

低放射化コンクリートの中性子照射実験

前川利雄* 野中 英** 梅津朋岳*** 吉松賢二****

コンクリートが中性子線を浴びると、放射性核種が内部に生成する（放射化）。本稿では、放射線遮蔽コンクリート壁を対象とした低放射化コンクリートを開発し、中性子照射実験を行った結果を報告する。低放射化コンクリートは、骨材に石灰石碎石・碎砂を用いており、セメントの一部を石灰石微粉末で置換している。中性子照射実験の結果、普通コンクリートにおいて照射直後から3日後までについて、最も誘導放射能量が大きいのは²⁴Naであり、低放射化コンクリートでは誘導放射能は約1/7であった。

キーワード：放射化、放射性核種、石灰石骨材、石灰石微粉末、中性子照射

1. はじめに

コンクリートが中性子線を浴びると、コンクリート内に放射性核種（誘導放射能）が生成される（Fig.1）。このような現象を「コンクリートの放射化」と呼ぶが、問題となる放射化は主にナトリウム（Na）や、コバルト（Co）などのコンクリート中に存在する不純物質に起因する。放射化したコンクリートからはガンマ線などの放射線が放出されるので、放射線被ばくや放射性廃棄物としての課題が生じる（Table1）。

原子力発電所や粒子線加速器施設などの施設では、コンクリート壁を放射線遮蔽体として用いている。これらの施設においては、運転停止後のメンテナンス作業時の放射線による被ばく線量を基準値以下にする必要がある。

コンクリート内に残留する誘導放射能は時間の経過に伴い減衰する。したがって、運転停止から作業開始までの時間（冷却時間）を長くすることにより、被ばく線量率は低減する。しかしながら、冷却時間の増加は施設の稼働率に大きな影響を及ぼす。また、十分な冷却時間が取れず、放射化したコンクリートからの放射線量が大きい場合には、作業者の放射線防護上の配慮が必要となる。さらに、放射能の時間減衰率が小さい放射性核種、つまり半減期の長い長寿命核種がコンクリート内部に生成されると、必要な冷却時間は増加する。施設の解体時には放射化したコンクリートは放射性廃棄物となる可能性があり、環境への負荷となると同時に莫大な廃棄コストが必要となる。

放射化を低く抑えたコンクリート、すなわち低放射化

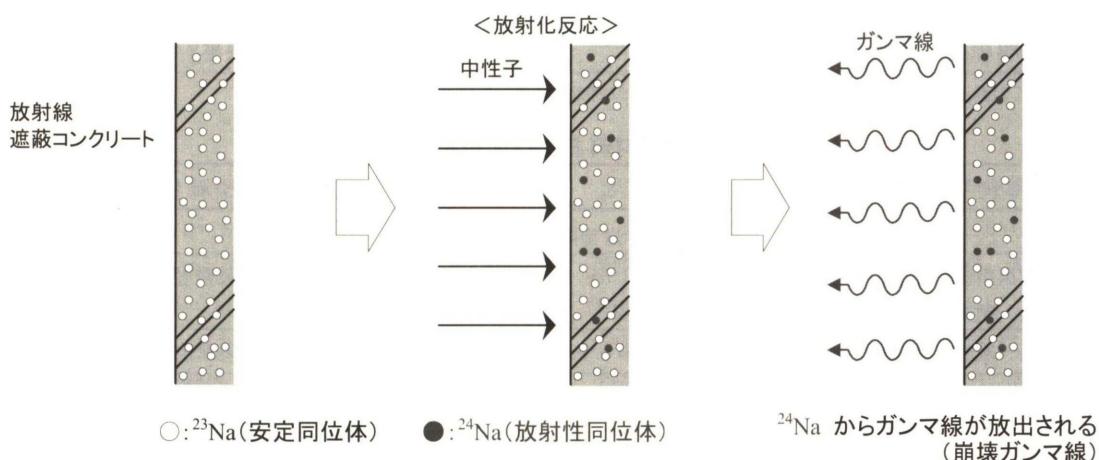


Fig.1 コンクリートの放射化のメカニズム (例：²⁴Naの生成)
参考文献¹⁾より(一部改)

Table1 コンクリートの放射化の問題とニーズ
参考文献¹⁾より(一部改)

	供用期間中	解体時
放射化問題 (対象核種)	メンテナンス者や利用者などの被ばく(²⁴ Naなど)	長寿命核種による廃棄物の放射化レベル(¹⁵² Eu, ⁶⁰ Coなど)
ニーズ	コンクリートからの放射線量の低減	コンクリート中の残留誘導放射能量の低減

- * 技術研究所 建築構造研究グループ
- ** 技術研究所 建設材料研究グループ
- *** 建築事業本部
ソリューション技術部 エンジニアリンググループ
- **** 技術研究所 技術部長

特性に優れたコンクリートを低放射化コンクリートと呼ぶ。コンクリート中の不純物の量を少なくすることにより、低放射化コンクリートを作ることができる。本開発では、放射化に関するコンクリート中の不純物を低減するため、低放射化骨材として良好であることが知られている石灰石^{1) 2) 3)}を骨材として使用し、さらに、セメント由来の不純物低減のため、セメントの一部を石灰石微粉末に置換したコンクリートを開発し、中性子線照射実験を行いその性能を確認した。

2. 調合設計

2.1 基本コンセプト

コンクリートの放射化特性は、セメントと骨材の2つの構成材料の組成に依存する。従来の低放射化コンクリートの多くは、不純物を多く含む骨材が放射化することから、石灰石骨材などの純度の高い材料を使うことによって低放射化特性を実現している。このようなコンクリートではセメントに由来する不純物成分による誘導放射能が相対的にコンクリートの放射化特性に大きな影響を及ぼすようになる。そこで、本開発では従来の骨材選別に加えて、セメントの一部を不純物質成分の少ない石灰石微粉末材料に置換する調合設計手法を導入し、セメント由来の不純物量を低く抑えることを実現した。

2.2 使用材料の化学組成および調合

本実験で使用した材料および使用材料の詳細をTable2に示す。セメントは普通ポルトランドセメントを使用し、低放射化コンクリートはセメントの一部を石灰石微粉末で置換した。普通コンクリートは、岩手県一関産碎石、砕砂、宮城県黒川産川砂を使用し、低放射化コンクリー

トは、八戸市松館産の石灰石碎石、砕砂を使用した。

Table3に、コンクリートの調合を示す。水セメント比50%，単位水量 165kg/m³の普通コンクリートをベースとして、低放射化コンクリートではセメントの 30kg/m³を石灰石微粉末に置換した。

3. 化学分析

3.1 Na (ナトリウム) 総量

独立行政法人日本原子力研究開発機構 (JAEA, 以下、原子力機構) では、コンクリートの放射化のし易さをあらわす指標として、Na 総量を定めている⁴⁾。コンクリート内部での主たる ²⁴Na の生成核反応は、²³Na(n, γ)²⁴Na, ²⁴Mg(n,p)²⁴Na, ²⁷Al(n, α)²⁴Na, ²⁸Si(n,sp)²⁴Na であり、ナトリウム(Na), マグネシウム(Mg), アルミニウム(Al), ケイ素(Si)の含有量をナトリウムにおける影響度に換算しコンクリートの低放射化性能を定めたものが Na 総量である。米国 LRL (Lawrence Radiation Laboratory) の 6.2GeV Bevatron 遮蔽コンクリート骨材での測定例によれば、普通コンクリート壁の表面から深さ 34cm までの ²⁴Na 生成比率は 1 : 0.02 : 0.01 : 0.002 であるとしている。この生成比率は主に熱中性子の反応に依存した値であり、大強度陽子加速器施設 J-PARC では、この比率を採用している。後述するが、この ²⁴Na 生成比率は照射する中性子線のエネルギースペクトルにより変化する。

3.2 構成材料の化学分析結果

Table4に、セメント骨材の分析結果を、Table5に、米国 LRL 6.2GeV Bevatron 遮蔽コンクリート骨材での測定例の比率を用いた各材料における低放射化コンクリートと普通コンクリートの Na 総量の比較を示す。分析結果よ

Table2 使用材料および使用材料の詳細

	普通コンクリート	低放射化コンクリート
水	岩手県一関市上水道水	
細骨材	宮城県黒川産、川砂、密度 2.55g/cm ³ , 粗粒率 2.55 岩手県一関産碎砂、密度 2.69g/cm ³ , 粗粒率 2.85	八戸市松館産、石灰石碎砂、表乾密度 2.68g/cm ³ , 粗粒率 2.73
粗骨材	宮城県一関産、粘板岩、密度 2.72g/cm ³ , 粗粒率 6.70	八戸市松館産、石灰石碎石、表乾密度 2.69g/cm ³ , 粗粒率 6.56
セメント	普通ポルトランドセメント、密度 3.16g/cm ³	普通ポルトランドセメント、密度 3.16g/cm ³ 一部を八戸市松館産石灰石微粉末に置換
混和剤	ポリカルボン酸系 AE 減水剤	

Table3 コンクリートの調合

	呼び 強度	目標 空気量	目標スラン ブロー	W/C (%)	単位水量	セメント	石灰石微粉末	細骨材	粗骨材	混和剤	単位体積重量	単位量 (kg/m ³)	
低放射化	2.7	4.5± 1.5	18±2.5	55 49	165 170	300 347	30 -	826 802	1014 1004	5.51 4.50	2335 2323		
普通													

Table4 セメント、骨材の化学分析結果

	ig.loss (wt%)	SiO ₂ (wt%)	Al ₂ O ₃ (wt%)	Fe ₂ O ₃ (wt%)	CaO (wt%)	MgO (wt%)	SO ₃ (wt%)	Na ₂ O (wt%)
セメント	0.9	21.9	5.3	3.1	65.1	1.4	2.0	0.30
石灰石微粉末	43.6	0.4	0.1	0.1	55.4	0.5	0.1	0.01
普通骨材	5.8	66.3	15.5	3.9	3.3	2.1	0.1	3.20
低放射化骨材	43.6	0.4	0.1	0.1	55.4	0.5	0.1	0.01

Table5 各材料における普通コンクリートと低放射化コンクリート Na 量の比較

単位量	低放射化コンクリート					普通コンクリート						
	生成親核種 1m ³ 当たりの構成量 および Na 換算量(g/m ³)					単位量	生成親核種 1m ³ 当たりの構成量 および Na 換算量(g/m ³)					
	kg/m ³	Na	Mg	Al	Si	Na 総量	Kg/m ³	Na	Mg	Al	Si	Na 総量
セメント	300	670	2520	8420	30660	865.9	340	730	2770	9260	33730	945.5
		670.0	50.4	84.2	61.3			730.0	55.4	92.6	67.5	
石灰石 微粉末	30	2.1	90	15	57	4.2	—	—	—	—	—	—
		2.1	1.8	0.2	0.1			—	—	—	—	
細骨材	802	60	2410	420	1500	115.4	826	19790	10160	67560	255370	21179.5
		60.0	48.2	4.2	3.0			19790.0	203.2	675.6	510.7	
粗骨材	1004	74	3010	530	1870	143.2	1014	24300	12470	82940	313500	26005.8
		74.0	60.2	5.3	3.7			24300.0	249.4	829.4	627.0	
計						1128.7						48167.9

表中の数字の上段は生成親核種 1m³当たりの構成量、下段は 24Na 生成比率を乗じた数字

Table6 低放射化コンクリートと普通コンクリートの化学分析結果

	ig.loss (wt%)	SiO ₂ (wt%)	Al ₂ O ₃ (wt%)	Fe ₂ O ₃ (wt%)	CaO (wt%)	MgO (wt%)	SO ₃ (wt%)	Na ₂ O (wt%)
低放射化コンクリート	39.3	2.9	1.0	0.5	54.7	0.3	0.3	0.1
普通コンクリート	6.8	52.2	14.5	5.3	13.3	1.7	0.3	4.0

Table7 低放射化コンクリートと普通コンクリートの Na 量の比較

単位量	低放射化コンクリート					普通コンクリート					
	生成親核種 1m ³ 当たりの構成量 および Na 換算量(g/m ³)					単位量	生成親核種 1m ³ 当たりの構成量 および Na 換算量(g/m ³)				
	kg/m ³	Na	Mg	Al	Si	Na 総量	Kg/m ³	Na	Mg	Al	Si
2335	1730	420	12360	31600	1925.2	2335	69740	23970	180400	572460	73168.3
		8.4	123.6	63.2			69740	479.4	1804.0	1144.9	

表中の数字の上段は生成親核種 1m³当たりの構成量、下段は 24Na 生成比率を乗じた数字

り、各材料の Na 総量を算出した結果、低放射化コンクリートでは、セメントが 865.9g/m³、石灰石微粉末が 4.2g/m³、細骨材が 115.4g/m³、粗骨材が 143.2g/m³となり、セメントの Na 総量が多くなる結果となった。普通コンクリートでは、セメントが 945.5g/m³、細骨材が 21179.5g/m³、粗骨材が 26005.8g/m³となり、低放射化コンクリートと比較すると、細骨材、粗骨材起因の Na 総量が多くなった。

セメントを石灰石微粉末に置換した効果は、低放射化コンクリートで 870.1/m³、普通コンクリートで 945.5g/m³と Na 総量が 75.4g/m³低減された。

コンクリートに換算した Na 総量は、低放射化コンクリートで 1128.7g/m³、普通コンクリートで 48167.9g/m³と低放射化コンクリートの Na 総量は約 1/43 となつた。

3.2 硬化コンクリートの化学分析結果

試験練りを行ったコンクリートから採取された粉末試料に対して化学分析を行った。SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、CaO、MgO、Na₂O の測定方法は JCSA I-12「珪酸質原料の化学分析方法」に準拠して実施し、SO₃は JCSA I-11「調合原料およびダストの化学分析方法」に準拠して実施した。

Table6 に、低放射化コンクリートと普通コンクリートの化学分析結果を、Table7 に Na 総量の比較を示す。低放射化コンクリートの Na 総量は 1925g/m³、普通コンクリートの Na 総量は 73168g/m³となり、普通コンクリートと比較して低放射化コンクリートの Na 総量は約 1/38 となつた。

材料毎に測定した結果と、硬化したコンクリートから採取した測定結果は、低放射化コンクリート、普通コンクリートとともに大きくなつた。これは、材料採取時のばらつき、分析の精度に起因するものと考えられ、今後は

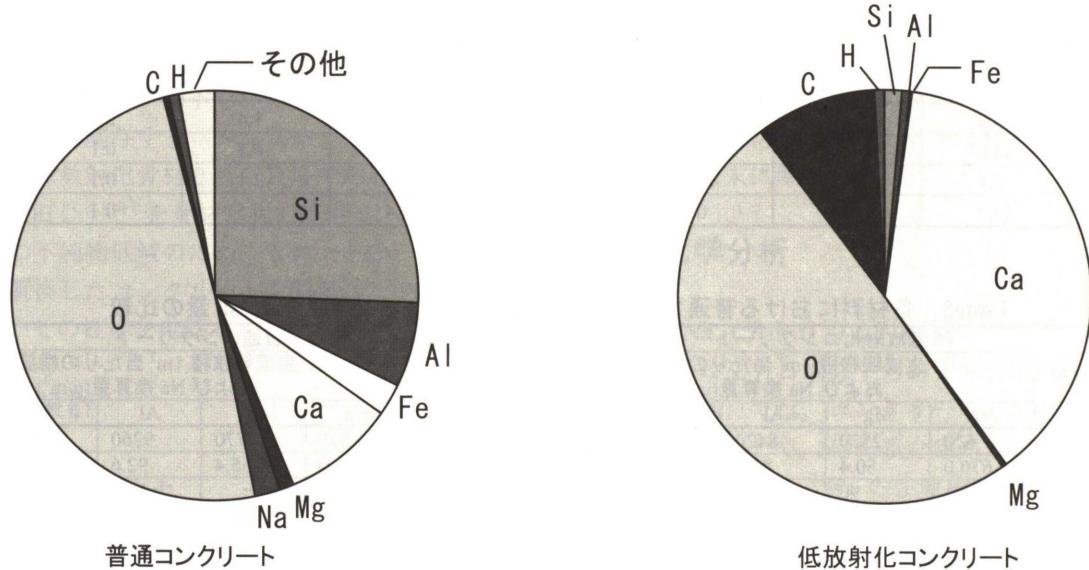


Fig.2 コンクリートの元素別組成

さらなる精度の向上が必要と考えられる。

Fig.2 に普通コンクリートと低放射化コンクリートについて、元素別の組成を求めたものを示す。約 50%程度を占める酸素(O)を除くと、普通コンクリートでは、ケイ素(Si), アルミニウム(Al)が多く存在する一方で、低放射化コンクリートではカルシウム(Ca)が多い。

4. 中性子照射実験

4.1 中性子照射実験概要

中性子の照射実験は原子力機構の核融合中性子源施設 FNS⁵⁾において行った (Fig.3, Photo1)。線源は D-T (重陽子-トリチウム) 反応による 14MeV 単色(高速) 中性子である。コンクリート試料は粉碎された粉末約 2g とし、表面には中性子束を評価するためにニオブ箔を添付した。照射は 3 日間にわたり断続的に行い、総照射時間は 16 時間、試料表面での中性子束は約 5×10^9 (n/sec/cm²) であった。放射化したコンクリートからの崩壊ガンマ線スペク

トルを同施設内の高純度ゲルマニウム半導体検出器 (Photo2) を用いて測定した。

4.2 硬化コンクリートの中性子照射実験結果

照射実験により得られた誘導放射能を Fig.5 に示す。普通コンクリートでは、照射後から 3 日後までにおいて最も誘導放射能量が大きいのは、²⁴Na (半減期 15.0 時間) であり照射終了後 1 日において 9.8×10^4 (Bq/g) であった。一方、低放射化コンクリートでは 1.5×10^4 (Bq/g) となり、約 1/7 である。例えば 2×10^4 (Bq/g) 以下にするためには、普通コンクリートでは約 2.6 日の冷却時間を必要とするのに対して、低放射化コンクリートでは約 15 時間で可能であり、それだけ放射線施設のメンテナンス作業を早く開始できる。また、施設の解体 (デコミッショニング) 時に問題となる長寿命核種の²²Na (半減期 2.6 年) については、普通コンクリートでは約 2×10^1 (Bq/g) 生成したが、低放射化コンクリートでは検出できなかった。低放射化コンクリートでは石灰石骨材を使用したことによりカル

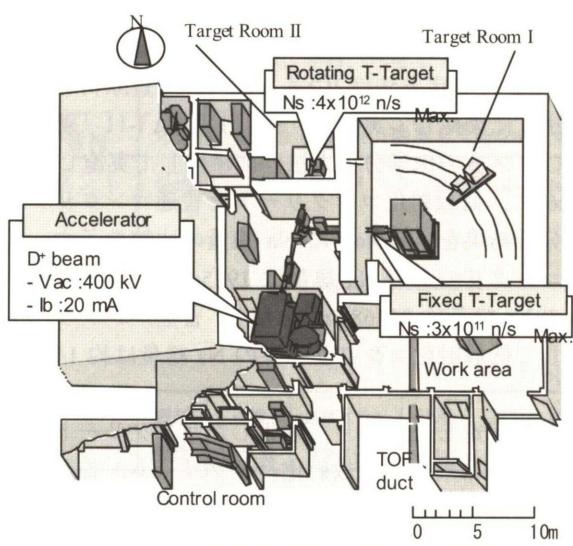


Fig.3 中性子線源施設 FNS 概要

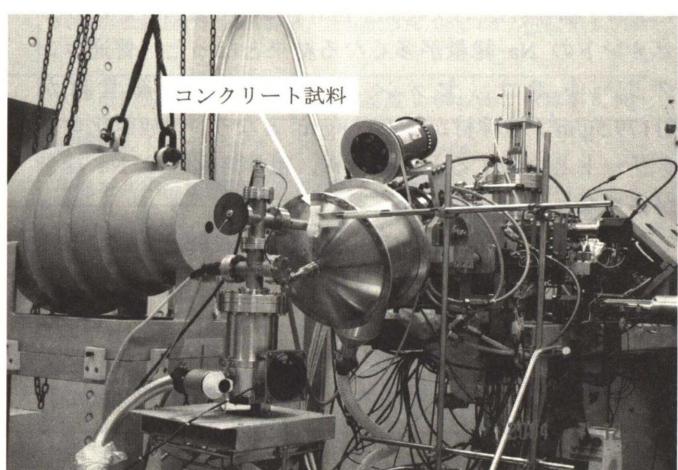


Photo1 中性子線照射実験

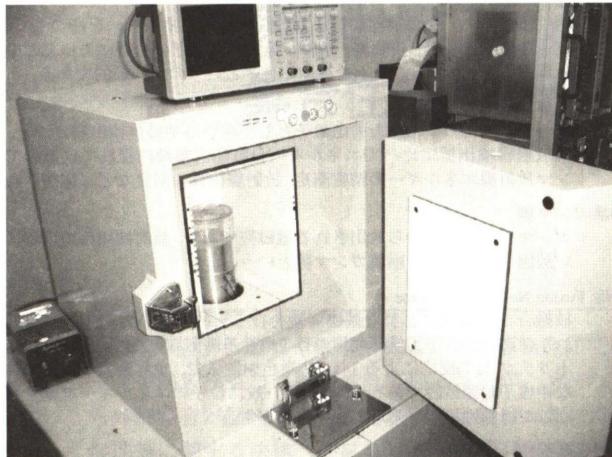


Photo2 ゲルマニウム検出器

シウム含有量が約4倍になったため、これに起因して生成される⁴⁷Ca（半減期4.54日）、⁴²K（半減期12.4時間）、⁴³K（半減期22.4時間）については増加している。

²⁴Naの誘導放射能量を、普通コンクリートと低放射化コンクリートで比較したものをFig.6に示す。図中の計算値はモンテカルロ法による中性子輸送計算³⁾（計算コード；MCNP4c⁶⁾）、断面積ファイル（核データライブラリ－JENDL-3.3⁷⁾）ならびに放射化計算（ACT-4⁸⁾）により求めた誘導放射能である。計算結果は、測定値をよく再現しており、計算の妥当性を確認できた。

4.3 14MeV 単色中性子に対応するNa総量

照射実験により確認された14MeV単色中性子に対する低放射化コンクリートの²⁴Naの低減効果が1/7であるのに対し、前章のNa総量により求めた結果は1/43あるいは1/38と、明らかに異なっている。これは、照射する中性子線のエネルギースペクトルにより誘導放射能の生成率（放射化断面積）が異なることによる。14MeV単色

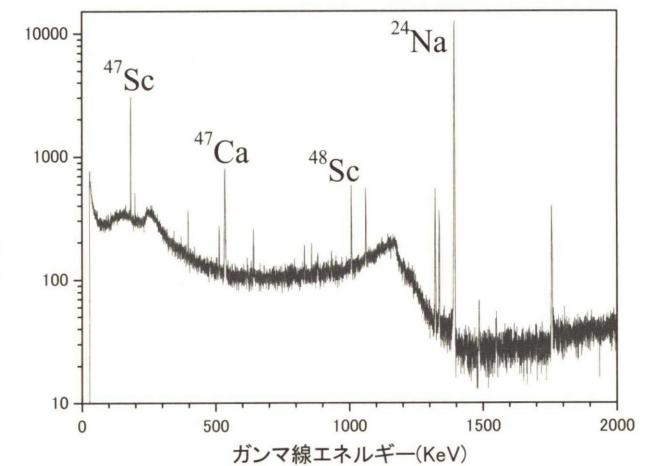


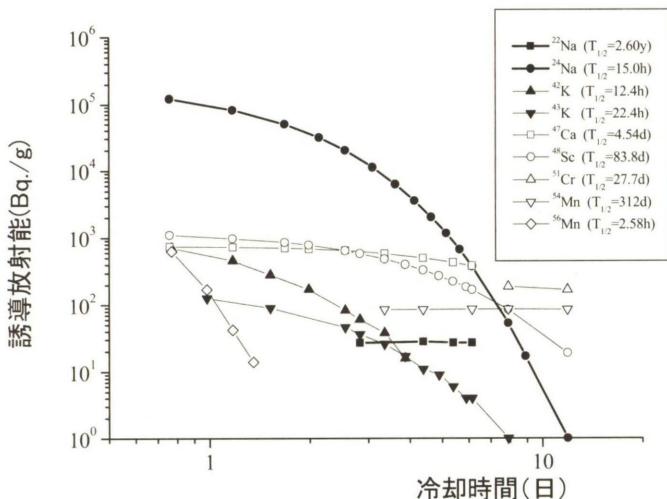
Fig.4 ゲルマニウム検出器による崩壊γ線スペクトルの測定例

中性子では、放射化断面積から求まるNa総量の比率がNa : Mg : Al : Si = 0.001 : 1 : 0.622 : 0となり、²³Na(n, γ)²⁴Na反応よりも²⁴Mg(n,p)²⁴Na反応の占める割合が高くなる。²⁸Si(n,sp)²⁴Na反応は、核破碎反応であり、14MeV単色中性子では起こらない（より高エネルギーの中性子による）ので、Siに対する係数は0となる。この比率でNa総量を計算すると、普通コンクリートに比べて低放射化コンクリートのNa総量は約1/9となり、照射実験と近似する結果になる。

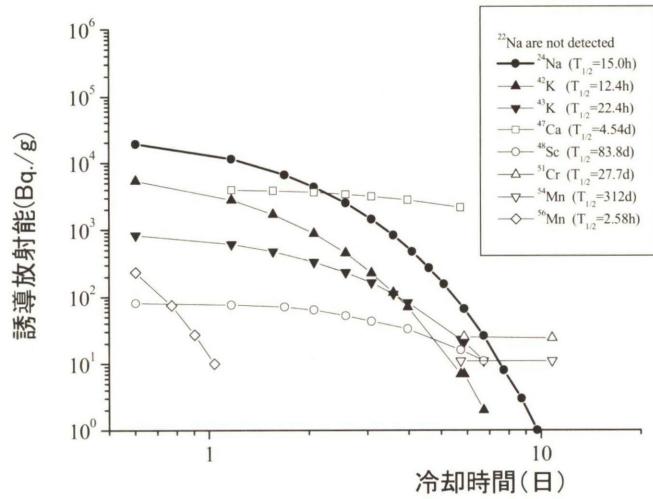
このように、照射する中性子線のエネルギースペクトルによってNa総量の比率も変化する。即ち、低放射化コンクリートの放射化性能は中性子線のエネルギースペクトルに強く依存する。

5. おわりに

骨材に石灰石を用い、セメントの一部を石灰石微粉末に置換した低放射化コンクリートを開発し、その放射化特性を中性子照射実験により評価した。その結果、14MeV



(A) 普通コンクリート



(B) 低放射化コンクリート

Fig.5 中性子照射実験を行ったコンクリートの誘導放射能（T_{1/2}：半減期）

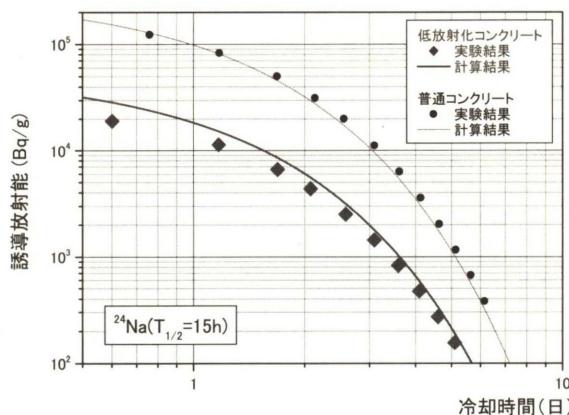


Fig.6 誘導放射能の比較

単色中性子に対する反応では、普通コンクリートに比べて²⁴Naの誘導放射能が約1/7に低減することを明らかにし、²²Naの誘導放射能の低減に有効であることを実験的に確認した。さらに、中性子輸送計算によるシミュレーション計算結果と実験結果はよく一致しており、計算の妥当性を確認した。今後は、原子力発電所や粒子線加速器施設、医療用放射線照射施設などのさまざまな施設の放射線遮蔽壁への低放射化コンクリートの適用を図っていく予定である。

〔用語解説〕

放射性核種

放射性同位体、放射性同位元素、ラジオアイソトープ(RI)などともいう。同一元素に属する(すなわち同じ原子番号Zをもつ)原子の間で原子量Aが異なる原子を同位元素といふ。このうち放射能をもつ同位元素を放射性同位元素とよぶ。

被ばく線量

人体が放射線にさらされることを被ばくといふ、このときの放射線の量を被ばく線量といふ。

半減期

放射能が半分になるまでの時間。

²⁴Na

主に²³Na(n,γ)²⁴Na, ²⁴Mg(n,p)²⁴Na, ²⁷Al(n,α)²⁴Naなどの核反応により生成される放射性核種。半減期は約15時間であり、中性子線照射直後から2~3日程度の期間において被ばく線量への寄与が大きい核種である。

²⁴Na 生成親核種

ナトリウム(Na)、マグネシウム(Mg)、アルミニウム(Al)、ケイ素(Si)のこと。これらの4元素は中性子線を浴びると、放射化反応を起こし²⁴Na(放射性核種)となるので、²⁴Na生成親核種と呼ばれる。

熱中性子

運動エネルギーの低い中性子のことをいい、エネルギーの高い中性子(例えば高速中性子など)に対する語である。物質の分子の熱運動と平衡状態のエネルギーで0.025eVである。広義には0.5eV以下を呼ぶ場合もある。

高速中性子

中性子のうち、ある特定の値より大きな運動エネルギーを持つものを、高速中性子と呼ぶ。炉物理、遮蔽、線量計測などの分野によってこの値は異なるが、0.5MeV以上を高速中性子というのが一般的である。

ゲルマニウム検出器

ゲルマニウムの単結晶を検出素子として用いる半導体検出器のこと。他の放射線検出器に比べてエネルギー分解能が格段に優れているのでガンマ放射線エネルギーの精密測定、放射線核種の同定などに応用される。

崩壊ガンマ線

ガンマ線は原子核から放出される電磁波であり、放射性核種の崩壊に伴い放出されるものを崩壊ガンマ線といふ。

FNS: Fusion Neutronics Source

核融合炉の開発に必要な基礎実験を行う目的で原子力機構内に建設された核融合中性子工学研究用のD-T中性子線源施設。線源は、重陽子(D)-トリチウム(T)反応による14MeV単色中性子で、世界最大クラスの強力な中性子線源施設である。(MeVは一般に粒子のエネルギーを表す単位。ここでは中性子のエネルギーをあらわす。)

放射化断面積

中性子やガンマ線などの放射線と物質との核反応で放射化のしやすさ、すなわち、放射能を生成する割合を表す物理量で、面積の単位をもつ。中性子は、電荷がないことから荷電粒子に比べて容易に核反応を起こすので、放射化断面積といえば、ほとんどの場合中性子に対してである。

謝辞

本研究開発は独立行政法人日本原子力研究開発機構との共同研究であり、核融合中性子工学研究開発ユニット西谷健夫氏、核融合中性子工学研究グループ佐藤聰氏に感謝します。また、FNSの運転に尽力いただいた原子力研究開発機構核融合中性子工学研究グループの沓掛忠三、田中滋、阿部雄一、関正和、荻沼義和、川辺勝の各氏に感謝します。

参考文献

- 1) 田野崎ほか、低放射化コンクリート—石灰石コンクリートの新たな展開、太平洋セメント研究報告第145号(2003)
- 2) 金野正晴、低放射化コンクリートの開発の現況、コンクリート工学、Vol.42, No.6, 2004.6
- 3) 中村尚司、放射線物理と加速器安全の工学、地人書館(2001)
- 4) 市村ほか、低放射化コンクリートの実用化試験・調査、日本原子力学会「2003年秋の大会」、B42
- 5) FNS (Fusion Neutronics Source):
<http://fnshp.tokai-sc.jaea.go.jp/index.html>
- 6) J.F.Briesmeister(Ed.), MCNP -A general Monte Carlo-particle transport code, version 4C, LA-13709, Los Alamos National Laboratory, 2000.
- 7) K.Shibata, T.Kawano, T.Nakagawa et al., Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3, J. Nucl. Sci. Technol. 39, 1125(2002)
- 8) Y.Seki, H.Iida, H.Kawasaki, et al., THIDA-2: An Advanced Code System for Transmutation, Activation, Decay Head and Dose Rate, JAERI 1301, Japan Atomic Energy Research Institute, (1986).

Neutron Irradiation Experiment of Low-activation Concrete

Toshio MAEGAWA, Akira NONAKA, Tomotake UMETSU and Kenji YOSHIMATU

Abstract

When concrete is exposed to neutron beam, radionuclide is generated internally and make radiation. We developed concrete of low radionuclide formation intended for radiation shielding concrete and report on the results of applying neutron irradiation experiment. Concrete of low radiation uses limestone macadam and crushed sand for aggregate and a part of cement is substituted by limestone fine powder. After three days from neutron radiation, highest radiation is observed from²⁴Na in standard concrete, where radiation ray induced from low-activation concrete is only 1/7 of standard concrete.

Keywords: low-activation, radio isotope, lime stone aggregate, minuts powder, neutron irradiation