

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24310058

研究課題名(和文)水中パルス放電法による放射性コンクリート廃棄物の除染と縮減

研究課題名(英文) Reduction of radioactive contaminated concrete waste by recycling aggregate with the aid of pulsed power discharge

研究代表者

重石 光弘 (SHIGEISHI, Mitsuhiro)

熊本大学・自然科学研究科・教授

研究者番号：50253761

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：水中コンクリート内パルス放電法を用いて、疑似放射性コンクリート廃棄物供試体を破砕、ならびに素材毎分離回収を実施した。

まず、疑似汚染コンクリートを作成し、破砕・分離回収実験に供した。分離回収された粗骨材、細骨材、残渣ならびに微粒分および水のCs濃度の測定分析により、供試体に含有していたCsのほぼ95%は水槽中の処理水に微粒子と共に移動し、粗骨材には殆どCsは含まれていなかった。

次に、福島県内で採取した実汚染コンクリート試料を実験に供した。回収粗骨材に含まれる放射性Csの濃度は、細骨材、ペースト分に比べて微かで、回収細骨材に含まれる放射性Csの濃度は、粗骨材に比べ高く、ペーストより低かった。

研究成果の概要(英文)：An applicability of pulsed power discharge as a decontamination method by separating contaminated matrix from uncontaminated coarse aggregate was examined. In this study, a stable cesium (Cs) isotope was used to simulate radioactively contaminated concrete. As a result, while the volume of reclaimed aggregate from concrete reproduced by the electric pulsed discharge could reach 60%, nevertheless Cs detected in the reclaimed aggregate was only approximately 3% of quantity included in the concrete specimen. Thus most of the Cs was dissolved in water during the discharge process. It is expected that the decontamination method by the pulsed power could reduce the contaminated concrete waste by reusing aggregate. Further, investigations were conducted to test the applicability under the realistic conditions by using the actual radioactive concrete. As a result, no Cs was detected in the reclaimed aggregate from radioactive contaminated concrete. Also no Cs was dissolved in processing water.

研究分野：環境建設材料学

キーワード：パルスパワー 高度骨材再生処理 再生骨材 除染処理 減容処理 汚染コンクリート 放射性廃棄物  
バックエンド

1. 研究開始当初の背景

2011年3月11日の東日本大地震・大津波の発生までに、日本国内では54基の原子炉が稼動中であったが、初期に建設された原子炉は耐用年数を迎つつある。日本初の商業用原子力発電所である日本原子力発電(株)東海発電所では廃炉計画が進められており、先の甚災による被害を受けた福島第一発電所をはじめとする幾つかの原子力発電所が廃炉となる見込みである。また、これからの安全性能確保のための基準設定によっては、さらに原子力施設の廃止措置が増えることも予想されている。

原子力施設の廃止における大きな課題は、解体時に発生する大量の放射性廃棄物を削減すべきことにある。例えば、国の廃炉スタディのモデルになっている110万kWの沸騰水型原子力発電施設(BWR)の場合、廃止措置に伴い約50万トンのコンクリートが廃棄物として発生し、大部分は放射性廃棄物として扱う必要のない(クリアランスレベル以下のもの含む)廃棄物であるが、この内、例えば低レベル放射性廃棄物に分類されるものは0.4万トンになると試算された。

現在解体が進められている日本原子力発電(株)東海1号炉の場合、その解体届によれば、クリアランスレベル以上の放射性廃棄物は、放射化コンクリートで1.1万トン、汚染コンクリートで0.23万トン、放射化した金属類で0.23万トン、汚染金属類で0.04万トンとなり、放射化したコンクリートは全ての放射性廃棄物の69%を占めている。コンクリートが放射化されて放射性廃棄物になると、その埋設コストだけで、建設時の材料費に比べ、低レベル放射性廃棄物(L2区分、コンクリートピット埋設処分相当)で約460倍、極低レベル放射性廃棄物(L3区分、トレンチ埋設処分相当)で約65倍になると試算されている。したがって、今後の新たな建設においては、これを可能な限り少なくすることが望ましく、低放射化コンクリートの開発も進められているところである。

表1 コンクリートが放射性廃棄物になった場合の費用概算(建設時材料費に対する放射性廃棄物になった場合の埋設費の比)

埋設区分*1	埋設費/建設時材料費*2
L1区分(1,725万円/m <sup>3</sup> )	2,800
L2区分(280万円/m <sup>3</sup> )	460
L3区分(40万円/m <sup>3</sup> )	65

(注)解体費、測定費、詰替費、管理費を含まず。  
 \*1 経済産業省総合エネルギー調査会原子力部会廃止措置対策小委員会公開資料(1997)による平均値。  
 \*2 充填率51%(JPDR実績)、1.2万円/m<sup>3</sup>と仮定。  
 下記の出典をもとに作成した。  
 【出典】経済産業省総合エネルギー調査会原子力部会廃止措置対策小委員会公開資料(1997)

一方、これほどの大量な放射性コンクリート廃棄物を埋設処分とするための処分施設の建設費用に対して、果たして我が国の今後の経済的状況を鑑みるにこれらに見合うだけの十分な埋設容量を確保できるであろうか。原子力燃料棒など再処理された高レベル

放射性廃棄物(L1区分、ガラス固化処理)に加え、低レベル放射性廃棄物は、2008年3月末現在、全国の原子力発電所内の貯蔵施設で容量200Lドラム缶に換算して約60万本分、青森県六ヶ所村低レベル放射性廃棄物埋設施設に、2009年11月末現在、約21.3万本のドラム缶を埋設処理している。既にこれらの処分施設の容量は逼迫しており、大深度地層処分が計画されているが、そのための制度化は進められている途中であり、建設には至っていない。このような中、この度の東日本大地震・大津波による福島第一原子力発電所の事故による広域放射能汚染は、膨大な低レベル放射性廃棄物となる放射性汚染コンクリートを発生させた。よって、これらの放射性汚染コンクリート廃棄物の除染技術と処理技術の確立は喫緊の課題となった。

2. 研究の目的

本研究は、放射性コンクリート廃棄物の除染・処理に対して、研究代表者らにより開発研究を進めてきた「水中コンクリート内パルス放電法」[重石:水中パルス放電によるコンクリート骨材再生技術に関する研究、科学研究費補助金 基盤研究(C)(一般)・H21~H23]を適用してその合理性と実現可能性を精査する。「水中コンクリート内パルス放電法」では、水中においてコンクリートに瞬間的な大電流を放電して、コンクリートを破碎し、同時にコンクリートの粗骨材、細骨材、ならびにセメント水和物を分離可能な技術である。コンクリート中の骨材への損傷を極めて低く抑え、そして骨材のみを高い回収率にてコンクリート中より分離回収する従来の機械的破碎による高度骨材再生処理法とは全く異なる新しい独創的手法である。

この手法の著しい特徴と利点は、先述の高い骨材回収率、すなわち再生時の微粉発生が極めて低いこと、また水中処理のため微粉の拡散がないことである。放射化、あるいは汚染コンクリートでは放射性物質が発生、あるいは吸着している部位が、骨材種やセメント種、あるいは細孔分布に応じたものになると考えられている。したがって、コンクリートを素材別に分別回収できれば、各素材にそれぞれの放射性レベルが存在し、クリアランスレベル以下の素材との分離が可能であると考えられる。これまでの骨材再生処理の知見を活用し、本研究では本手法の放射性コンクリート廃棄物処理への適用について、その妥当性、および経済的有利性を検討する。また、実際に廃棄放射能汚染コンクリートの処理に必要な要件を明らかにして、処理の無人化・自動化が可能な処理プラントを設計するための基本的なデータを取得することを目的としている。

大量に発生することが危惧される放射化コンクリートの合理的かつ経済的な適正処理といった課題を解決するものとして、廃コンクリート塊を破碎して、骨材のみを再生骨

材として取り出す高度再生処理技術を応用したものである。すなわちコンクリートを破碎して、高密度な粗骨材、やや低密度な細骨材、および多孔質なセメント水和物を物理的に分別するものである。これまでも機械的な破碎や磨砕による骨材高度再生処理技術は存在する。しかしながら、水中で破碎・分離が可能な事、それにより発生微粉は気中に発散されず回収が容易な事。さらに骨材を殆ど損傷させず、微粒化することもないため、特にセメント組成元素が放射化したり、セメント水和物細孔中に吸着されたりして、コンクリートを放射性物質足らしめた原因物質だけを選択的に回収可能となる。もちろん骨材の組成元素が放射化したものであっても同様である。水中パルス放電によるこのような技術は、唯一研究代表者らによって立案、実証されたものである。

固体状の放射性廃棄物は、低レベル放射性廃棄物と高レベル放射性廃棄物に大別され、これらは陸地に埋設して処分することとされている。低レベル放射性廃棄物についてはその放射能濃度に応じて、浅地中トレンチ処分及びコンクリートピット処分がなされ、高レベル放射性廃棄物は、地表から300m以深の地層処分がなされることとなっており、現在、そのための制度づくりが進められていたところである。しかし今後は原子力施設の廃止措置が進むと、比較的高レベルの放射性コンクリート廃棄物が大量発生する。ここにおいて、放射性コンクリート廃棄物の除染、およびクリアランスレベル、および放射性レベル毎の素材分別回収技術確立されれば、放射性廃棄物総量の大幅縮減、ならびに経済・環境両面の負荷を縮小でき、大いに公共に資することとなる。

### 3. 研究の方法

#### (1) 放射性コンクリート廃棄物の除染と縮減についての考え方

先にも述べたとおり、一般的に、放射能を帯びた汚染されたコンクリートは、放射線を受けて生成放射能を含有する放射化コンクリートと、放射性微粒子を吸着して放射能を有する汚染コンクリートとに大別される。

##### ① 放射化コンクリート

長期被爆の影響によって、コンクリート中の素材に含まれる一部の元素が放射化したものである。放射化する元素（主に、NaとSi、NaとAl、NaとMg、Co、Eu）はまれに骨材に存在することもあるが、主にセメントペースト（セメント水和物）中に含まれる。

##### ② 汚染コンクリート

外部からの放射性物質の付着によって、微細孔を有する部位、特に、セメントペースト（セメント水和物）に内に吸着されて、その結果コンクリート全体が放射能を有することになる。微細孔の存在の多少により、つまり密実性によって、表層汚染、な

らびに浸透汚染に分けられる。

以上のように、それぞれの放射性核種濃度に関し、放射化コンクリートの場合には、コンクリート素材料、すなわち粗骨材、細骨材、セメント硬化体ではもとの元素組成が異なるため放射化反応によって生じる放射性核種の濃度は異なるものとなり、一方、汚染コンクリートの場合には、粗骨材への核種浸透はモルタル分への浸透に比べ少ないと考えられるためモルタル分の放射性核種の濃度がより大きいと考えられる。コンクリート中に占めるセメント水和物は全体質量の20%程度であり、放射性コンクリートの放射能がほぼセメントペースト部位に由来するものであれば、コンクリートからセメントペースト部を除去すれば除染でき、つまり骨材とセメントペーストを分離して、上位レベル放射性廃棄物と下位レベル放射性廃棄物、あるいはクリアランスレベルとして縮減可能となる。

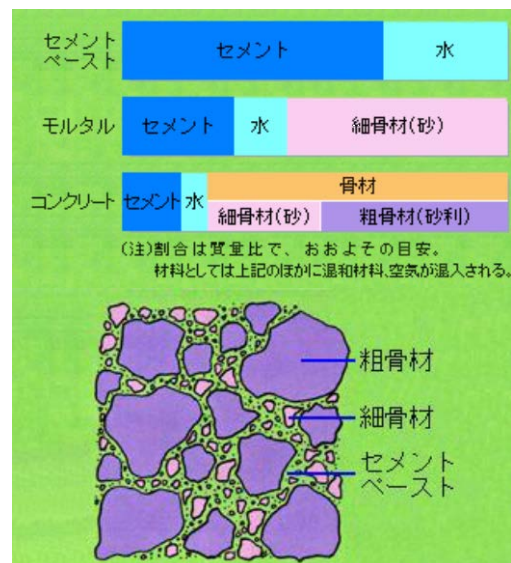


図1 標準的なコンクリート中の素材の割合

#### (2) パルスパワー法によるコンクリートの素材別分離回収法の除染への適用

本研究においては、既の実証してきた「水中コンクリート内パルス放電」によるコンクリートの骨材、セメント硬化体のほぼ完全な分離により、その対象が放射化コンクリートである場合において、除染、あるいは放射能廃棄物の処分区分ごとの分離回収の可能性を確かめることである。

「水中パルス放電による破碎処理法」は、実験室レベルでの結果による算出ではあるものの、粗骨材を偏心ロータ法と同等の低消費エネルギーにて再生し、また、予備試験結果ながら細骨材をも低消費エネルギーにて再生する可能性を有している。加えて、破碎・分離力の制御が可能であるため、残渣・微粉排出量が最低限となる利点も有しているほか、水中でのいわゆる湿式処理であるため、微粉の放散を水中内に閉じ込め、微粉回収が容易となる利点も有する。



一方、既往の気中機械式破碎・磨砕処理では、粉碎微粉の大量発生、また厳密に粗骨材と細骨材、さらにセメント水和物を経済的に分別回収するといった課題を克服しているとは言い難い。

「水中パルス放電による破碎処理法」は水中に置かれた廃コンクリート内におけるパルスパワー放電に起因する「選択的放電路形成によるセメントペーストの破碎」及び「衝撃波の波動性による骨材とセメントペーストの分離」という全く新しい制御破碎・分離原理に基づいている。

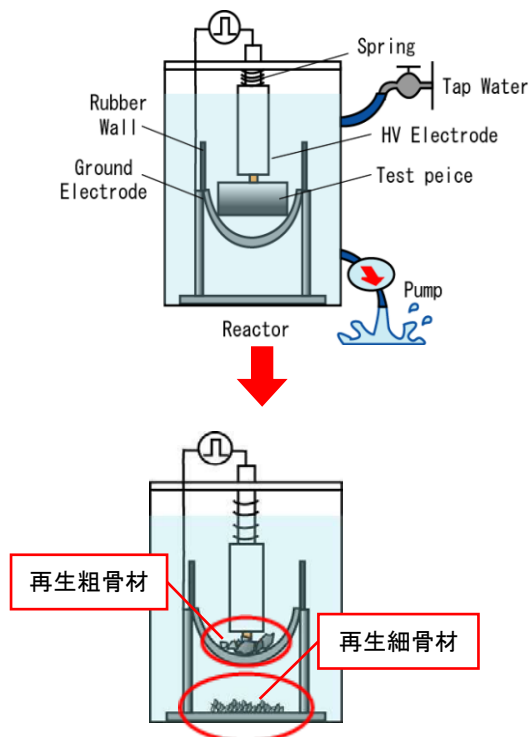


図2 水中コンクリート内パルス放電法

「選択的放電路形成によるセメントペーストの破碎」は、骨材とセメントペーストで構成されるコンクリートへパルス電圧を印加した場合、放電が絶縁破壊電圧のより小さいセメントペースト部分を選択的に進展することを利用しており、これにより骨材を破碎することなくセメントペーストのみを破碎・脆弱化することが可能となる。

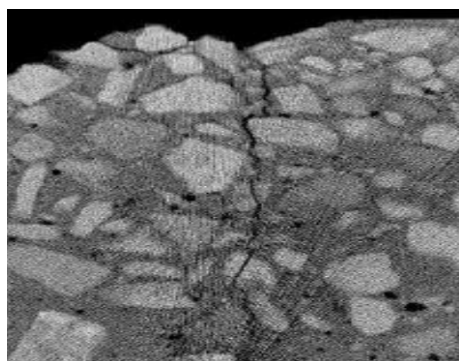


図3 コンクリート中に形成された放電路

また、「衝撃波の波動性による骨材とセメントペーストの分離」は、上記放電路へ形成されるプラズマの体積膨張とともに発生する衝撃波が、脆弱化したセメントペーストとより密度の高い骨材との界面において反射・透過する際に発生する引張応力を利用しており、これにより骨材からのセメントペーストの完全剥離が可能となる。

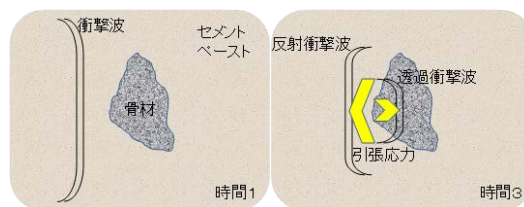


図4 衝撃波の透過と反射による境界剥離

このようなコンクリート内パルスパワー放電に伴う諸現象を骨材再生へ利用する本技術は、摩擦力のみによる既存の高度骨材再生処理技術と比較して、非常にスマートかつユニークであり、また、破碎・分離力を制御可能で骨材を全く破碎しないなど原理上この上ない整合性を有している。

#### 4. 研究成果

##### (1) パルスパワー法による模擬汚染コンクリートの除染処理試験

セシウムやトリチウム、ストロンチウムなど、多種多様の放射性核種による汚染が問題となっている中で、本実験ではセシウムを対象とした。ただし、放射性セシウムの場合、極微量ではあっても極めて高い線量を発することから、その使用には高い制限が課せられる。したがって、今回の実験においては、セシウムの安定同位体を用いた模擬汚染コンクリート供試体を製作した。

後述する微量成分分析のため、骨材には石灰石を用いたコンクリートブロック（寸法：10cm×10cm×10cm）を製作し、これを0.1M CsCl溶液に1ヶ月間浸漬させた後、風乾したものを模擬汚染コンクリートとして、除染・処理技術の適用性評価試験に用いた。

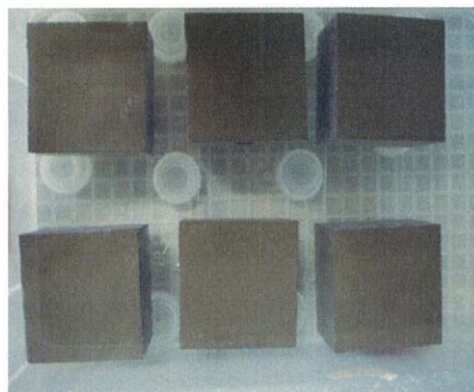


図5 供試体のCsCl溶液への浸漬

作製した模擬汚染コンクリートを切断し、コンクリート断面の EPMA マッピングより Cs の浸透を確認した。コンクリート表面で Cs 濃度は高く、内部では Cs 濃度は低かった。また、骨材部分には Cs の分布は見られなかったが、骨材とペーストの境界でやや Cs 濃度が高くなっていることが観察された。

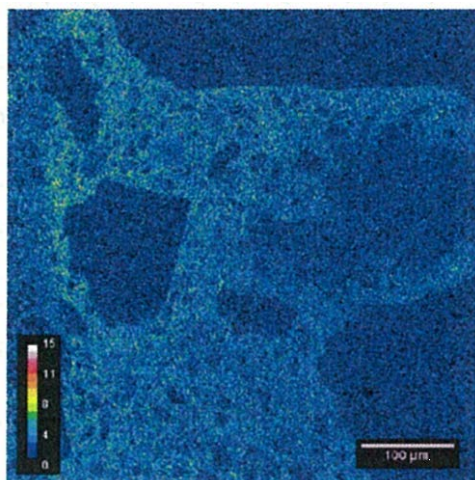


図6 EPMAによるブロック中Csの分布状況観察

このようにして製作したコンクリートブロックの水中パルス放電による骨材回収実験を実施した。実験により、ステンレスカゴ電極内に留まる試料を回収骨材試料、カゴ電極の目開きよりも小さくなって通り抜け、水槽の底に落ちた試料を残渣試料とする。まず低電圧側となるステンレスカゴ電極に目開き5mmのものを使用し、一回当たり6.4kJの放電を200回繰り返して行った(エネルギー量1280kJ相当)。次に、水槽の底に溜まった残渣試料を目開き1.2mmのステンレスカゴ電極に移し替え、一回当たりの放電エネルギーを3.6kJに落とし、さらに同様に放電を300回繰り返して行った(エネルギー量1080kJ相当)。

一連の実験によって得られた回収骨材試料の質量は1.48kgとなり、この際に使用したコンクリートブロックの質量2.46kgに対しおよそ59%となった。したがって、コンクリート作製時に占める骨材の質量割合が78.7%であったことから、コンクリートに含まれる初期の骨材質量に対して75%程度を回収できている。また、その吸水率は1.74%であったが、初期の骨材の吸水率0.57%を上回るものの、モルタルやセメントペーストとはほぼ完全に分離できているものと考えられる。

今回は分離させて得られた回収骨材試料と残渣試料のCs含有量を分析するために、酸により溶解する石灰石を骨材原料として使用している。酸溶解によって固相を取り除き、得られた液体試料を用いてICP分析によるCsの含有量を測定するためである。これらに加えて放電に使用された水槽中の水(処理水)に溶出したと考えられるCs量につい

ても同様にICP分析により測定した。

表2 ブロックに含まれていたセシウムの分離後における分配比率(%)

分離された試料	目開き5mmカゴ電極により回収された骨材	目開き1.2mmカゴ電極により回収された骨材	残渣	処理水(微粒子を含む)
セシウムの分配率	0.3	2.7	2.5	94.5

これらよりわかる様に、一連の処理によって、当初コンクリートブロックが含有していたCsのほぼ95%は水槽中の処理水に微粒子と共に移動したことが分かった。はじめに目開き5mmカゴ電極によって回収された骨材試料(粗骨材に相当)については0.3%となり、コンクリートブロックが含有していたCsは殆ど残存していない。次に目開き1.2mmカゴ電極により回収された骨材試料(細骨材に相当)については2.7%となり、水槽の底に溜まった残渣(多くは微細なモルタルやセメントペースト塊)の2.5%とほぼ同等となっている。しかしながら、いずれにおいても当初コンクリートブロックに含まれていたCsに比して極めて少ないと考えられる。

パルスパワーによる骨材再生処理においては、コンクリートに対しては、更に効率よくセメントペーストの付着量の少ない品質の高い骨材を回収できることが示された。また、セメントペーストや骨材の微粒子成分と骨材を分離することが可能であることから、骨材の微粒子成分やセメントペースト部に付着しているセシウム等の汚染を除去した骨材を回収し、汚染コンクリートの除染が可能であることを示唆する結果となった。

さらに、セシウムの90%程度は微粒子を含む処理水に存在していることが確認され、本手法が放電によるコンクリートの素材別分離を行う過程において、含有セシウムの「洗い出し」とも言うべき効果があることも確認された。

## (2) 福島第一発電所由来汚染コンクリート試料のパルスパワーによる除染試験

本研究において処理対象としたコンクリート製の蓋を下図に示す。



図7 福島県内にて採取されたコンクリート蓋

これを6個のブロックに切り分けて、それぞれをパルスパワーによる破碎と素材別分離実験に供試した。その結果、分離回収した資料に含まれる放射能の存在割合は下の通りとなった。

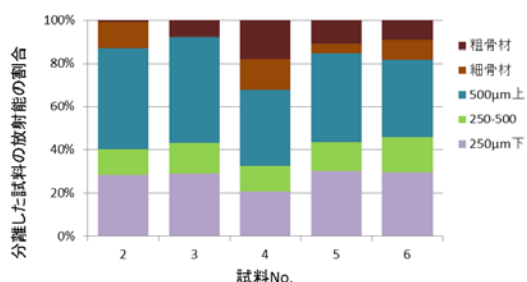


図8 分離回収した試料中の放射能割合

回収した粗骨材に含まれる放射性セシウムの濃度は、細骨材、ペースト成分に比べて何れも低く、最も濃度の低い試料 No. 2 では15Bq/kg、最も高い試料 No. 5 で163 Bq/kg となった。回収した細骨材に含まれる放射性セシウムの濃度は、粗骨材に比べ高く、ペースト成分より低い値となった。回収された細骨材で最も濃度の低い試料 No. 2 では135Bq/kg、最も高い試料 No. 5 で240 Bq/kg となった。また、放電処理において使用した水からはいずれも放射能は検出されなかった。さらになお、回収された骨材はいずれも再生コンクリート用の再生骨材として利用可能な品質であることが認められた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計5件)

- ① Eva Arifi; Achfas Zacoeb; Mitsuhiro Shigeishi, Effect of fly ash on the strength of concrete made from recycled aggregate by pulsed power, International Journal of Geotechnique, Construction Materials and Environment, 査読有、Vol. 7、2014、pp. 1009-1016、<http://www.geomatejournal.com/user/download/221/1009-1016-87890-Eva%20Arifi-Sept-2014.pdf>
- ② Eva Arifi; Koichi Ishimatsu; Shinya Iizasa; Takao Namihira; Hiroyuki Sakamoto; Yukio Tachi; Hiroyasu Kato; Mitsuhiro Shigeishi, Reduction of contaminated concrete waste by recycling aggregate with the aid of pulsed power discharge, Construction and Building Materials, 査読有、Vol. 67、2014、pp. 192-196、doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.06.001
- ③ 石松宏一; 飯笹真也; 浪平隆男; 重石光弘, コンクリートの物性が水中における

高電圧パルス放電による破碎に及ぼす影響について、コンクリート工学年次論文集、査読有、35巻、1号、2013、1543-1548頁、

[http://data.jci-net.or.jp/data\\_html/35/035-01-1253.html](http://data.jci-net.or.jp/data_html/35/035-01-1253.html)

〔学会発表〕(計14件)

- ① ARIFI Eva, ACHFAS Zacoeb, Mitsuhiro SHIGEISHI, FLY ASH CONCRETE MADE OF HIGH QUALITY RECYCLED AGGREGATE PRODUCED BY PULSED POWER TECHNIQUE, Structural Faults and Repair - 2014, 2014/7/9、London (UK)
- ② 小山伸康; 石松宏一; 飯笹真也; 重石光弘, コンクリート瓦礫の放射性汚染部位の除去に関する研究、平成25年度土木学会西部支部研究発表会、2014/3/8、福岡大学(福岡市)
- ③ ISHIMATSU Koichi; IIZASA Shinya; NAMIHIRA Takao; SHIGEISHI Mitsuhiro, SEPARATION AND COLLECTION OF COARSE AGGREGATE FROM WASTE CONCRETE BY ELECTRIC PULSED POWER, First International Conference on Concrete Sustainability, 2013/5/27、日本都市センター(東京都)
- ④ 戸越誠也; 石松宏一; 飯笹真也; 重石光弘, 放射性物質に汚染されたコンクリート塊の減容化に関する研究、平成24年度土木学会西部支部研究発表会、2013/3/9、熊本大学(熊本市)

〔その他〕

### ○報告書

コンクリート系廃棄物の処理処分方策に関する調査・検討、平成24年度地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書 -原子力事故廃棄物の処理・処分に係る対応-、独立行政法人日本原子力研究開発機構、2013、pp. (3.3-1) - (3.3-15)、[http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity\\_and\\_gas/nuclear/rw/library/2012/24-6-18.pdf](http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-6-18.pdf)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

重石光弘 (SHIGEISHI, Mitsuhiro)  
熊本大学・大学院自然科学研究科・教授  
研究者番号: 50253761

### (2) 研究分担者

浪平隆男 (NAMIHIRA, Takao)  
熊本大学・パルスパワー科学研究所・准教授  
研究者番号: 40315289