

放射性セシウムをレーザ援用により その場で固定

尾崎 仁志^{*1} 川人 洋介^{*2}

Ozaki Hitoshi

Kawahito Yosuke

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震及び津波により、福島第一原子力発電所（以下1F）は全電源を喪失し、原子炉の冷却機能が失われた結果、1～3号機で炉心溶融（メルトダウン）及び水素爆発が発生した。これにより大量の放射性物質が環境中に放出され、甚大な被害と長期的な環境影響を引き起こした。

事故後、原子炉建屋周辺では高線量の放射性廃棄物が大量に発生し、その多くは¹³⁷Csを主体とする放射能に汚染されたコンクリート及び瓦礫である。現在も廃炉作業と並行して除染や廃棄物管理が続けられており、2023年時点での保管中のコンクリート及び瓦礫廃棄物は約6万m³に達し¹⁾、保管容量の大部分を占めている。今後の建屋解体や燃料デブリ回収により、更に増加する見込みであり、効率的な減容と長期管理の技術が急務となっている。

こうした課題に対応するため、2024年には放射線量が比較的低い金属やコンクリートの廃棄物を対象とした減容処理設備が稼働し、コンクリートは1日に40m³処理されている²⁾。しかし、より高線量の廃棄物には新たな減容化技術が必要である。特に、Csはコンクリート内部に半年で10mm程度浸透することが知られており³⁾、その表層を効率的に処理できる技術が求められている。

筆者らは、レーザ技術を援用して廃棄物コンクリートの表面を局所的にガラス化し、放射性物質を固定化する新しいアプローチを提案した⁴⁾。この手法は、放射性物質をガラス体の内部に閉じ込めたう

えで除去可能とするものであり、従来法と比較して大幅な減容及び工程短縮が期待される。更に、レーザは遠隔操作及び自動化に適し、作業員が立ち入れない高線量環境下でも適用できるため、今後の廃炉技術として高い実用性が見込まれる。

本稿では、1Fの建屋構造物と同組成の模擬コンクリートに非放射性Csを添加し、レーザ照射によるガラス化を利用したCsの固定化挙動について研究した結果について紹介する。

2. 実験方法

2.1 供試材

1Fの建屋と同じ組成を再現した模擬コンクリートを調製し、安定同位体の¹³³Csを0.5 mass%添加して作製した。コンクリートはフライアッシュセメント、いわき市産の山砂と砂利、及びCsCl試薬を混合し、直径100mm、高さ200mmの円柱16本を一括で作製した。硬化後は湿度維持のため密閉状態で1か月間養生した。切断はコンクリート柱の上面から50mmの位置でコンクリートカッターにより水冷下で実施し、切断後は速やかに表面の水分を拭き取った。

2.2 レーザ照射実験

発振波長1070nm、最大出力500Wのファイバーレーザ発振器をスキャナヘッドに接続し、直径100mmの供試材表面に集光して照射した。レーザの集光位置におけるビーム径は29μmである。図1に、実験装置の構成概要と、レーザビームを円軌道

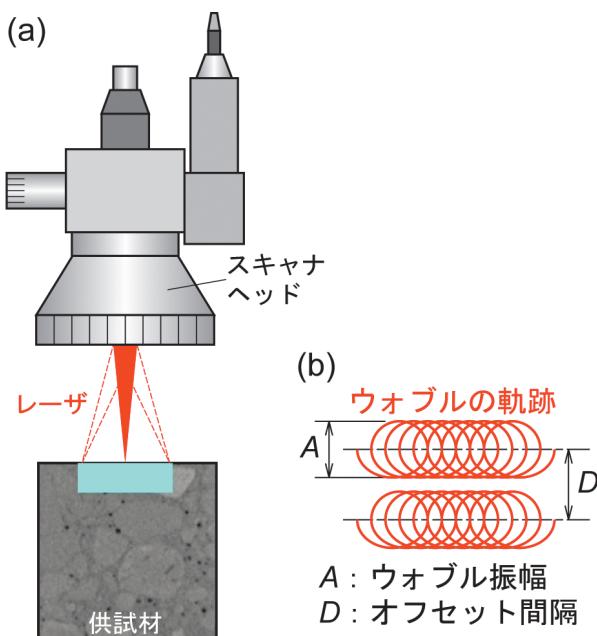


図1 (a)実験装置の構成概要及び(b)ウォブル照射条件の模式図

上に照射するウォブル照射条件を示す。

ウォブル振幅 0.125 mm, オフセット間隔 0.4 mm, 照射面積 $30 \times 50 \text{ mm}^2$ は一定とし, 照射速度を 2~16 mm/s と変化させて実験を行った。なお, 照射時間は照射速度により 238~1950 s となる。

2.3 観察方法及び分析方法

各速度でレーザ照射された供試材（以下, 試験体）4つについて, 溶融部及び非溶融部をマイクロフォーカス X 線 CT で詳細に観察した。分解能はボクセルサイズ 0.054 mm で, 最大 2048×2048 ピクセルの CT 画像を取得した。

また, 試験体の断面研磨後にカーボン蒸着した溶融部と非溶融部を含む領域 ($40 \times 40 \text{ mm}^2$) について, 電子プローブマイクロアナライザー（以下, EPMA）による元素マッピング (Cs, Ca, Si, Cl) を実施した。

更に, 試験体の溶融部と熱影響を受けていない部分（以下, 健全部）の粉末（平均粒径 0.1 mm）を用いて X 線回折（以下, XRD）分析を行い, 鉱物学的な分析を実施した。

2.4 Cs の濃度測定方法及び浸出試験方法

4 つの試験体の溶融部と健全部において, 約 0.2 g ずつの粉末を薬品分解後, それを硝酸及び水に溶解

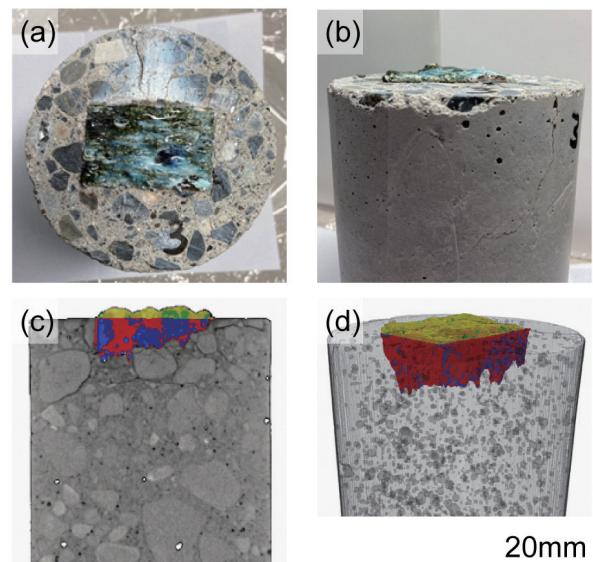


図2 試験体の溶融部の外観及び内部構造の例

(a)上面, (b)側面, (c)CT 断面, (d)3 次元 CT 画像

し, 罗過して原液を調製した。この溶液を成分濃度が検量線の範囲内に入るよう希釈してから, 誘導結合プラズマ質量分析法（以下, ICP-MS）により Cs 濃度を測定した。

また, 溶融部の粉末約 0.2 g に対し ASTM 規格に準拠した方法で浸出試験を行い, 浸出液中の Cs 濃度を ICP-MS により測定した。

これらの実験方法により, 模擬コンクリートのレーザ溶融（ガラス化）挙動及び Cs 固定化性能を総合的に評価した。

3. 実験結果及び考察

3.1 レーザ照射による溶融部

典型的な試験体の溶融部の外観及び内部構造の例を図2に示す。

図2(a)及び(b)において, レーザが照射された箇所のコンクリートが溶融しており, 溶融部は凸型の形状を呈していた。図2(c)及び(d)において, 黄色が試験体外部の溶融領域, 赤色が試験体内部の溶融領域, 緑色が試験体外部の空隙, 青色が試験体内部の空隙を意味しており, 前述の溶融部はこれらにより構成されていることが分かった。また, 溶融部の体積及び深さは照射速度の増加に伴い減少する傾向が確認された。

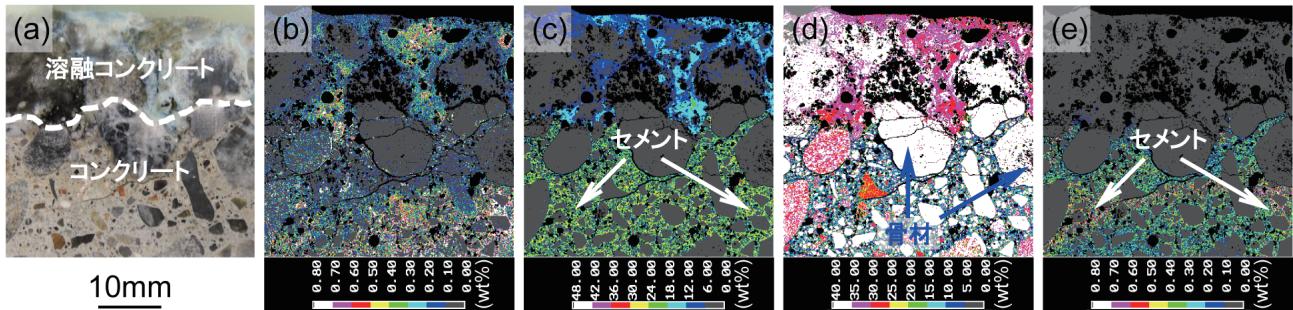


図3 (a)試験体溶融部の断面及び元素マッピング結果の例：(b)Cs, (c)Ca, (d)Si, (e)Cl

3.2 EPMA分析結果

図3に、照射速度4 mm/sにおける試験体溶融部の断面及びEPMAによる元素マッピング結果の例を示す。図3(a)の光学顕微鏡写真では、溶融部（溶融コンクリート）は濁ったガラス状に見える。非溶融部において、図3(d)Siのマップに骨材の分布が示され、図3(c)Ca及び(e)Clのマップにはセメントの分布が示されている。図3(b)Csのマップでは、一部の骨材及びセメント中にCsの存在が認められた。なお、黒雲母を含む特定の骨材がCsを効果的に吸収することが報告されている⁵⁾。

溶融部においては、Cs, Ca, Siのマップに不均一な混合状態がみられる。この不均一性は骨材のサイズや分布がランダムであることに起因し、Csは吸着や固定された状態ではなく、固溶体として存在していると推測される。一方で、ClのマップにはClの存在が認められず、これはレーザ加熱によりClが蒸発したためと考えられる。また、図3(b)～(e)の黒色部分は、分析試料作製時に溶融部及びその周辺の脆弱性により生じた欠陥である。この脆弱性は、原子力施設の効率的な廃止措置に本レーザ技術が有効であることを示している。

3.3 XRD分析結果

図4は、照射速度4 mm/sにおける試験体の溶融部のXRD分析結果を、コンクリートの健全部と比較した例である。図4(b)に示される健全部では、セメント関連鉱物としてカルシウムシリケート水和物(C-S-H, 図中のCS), ポートランド石(図中P), 及びフリーデル塩(図中F)のピークが主に検出された。なお、フリーデル塩は塩素含有鉱物であり、純粋なコンクリートには通常存在しないが、供試材調製時にCsClが添加されたことにより検出された

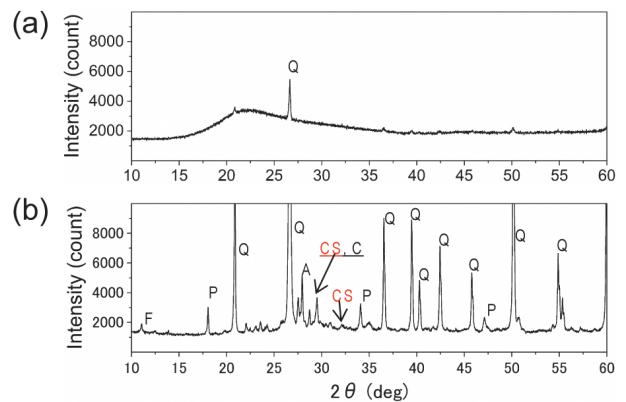


図4 試験体の溶融部及び健全部のXRD結果の例

(a)溶融部, (b)健全部

と考えられる。

一方、図4(a)に示される溶融部では、溶融コンクリートの境界内や内部に非溶融の骨材として石英のピークのみが認められた(図中Q)。また、22°付近の幅広いピークとして非晶質成分の回折が認められ、コンクリート溶融部のガラス化が示唆された。なお、照射速度によるXRDピークの顕著な違いは見られなかった。

3.4 Cs捕捉率の評価

表1に、照射速度2～16 mm/sにおける試験体のガラス化部のCs濃度を健全部と比較した結果を示す。健全部のCs濃度は0.244～0.337 mass%の範囲で、平均は0.295 mass%であった。一方、ガラス化部のCs濃度は0.227～0.366 mass%の範囲で変動し、照射速度による影響は見られなかった。ガラス化部の平均Cs濃度は0.291 mass%で、健全部と同程度であった。

Cs捕捉率の実験値は、表1のガラス化部の平均Cs濃度(0.291 mass%)を健全部の平均Cs濃度

表1 Cs濃度の測定結果

試験体		Cs濃度 (mass%)
照射速度 (mm/s)	分析箇所	
2	ガラス化部	0.366
4	ガラス化部	0.227
8	ガラス化部	0.292
16	ガラス化部	0.277
—	健全部	0.312
—	健全部	0.244
—	健全部	0.295
—	健全部	0.337
—	健全部	0.289
—	健全部	0.293

表2 Cs浸出試験の結果

試験体		粒径 (μm)	浸出液濃度 (ppm)	規格化浸出率 (g/m ²)
速度 (mm/s)	分析箇所			
2	ガラス化部	75~150	0.46	0.06
4	ガラス化部	75~150	0.29	0.06
8	ガラス化部	75~150	0.46	0.08
—	健全部	75~150	130	—
—	健全部	<75	280	—

(0.295 mass%)で除した値で99%となった。過去の研究では、模擬低レベル放射性廃棄物の熱プラズマ溶融に関し、Cs捕捉率を推定式により評価しており、Csの推定捕捉率は57%であった⁶⁾。本実験について同様に推定捕捉率を計算すると97%となり、先に計算した値99%とほぼ一致する。このようにCsがガラス体内に固定化されることは、これまで報告されていない新たな現象である。

3.5 Cs浸出率の評価

Csの浸出試験の結果を表2に示す。照射速度2~8 mm/sにおけるCsの浸出液濃度は0.29~0.46 ppmであり、コンクリートの健全部における濃度の1/100未満であった。濃度の変動は測定誤差によるものではなく、前述のとおりコンクリートの不均一性によるものであると考えられる。また、規格化したCs浸出率は0.06~0.08 g/m²であり、ASTM規格の2 g/m²を下回っている。したがって、レーザによるCsのその場固定化技術が、Csの固定化に有効であることが浸出試験の結果から示された。

4. まとめ

本研究では、1Fの建屋コンクリートと同じ成分を持つ供試材を用い、レーザ照射によって現場でコンクリートをガラス化し、その中にCsを閉じ込める新しい固定化技術を開発した。この方法では、吸着剤や追加の固定化処理を使わずに、レーザ照射のみでCsを効率よくガラス体内部に取り込むことが可能である。特に、沸点が951Kと低く揮発しやすいCsを高温(1.9×10^3 K以上)⁷⁾の溶融コンクリート(ガラス状態)中に閉じ込めることは、これまでに例のない革新的な手法である。

実験の結果、Csの捕捉率は99%と高く、従来の熱プラズマ溶融法(57%)を大きく上回った。また、理論計算による予測値(97%)ともよく一致した。更に浸出試験では、ガラス体からのCs浸出率がASTM規格(2 g/m²)を大幅に下回る0.06~0.08 g/m²と、優れた閉じ込め性能を示した。これらの成果から、レーザを援用したガラス化によるCsのその場固定化技術は、2051年の廃炉完了を目指す1Fのみならず、他の原発の廃炉にも応用可能な高効率で信頼性の高い放射性Csの管理技術として有望であることが示された。

参考文献

- 「廃炉中長期実行プラン2023」(2023.3.30) 東京電力ホールディングス(株)
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2023/d230330_15-j.pdf
- 「福島第一原発で「減容処理設備」の運用を開始」(2024.2.13) 朝日新聞
<https://www.asahi.com/articles/ASS2F6FYFS2FUL-BH00B.html>
- 北野勇一, 他, コンクリート工学年次論文集, **36**(1), 568-573 (2014)
- H. Ozaki, et al., *Materials & Design*, **252**, 113766 (2025)
- 小暮敏博, 他, 地球科学, **49**(4), 195-201 (2015)
- 安井晋示, 他, 原子力バックエンド研究, **6**(1), 91-99 (1999)
- Y. Kawahito, et al., *Optics and Lasers in Engineering*, **180**, 108258 (2024)

(*¹三重大学, *²海洋研究開発機構)