものが図5下である。Csが15 mm程度まで浸透しているのに対し、Srは3 mm程度に留まる。Csは石灰石粒子を避けセメントペースト部分を浸透し、一部の粘土鉱物を含む粒子に濃縮するが、その様子が分離後の像から読み取れる。一方、Srはモルタル中のCaとイオン交換しながら浸透するため、比較的均一な分布となるが、これも分離後の像から読み取れる。

以上の結果から、本研究の目的であったCsとSrの極低濃度領域でのモルタルへの浸透挙動を分離定量マッピングし評価できた。

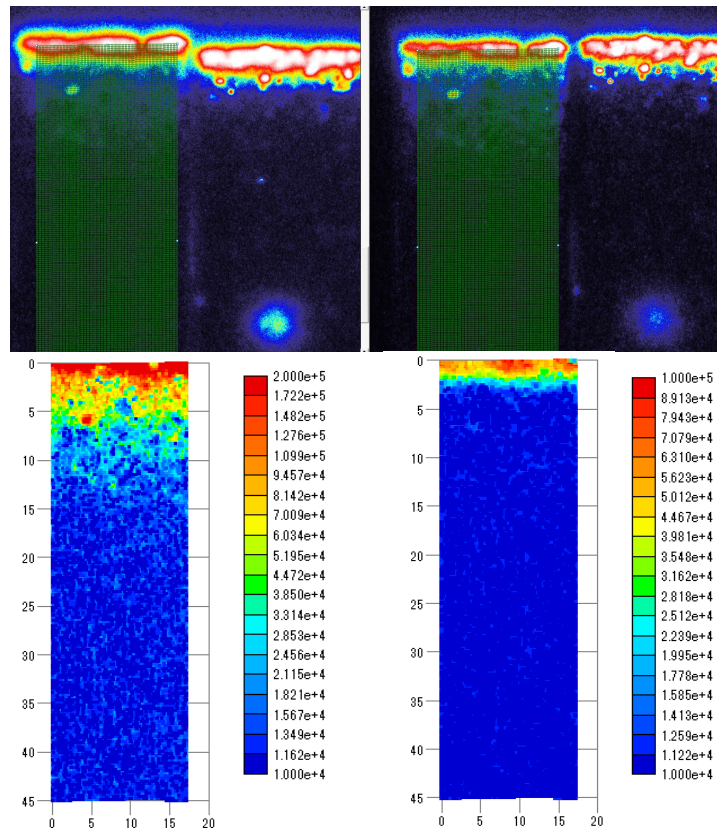


図5 CsとSrの混合溶液(10 μ M)に浸漬したモルタルのIP像と分離定量マッピングの結果(軸:mm、凡例:Bq/kg)
上左:Al0.1 mm遮蔽、上右:遮蔽なし
下左:分離定量したCs濃度分布、下右:同Sr濃度分布

参考文献

[1] 名古屋大学, 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, 平成31年度文部科学省 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・人材育成推進事業成果報告書, 2020, 128p..

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 横川将也, 山田一夫, 東條安匡, 松藤敏彦, 松尾孝之, 黄仁姫
2. 発表標題 福島第一原子力発電所の廃炉により生ずるコンクリート廃棄物中の Cs, Sr の侵入状況評価手法の検討
3. 学会等名 第31回廃棄物資源循環学会研究発表会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	五十嵐 豪 (Igarashi Go) (10733107)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・特任講師 (12601)	
研究分担者	東條 安匡 (Tojo Yasumada) (70250470)	北海道大学・工学研究院・准教授 (10101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------