

氏名	金野 正晴 (きんの まさはる)		
授与学位	博士 (工学)		
学位授与年月日	平成 13 年 9 月 12 日		
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 1 項		
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 量子エネルギー工学専攻		
学位論文題目	熱中性子用低放射化コンクリート構造体の開発に関する研究		
指導教官	東北大学教授 中村 尚司		
論文審査委員	主査	東北大学教授 中村 尚司	東北大学教授 阿部 勝憲
		東北大学教授 四竈 樹男	

論文内容要旨

原子炉あるいは加速器施設のコンクリート構造体を設計する上で、熱中性子の核反応により生成する残留放射能を低減させることが、被ばく対策および放射性廃棄物処理処分対策の観点から、非常に重要である。しかし、本研究を開始するまで熱中性子核反応に対する低放射化コンクリートの開発に関する研究例はない。そこで本研究では、熱中性子核反応によって生成される長半減期放射性核種を可能な限り含有しないコンクリート構造体を開発し、これを原子炉あるいは加速器施設に供用することにより、作業員被ばくおよび放射性廃棄物処分の問題を解決しようとするものである。

本論文は、第 1 章背景と目的、第 2 章熱中性子照射によるスクリーニング試験、第 3 章低放射化コンクリートの製造試験および構造体の製造試験、第 4 章低放射化コンクリートの原子炉、加速器施設への適用検討、第 5 章まとめ、から構成されている。

第 1 章は、原子炉施設と加速器施設における遮蔽コンクリート構造体の放射化の現況、これまでの関連研究、目的と方法、からなる。著者が開始するまで低放射化コンクリートの開発は過去に例がないこと、クリアランスレベルの法制化が進んでいる現在、この開発はコンクリート放射性廃棄物を画期的に減少させ非常に重要であること、特に次世代の「クリアランスレベル以下にするための設計法」という新分野の土台になること、を述べている。

第 2 章は、試料のサンプリング、JRR-4 による熱中性子照射スクリーニング試験、測定試験、からなる。試料のサンプリングでは、約 300 種の骨材、約 50 種のセメント、を中心に、混和材、混和剤、補強筋、充填材、塗料、セラミックスなど、計 500 種類の原料をサンプリングした。熱中性子の照射場は平均熱中性子束が $3.5 \times 10^{13} \text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、カドミ比 (金箔) が 5.5 であり、照射時間は 1~6h であった。冷却期間を 1 日、30 日、0.5 年、10.5 年にとり、Ge 検出器で γ 線放出核種を、液体シンチレーションカウンターでトリチウムを測定した。元素分析は主に標準岩石試料 JG-1 を利用した放射化分析と ICP-AES で行った。本試験から次のような事柄が見出された。

ほとんどの骨材やセメントでは、 ^{152}Eu 、 ^{60}Co 、 ^{154}Eu がデコミッション時に非常に重要な残留 R I である。スクリーニング試験によって、骨材においては、図 1 に示すように石灰石 (Limestone)、石英天然骨材 (Quartzite)、アルミナ合成骨材 (Alumina ceramics) の Eu および Co の含有量が極めて少ないことがわかった。石灰石の中では、その多くは輝緑凝灰岩帯付近の、特に輝緑凝灰岩の 2 つの層で挟

また古生代層中に産出される、特別な石灰石中の Eu および Co の含有量が、普通の石灰石のそれらと比較して 1/10~1/100 になること、を見出した。石灰岩中の Na 含有量は地質学的に、古生代≪ジュラ紀≪第三紀≪第四紀、と年代が古いほど少ないことを見出した。

セメントでは、図 2 に示すように、白色ポルトランドセメント、ハイアルミナセメントの Eu および Co の含有量が少ないことを見出した。混和材ではフライアッシュの残留放射能が多く、混和剤では全てのものの残留放射能が少なく無視できることがわかった。また補強筋では、長繊維補強筋が鉄筋に比べて残留放射能の Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値 (残留 R I をその R I のクリアランスレベル規制値で除した総和) が 1/250~1/900 であった。充填材では、鉛系の残留放射能がモルタルに比べ、2 ケタ少なかった。塗料では、有機系の残留放射能が無機系のものに比べ 3~5 ケタ少なかった。その他、各種セラミックス、特殊材料などの残留放射能データを取得した。

第 3 章は、低放射化コンクリートの製造試験、低放射化性能などの性能評価試験、構造体の製造試験、からなる。2 章のスクリーニング試験で候補となった石灰石、石英天然骨材、アルミナ合成骨材、白色ポルトランドセメント、ハイアルミナセメントなどを組み合わせて、汎用普及型、超低放射化型、超高強度型、中性子吸収型の 4 タイプの低放射化コンクリートを設計した。開発に成功した低放射化コンクリートの数は、表 1 に示すように、汎用普及型 4、超低放射化型 2、超高強度型 1、中性子吸収型 1 の計 8 である。また、安定供給と高機能合成骨材の自由設計の可能性を調べるため、2 つの製造方法で様々な低放射化合成骨材の製造試験を行った。1 つは溶融-焼結-再結晶の工程で、もう 1 つは圧密-焼結の工程である。残留放射能は普通コンクリートと比べ前者で 1/10、後者で約 1/100 の低放射化骨材が得られ、どちらも大量生産と高機能の自由設計が可能であることがわかった。性能評価試験では、JASS 5N に対応する性能評価試験と熱中性子照射による残留放射能の評価試験を行った。本試験から以下の結論が見出された。

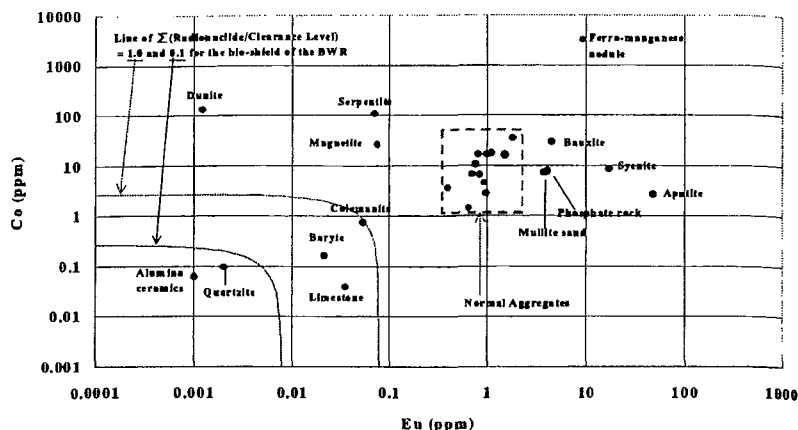


図 1 各種骨材中における Eu および Co の平均含有量

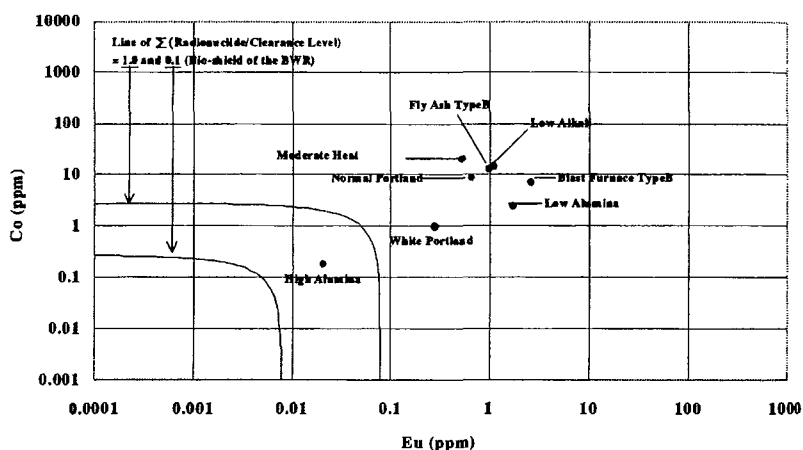


図 2 各種セメント中における Eu および Co の平均含有量

低放射化コンクリート、遮蔽用コンクリート、普通コンクリートの残留放射能は、デコミッショニング時に、 ^{152}Eu 、 ^{60}Co 、 ^{154}Eu だけで Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値の 97~100% を占める。但しこれには例外があり、コルマナイトコンクリートの主要な残留

表 1 低放射化コンクリートの主要構成

Type of low-activation concrete	Aggregates		Type of cement
	Coarse	Fine	
1. Wide-Use Type1	Limestone	Limestone	White Portland
2. Wide-Use Type2	Quartzite	Silica sand	White Portland
3. Wide-Use Type3	Limestone	Limestone	Alumina
4. Wide-Use Type4	-	Silica sand	Alumina
5. Super-low Type1	Quartzite	Quartzite	Alumina
6. Super-low Type2	Synthetic	Synthetic	Alumina
7. High-Strength	Limestone	Limestone	White Portland
8. Neutron-Absorbing	Colemanite	Colemanite	White Portland

RI は ^{134}Cs で、重晶石コンクリートの主要な残留 RI は ^{138}Ba である。低放射化コンクリート中の Eu および Co の含有量は、普通コンクリートや遮蔽用コンクリートに比べ、1~2.5 ケタ少ないことが見出された。 ^{24}Na は加速器施設メンテナンス時に重要な残留 RI であるが、その親元素である Na の含有量は普通コンクリートに比べて 2 ケタ少ないことがわかった。低放射化コンクリートのデコミッショニング時における Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値を、普通コンクリートや遮蔽用コンクリートと比較して表 2 に示す。

表 2 低放射化コンクリート、参考コンクリートの Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値

(BWR の RCCV 遮蔽コンクリート、40 年運転を仮定)

Item	Σ (Radionuclide/Clearance Level)	
	1d cooling (^{24}Na , %), other	5y cooling ($^{152}\text{Eu} + ^{154}\text{Eu} + ^{60}\text{Co}$, %), other
Ordinary concrete		
Sandstone concrete	263 (94%), (^{152}Eu , 4.0%)	11 (98%), (^{134}Cs , 1.2%)
Andesite concrete	148 (77%), (^{152}Eu , 9.9%)	19 (99%)
Basalt concrete	149 (74%), (^{152}Eu , 12%)	23 (99%)
Shielding concrete		
Magnetite concrete	31 (7.3%), (^{60}Co , 33%)	11 (97%), (^{55}Fe , 3.0%)
Baryte concrete	5.3 (11%), (^{138}Ba , 50%)	3.1 (37%), (^{138}Ba , 61%)
Serpentine concrete	80 (29%), (^{60}Co , 59%)	29 (100%)
Peridotite concrete	77 (4.4%), (^{60}Co , 86%)	36 (100%)
Low-activation concrete		
Wide-Use Type1	2.8 (60%), (^{152}Eu , 21%)	0.61 (99%)
Wide-Use Type2	2.6 (67%), (^{152}Eu , 17%)	0.50 (97%), (^{134}Cs , 2.0%)
Wide-Use Type3	4.7 (84%), (^{152}Eu , 9.0%)	0.41 (100%)
Wide-Use Type4	5.0 (92%), (^{152}Eu , 4.4%)	0.23 (99%)
Super-Low Type1	3.2 (90%), (^{152}Eu , 2.0%)	0.13 (95%), (^3H , 4.0%)
Super-Low Type2	5.7 (97%)	0.059 (98%), (^{55}Fe , 1.0%)
High-Strength	5.0 (69%), (^{152}Eu , 21%)	0.97 (99%)
Neutron-Absorbing	23 (4.8%), (^{134}Cs , 90%)	4.6 (14%), (^{134}Cs , 85%)

これは BWR 遮蔽コンクリート、40 年運転、の条件で計算したものであり、設計時に安全係数を 2 とした場合でも Wide-Use Type2、Wide-Use Type3、Wide-Use Type4、Super-Low Type1、Super-Low Type2、の Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値は 1.0 以下なので、これらの低放射化コンクリートを使用した場合、BWR 遮蔽コンクリートは全てクリアランスレベル以下となる。低廉で標準的な低放射化コンクリートである Wide-Use Type1 は安全係数を 2 とすると Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値は 1.22 なので、これをもう少し改良すれば、BWR 遮蔽コンクリートは全てクリアランスレベル以下になる。概して低放射化コンクリートの Σ (Radionuclide/Clearance Level) 値は、普通コンクリート（砂岩コンクリートと安山岩コンクリートの平均）の 0.0004~0.04 であった。

これらの機械的強度、遮蔽能力、ワーカビリティなどの諸性能は、表 3 に示すように、普通コンクリートと比べ同等あるいはより以上であった。本研究では特別に耐爆裂・耐熱性能も調べ、良好なことを確認した。プレストレストコンクリート原子炉容器のコンクリートとして、普通コンクリートに比べ 4 倍の圧縮強度の低放射化コンクリート High-Strength ((Σ Radionuclide/Clearance Level)値は 0.97) の開発に成功した。Wide-Use Type1 の製造コストは普通コンクリート比 1.2 程度であり、他の低放射化コンクリートは全て高コストである。

表 3 低放射化コンクリートおよび参考コンクリートの諸性能とコスト

Type of concrete	Density (g/cm ³)	H ₂ O content (w%)		Compressive strength	Young's modulus	Heat & fire resistance	Workability test	Cost (/ton)
		Free	Other					
(Low-activation concrete)								
Wide-Use Type1	2.42	4.45	3.42	414	4.47	Fair	Good	1.2
Wide-Use Type2	2.24	4.60	3.79	296	3.25	Good	Good	5
Wide-Use Type3	2.46	1.42	6.69	715	4.57	Fair	Fair	10
Wide-Use Type4	2.09	3.47	8.77	319	2.30	Fair	Fair	10
Super-Low Type1	2.31	3.26	6.01	500	3.68	Fair	Fair	30
Super-Low Type2	2.98	0.93	7.05	773	6.15	Fair	Fair	50
High-Strength	2.46	2.81	2.70	969	4.95	Fair	Fair	2
Neutron-Absorbing	2.14	5.41	4.71	251	1.74	Poor	Fair	20
(Reference concrete)								
Serpentine concrete	2.28	3.47	12.26	303	2.49	Good	Good	1.2
Peridotite concrete	2.70	2.67	5.06	376	3.44	Good	Good	1.5
Baryte concrete	3.28	2.17	2.19	193	1.70	Poor	Fair	30
Magnetite concrete	3.58	1.44	2.85	490	3.18	Poor	Fair	20
Andesite concrete	2.32	3.51	4.47	316	2.43	Fair	Good	1
Sandstone concrete	2.29	3.23	3.49	240	2.26	Fair	Good	1

また、低放射化コンクリートと低放射化補強筋（炭素繊維）との組合せによる構造体は、暴露試験により、低放射化コンクリート構造体として実用可能なことが実証された。

評価手法に関しては、2つの新手法を開発した。放射化したコンクリートのトリチウムを測定する場合、そのサンプルの取扱いが難しいため正確に測定することが困難とされているが、本研究では測定が容易な ¹⁵²Eu との経験的な相関式、 ${}^3\text{H (Bq/g)} = {}^{152}\text{Eu (Bq/g)} \times [5\sim 27]$ 、から推定できることを見出した。またこれまで測定が困難とされたコンクリート中の結晶水・結合水量を高精度で測定できる「結晶水・結合水測定装置」を開発した。

第 4 章は、開発した低放射化コンクリートの原子炉施設への適用検討および大型加速器施設への適用検討からなる。これを原子炉や加速器施設に適用した場合、放射性廃棄物の減少による節減コストは原子炉では数十億円、大型陽子加速器施設では数百億円と見積られ、加速器施設のメンテナンス時空間線量率は低放射化コンクリート Wide-Use Type1 の適用でこれまでの約 1/3 になることが示された。

第 5 章は上記のまとめである。これらの成果は、今後建設されるこのような施設における作業員被ばくの問題と施設廃止時における放射性廃棄物処分の問題に画期的な解決策を与え、クリアランスレベル以下にするための設計法という分野を新しく生み出し、さらに新しい低放射化材料の開発の基礎データとして寄与するものと期待される。

論文審査結果の要旨

原子炉あるいは加速器施設のコンクリート構造体を設計する上で、熱中性子核反応により生成する残留放射能を低減させることが、被ばく対策および放射性廃棄物処理処分対策の観点から非常に重要である。しかし、本研究を開始するまで熱中性子核反応に対する低放射化コンクリートの開発に関する研究例は存在せず、低放射化材料の開発を意図して、コンクリート原料である骨材やセメントなどを照射した例も存在しなかった。本論文は原子炉を利用した熱中性子照射スクリーニング試験により、長半減期放射性核種の生成量が少ない骨材、セメント、補強筋などを選択し、使用目的に応じた低放射化コンクリートの製造方法を確立したもので、全文5章からなる。

第1章は序論である。

第2章では、原子炉の熱中性子照射による250種類に及ぶ原材料のスクリーニング試験によって、骨材においては、ある特殊な地層の石灰石、石英天然骨材、アルミナ合成骨材の放射化量が極めて少なく、セメントでは白色ポルトランドセメント、ハイアルミナセメントの放射化量が少ないことを見出している。石灰岩中のNaは地層年代が古いほどその含有量が少ないこと、長繊維補強筋の低放射化性、各種混和材、各種充填材などの比較について、新しいデータを提供している。

第3章では、これらの原料を組み合わせ、使用目的に応じて、汎用普及、超低放射化、超高強度、中性子吸収の4タイプ、計8種類の低放射化コンクリート製造方法を確立している。通常のコンクリートに比べ、それらの主なものは廃炉時残留放射能が $1/25\sim 1/250$ で、鉄筋に比べ放射化量が $1/680$ である炭素繊維筋などの低放射化補強筋との組合せによる低放射化構造体の製造方法も確立している。また、各種低放射化コンクリートの機械的強度、放射線遮蔽、耐熱耐火、施工性などの低放射化以外の諸機能についても、通常のコンクリートに比べ同等もしくはより以上であることを示している。コンクリート圧力容器のコンクリート材料として普通コンクリートに比べ強度が4倍もある超高強度低放射化コンクリートの開発にも成功している。

評価手法に関しては、放射化したコンクリート中において、測定が困難なトリチウムを測定が容易な ^{152}Eu から求める相関式を提案し、またこれまで測定が困難とされたコンクリート中の結晶水・結合水を高精度で測定できる「結晶水・結合水測定装置」を開発している。

第4章では、低放射化コンクリートを原子炉や加速器施設に適用した場合、原子炉では数十億円、大型陽子加速器施設では数百億円のライフサイクルコストが低減する可能性があること、加速器施設のメンテナンス時に空間線量率が数分の一になり非常に有用であること、を示している。

第5章は結論である。

以上、本論文は、初めて低放射化コンクリートの製造方法を確立したことにより、今後建設されるこのような施設における作業員被ばくの問題と施設廃止時における放射性廃棄物処分の問題に画期的な解決策を与え、さらに新しい低放射化材料の開発の基礎データを提供したものであり、原子力工学、コンクリート工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。