

デコミッショニング技報

Journal of the RANDEC

巻頭言：原子力研究・教育の夢と廃止措置
技術報告：超音波（SDS法）を使った構造物探査とコンクリート強度推定
研究報告：試験研究炉等廃止措置における除染技術実証試験
技術概説：原子炉の廃止措置に用いる系統除染及び解体後の機器除染技術

財団法人 原子力研究バックエンド推進センター

Radioactive Waste Management and Nuclear Facility
Decommissioning Technology Center

No. 40 2009

RANDEC

RANDECは、原子力施設のデコミッショニング(廃止措置)技術の確立をめざした活動及びRI・研究所等廃棄物の処分地の立地等処理処分事業に関する調査等を行っています。

事業の内容

デコミッショニングに関する試験研究・調査を行います。



デコミッショニングに関する技術・情報を提供します。



デコミッショニングに関する人材を養成します。



RI・研究所等廃棄物の処分地の立地等処理処分事業に関する調査等を行います。



デコミッショニング及びRI・研究所等廃棄物の処分地の立地等処理処分事業に関する普及啓発活動を行います。

デコミッショニング技報

第40号 (2009年10月)

目次

巻頭言

原子力研究・教育の夢と廃止措置	1
	竹田敏一

技術報告

超音波 (SDS法) を使った構造物探査とコンクリート強度推定	2
	原 徹

研究報告

試験研究炉等廃止措置における除染技術実証試験	11
	村上 督、川太徳夫、東浦則和

技術概説

原子炉の廃止措置に用いる系統除染及び解体後の機器除染技術	23
	宮坂靖彦

Journal of the RANDEC

No.40 Oct. 2009

CONTENTS

Technical Report

- A Structural Analysis and Concrete Strength Presumption using Synthesized Digital Soundwave
(SDS Method) 2
Toru HARA

Research Report

- Decontamination Technology Examination for Decommissioning of Research Reactor 11
Tadashi MURAKAMI, Kawata NORIO, Norikazu HIGASHIURA

Exposition

- Full System and Segmented Parts Decontamination Techniques Used in
Decommissioning of Reactor 23
Yasuhiko MIYASAKA

A Structural Analysis and Concrete Strength Presumption using Synthesized Digital Soundwave (SDS Method)

Toru HARA

J.RANDEC, No40 (Oct.2009) page2~10, 13 Figures, 3 Tables

In the dismantling process of the nuclear installation, it is important to manage and maintain the functions of buildings and structures as preventing from dust diffusion and radiation shielding to the outside facilities in the same way as in-service period. Preliminary information about location of embedded pipes inside concrete structures makes easy decision of operating plan to dismantle the building and structures.

There are various techniques to inquire the inside of concrete structure. Our company successfully uses the Synthesized Digital Soundwave (SDS method) to measure the underground crack depth, tube location and presumption of the strength of concrete structures. This paper provides an overview of practical examples of the above-mentioned field using our SDS method.

Decontamination Technology Examination for Decommissioning of Research Reactor

Tadashi MURAKAMI, Kawata NORIO,
Norikazu HIGASHIURA

J.RANDEC, No40 (Oct.2009) page11~22, 14 Figures, 5 Tables

The decontamination test was carried out using contaminated test specimens taken out from an actual plant with a goal of "reducing radioactivity concentration of dismantled parts in less than clearance level (C/L)" in the decommissioning process of research reactors. For this purpose the decontamination test about mechanical method using wet blast and chemical method by organic acid were conducted on the test specimens which were gathered from the main steam, feed and condensate water and clean up water systems of "Fugen" Decommissioning Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency.

According to the test results, the decontamination on the specimens of the Main steam and Feed and condensate water system which were relatively lower radioactivity concentration were completed by both decontamination methods respectively and the radioactivity concentration after decontamination test decreased less than C/L. But the test results showed that in the case of the clean up water system, relatively higher radioactivity, the radioactivity concentration after decontamination was higher than C/L, an achievement satisfying C/L was difficult with the above both decontamination methods.

Full System and Segmented Parts Decontamination Techniques Used in Decommissioning of Reactor

Yasuhiko MIYASAKA

J.RANDEC, No40 (Oct.2009) page23~35, 10 Figures, 6 Table

Decontamination is to reduce radiation exposure for workers during restoring components/systems and decommissioning. Decontamination techniques can be classified into several different ways depending decontamination process, e.g. chemical, mechanical, electrochemical, etc.

The techniques used in decontamination for decommissioning purposes have two main differences in comparison with common in-service decontamination techniques.

- The techniques can be allowed to effect the integrity of the base materials. This is because, in principle, the component or system will not be served.
- The techniques should generate the minimum quantity of secondary wastes.

This report describes an overview of the large component/full system and the segmented parts decontamination techniques used for decommissioning in the nuclear power plant.

Recent experiences of the dilute cyclic oxidation reduction decontamination processes e.g. CORD and DFD methods are extensive and the processes are commercial base. Blasting is a very effective

decontamination method that is widely used to segmented parts. Typical abrasive media are alumina,

steel, zirconia, dry-ice pellet, etc..

原子力研究・教育の夢と廃止措置



福井大学附属国際原子力工学研究所
所長 竹田 敏一

エネルギー保障と安定供給に対する世界の関心が強く、環境問題と調和する基幹エネルギー源としてポテンシャルの高い原子力エネルギーへの期待が大きい。欧米などの原子力エネルギー利用諸国では、原子力復興の気運が高まっている。

世界では、第4世代（GEN-IV）原子力システムの研究開発のために、国際フォーラム（GIF）を展開させている。GIFへの参加国は、米国・ロシア・フランス・英国・日本・韓国その他12カ国であり、あとEUが参加している。

GEN-IV原子力システムでは、持続可能性、経済性、安全性、信頼性、核拡散抵抗性が必要事項として要求されている。特に、持続可能性に関しては長期に亘るエネルギー源、燃料有効利用の他、放射性廃棄物を最小にし、さらにはその管理が確実に実施されることが明記されている。

日本では、平成18年に資源エネルギー庁の総合資源エネルギー調査会電気事業分科会原子力部会が新・国家エネルギー戦略を発表し、このエネルギー需要の中で、日本においても高速実証炉を2025年までに建設し、商用化を2050年頃に行う原子力立国計画を打ち出した。

また、大学および高等専門学校における原子力分野の人材育成の充実を支援するため、文部科学省と経済産業省は、「原子力人材育成プログラム」を平成19年度から開始した。大学における原子力教育において原子力の将来を担う優秀な学生を育てるためには、原子力基礎教育に加え、夢のある教育・研究を大学として実施し、学生に原子力の魅力を感じさせる必要がある。

原子力の魅力については、原子力立国計画にも謳われているように、一つとしては高速増殖炉の実用化がある。将来は、放射性廃棄物の量を減らすため、長半減期の核分裂生成物、さらにはマイナーアクチニド核種（Np-237、Am-241、243、Cm-242、244等）を核変換させ、消滅させることが望まれる。高速炉スペクトル炉ではこれらの核変換が可能であり、どのようにそれを実用化するかは非常に興味があることである。

日本では、高速炉（ナトリウム冷却高速炉）の実用化にあたって、大出力2ループシステム、配管短縮化、炉容器縮小等を、革新技術の採用により検討している。さらに、マイナーアクチニド燃焼、高燃焼度、コンパクトな高性能炉心等の研究開発、その基盤となる基礎研究の充実が求められる。特に、「もんじゅ」は近く臨界が予定されている。性能試験も約2年余り続くので、実用化に向けての試験に期待したい。性能試験は、「もんじゅ」所期目的である発電プラントとしての運転信頼性実証、運転経験を通じたナトリウム取扱い技術確立のほか、研究開発の場としての活用、利用、国際研究開発拠点化の観点からも重要な役割を持っている。

このような原子力研究・教育の夢を実現するためには核燃料サイクルの確立が不可欠となるが、原子力システムの一貫した管理という意味で、原子力システムの廃止措置の技術確立も非常に重要となる。廃止措置の安全性は言うに及ばず、廃止措置技術に関して「ふげん」廃止措置プロジェクト等を活用し、技術継承をしていく必要がある。さらには、クリアランスレベルを確立して放射性廃棄物の物量を減少していく工夫、レーザー技術による廃炉技術の進歩、除染技術の改良等を含め、廃止措置技術がさらに発展されることを切に希望する。廃止措置が、資金面、技術面でスムーズに運ばれなければ、原子力システムとして完結しないことを忘れてはならない。

超音波(SDS法)を使った構造物探査とコンクリート強度推定

原 徹*

A Structural Analysis and Concrete Strength Presumption using Synthesized Digital Soundwave (SDS Method)

Toru HARA*

原子力施設の廃止措置においては、供用期間中と同様に、建屋・構築物等が有する施設外への放射能の汚染拡大防止機能と放射線遮へい機能を維持管理していくことが重要とされる。また廃止措置の具体的な作業過程における建屋・構築物等の解体撤去では、コンクリート中の埋設管の位置、建屋コンクリートの強度等の事前把握が工事計画の策定に有効となり得る。

コンクリート構造物の内部を探査する手法には幾つかあるが、当社では超音波(SDS法)を使用して、クラック深さの測定、埋設管探査、強度の推定等について成果を上げている。ここでは、上記の各分野におけるSDS法を用いた探査の実例について紹介する。

*SDS : Synthesized Digital Soundwave

In the dismantling process of the nuclear installation, it is important to manage and maintain buildings and structures which prevent the radioactive materials dispersion and keep the sealing capability in the same way as in-service period.

Preliminary information about location of embedded pipes inside concrete structures makes easy decision of operating plan to dismantle the building and structures.

There are various techniques to inquire the inside of concrete structure. Our company successfully uses the Synthesized Digital Soundwave (SDS method) to measure the underground crack depth, tube location and presumption of the strength of concrete structures.

This paper provides an overview of practical examples of the above-mentioned field using our SDS method.

1. SDS探査の概要

1.1 SDS法の原理

(1) 広帯域の周波数分布を持つ超音波を使用

コンクリートに超音波探査を適用する場合、コ

ンクリートの厚さや劣化度によって透過する超音波の周波数が異なり、厚さが増すほど、また劣化が進むほど、コンクリート中を通り抜ける超音波の周波数は低くなる(0.1~0.5MHz)という事実がある。周波数が固定されている通常の超音波探

* : フェニックスエンジニアリング株式会社 (Phoenix engineering Inc.)

査（2～5 MHz）では、発振時点ですでに周波数が高すぎて、ほとんどの入射波が吸収されてしまう。仮に反射波を受信できても微弱であり、受信周波数が0.1～0.5MHzと発信周波数の2～5 MHzより低すぎるために、増幅アンプが対応できず効率よく増幅できない。そのためSDS法（Fig.1が装置の写真である）では0.05～1 MHzという広帯域に周波数分布を持つ超音波を使用し、受信アンプも低域まで十分な増幅度を持たせることで、どのようなコンクリートにも対応している。

原理的には弾性波に近いものであるが、ハンマー等の機械的入力で発生する弾性波が球面波であるのに対して、これは指向性を持った超音波ビームとなるので、反射源を特定することができ、コンクリート構造物での探査が可能になる。

(2) 反射波をデジタル変換して加算

発振する超音波は出力エネルギーが小さいため、100～1,000回程度発振し、デジタル変換した後に加算する事で十分な受信信号出力を得ている。

1.2 探査の項目

- ・版厚（健全コンクリートで最大10m）・クラック深さ（同最大10m）
- ・道路下の構造探査・コンクリート背面空洞、内部不良・埋設管探査（位置、深さ）
- ・内部強度推定（音速からの強度推定が可能）

1.3 音速測定

探査時は、コンクリートによって全て音速が異なるため、対象コンクリートの音速を測定することから始まる。この場合、あらかじめ厚さのわ

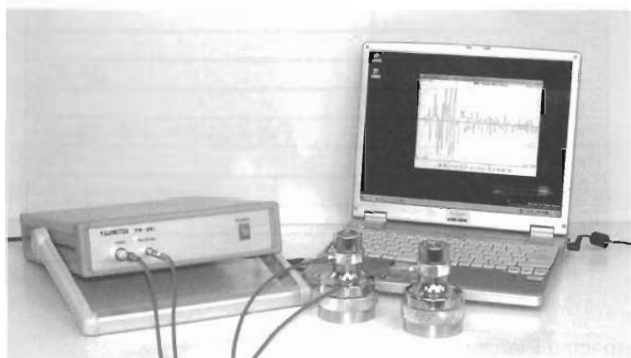


Fig.1 The SDS System

かっている部位を発振と受信の探触子で挟み込む2探触子透過法での測定で、最初に受信した波形の到達時間と構造物の厚さから音速を決定する。

2. 各種探査の実施例

2.1 クラック深さ測定

(1) 日本大学工学部旧5号館解体時の実験

解体が決定した日本大学工学部旧5号館が各種の非破壊探査実験に提供され、クラック深さ測定を実施した。Fig.2に示すようにクラックの入った壁面を選定し、超音波で測定した後、測定箇所でのコア抜きを実施し、測定値と実測値を比較した。Fig.3とFig.4に結果の一例を示す。Fig.3では測定波形から貫通であり、コア抜きの結果も貫通である。Fig.4では、測定波形から得られたクラック深さは162mmを示し、コア抜きの目視では約165mmとなっている。コア採取時の振動でクラックが進展することを勘案すると、よい結果であると言える。クラック深さ測定の場合は、対象のクラックを発振と受信の探触子で挟んで測定する。コンクリートに入射した超音波は空気中には伝搬せず、クラック先端部から回折波が帰るため、最初の受信エコーまでの時間からクラック深さを計算する。

(2) ケーソンのクラック測定結果の立体表示

Fig.5はあるケーソンでのクラック測定結果を3D画像で表示したものである。図のクラックは

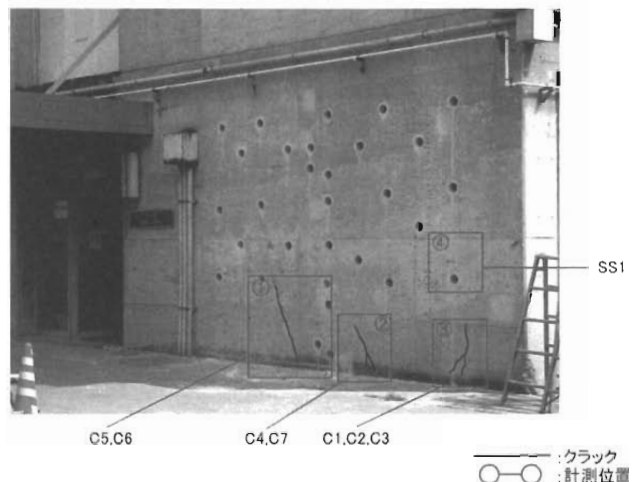
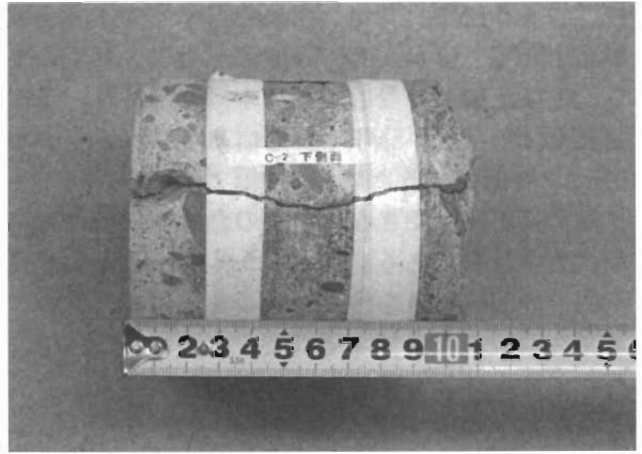
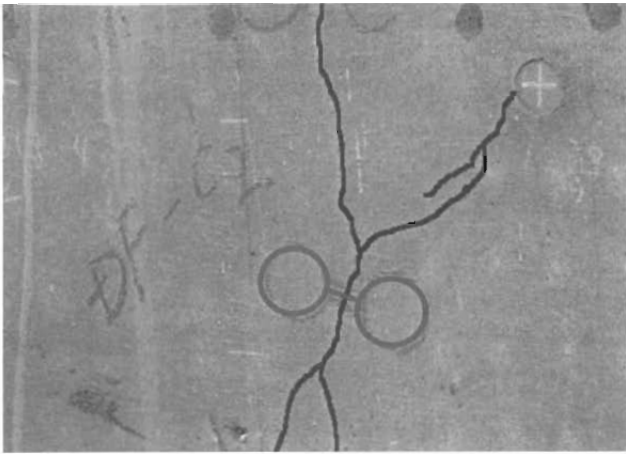
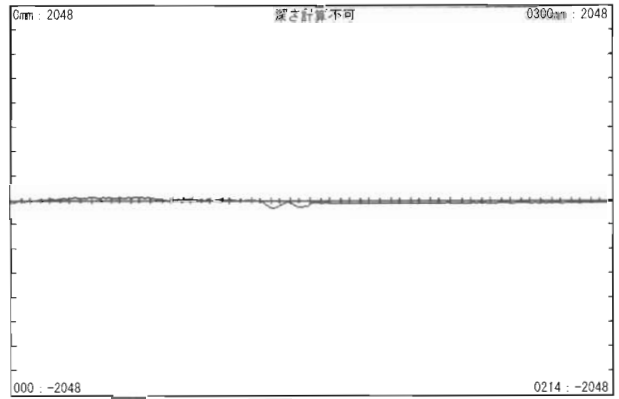
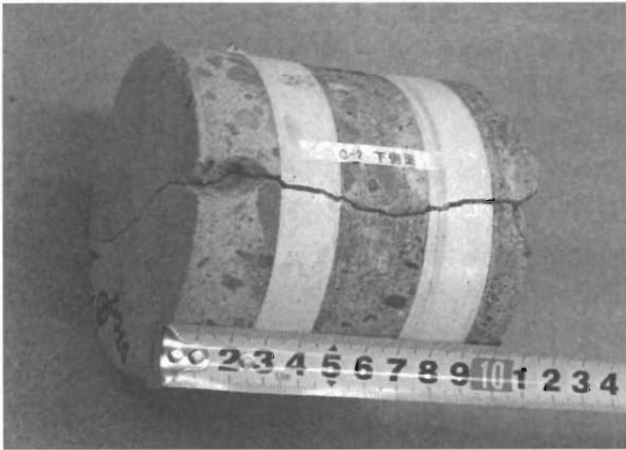


Fig.2 Object Wall



測点名 : DF-C2
 <二探反射 (走査 : 固定) 割れ深さ測定>
 表示路程300mm 生波形 : ——

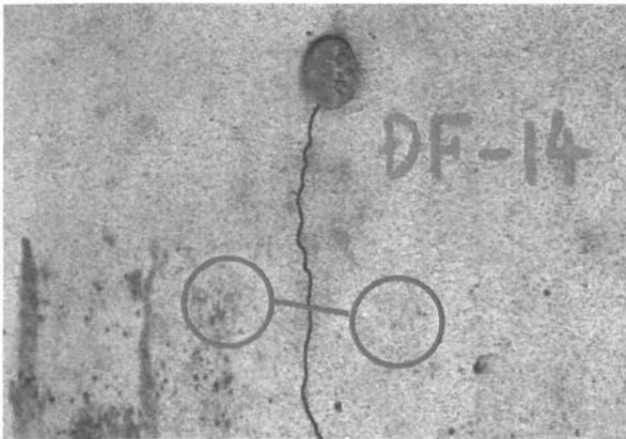


クラック幅 : 0.4mm
 クラック深さ : 貫通
 探触子間距離 : 100mm (等距離)
 目視 : 貫通

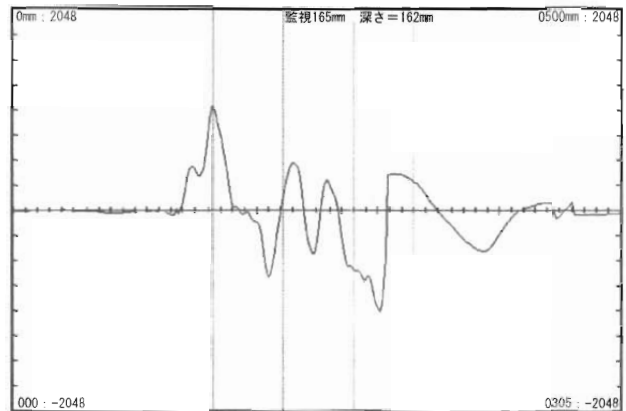


日付:	2004/9/23 16:50
取り込み数:	107
加算数:	200
ADCK(Hz):	1250000
Gain(dB):	30
PRF(Hz)	35
Comment:	DF-C2
SqrGate:	0
Probe Type	FW-0540P->FW-0540R
Probe distance (mm)	100
送信電圧(V):	150
取り込み感度補正:	-6.2dB
音速:	3497m/s

Fig.3 Judged Piercing, Inspected Piercing



測点名 : DF-14
 <二探反射 (走査 : 固定) 割れ深さ深さ測定>
 表示路程400mm 生波形 : —



クラック幅 : 0.3mm
 測定値 : 162mm

探触子間距離 : 100mm (等距離)

162mm近辺のクラックの切れ目をとらえている。

日付	2004/9/24 12:57
取り込み数	188
加算数	200
ADクロック(Hz)	1250000
感度 : Gain(dB)	23
繰返周波数 : PRF(Hz)	35
コメント	DF-14
ゲート設定	0
使用探触子	FW-0540P->FW-0540R
探触子間距離 (mm)	80
送信電圧(V)	150
取り込み感度補正	-6.2dB
音速	3995m/s

Fig.4 Judged 162mm Crack, Inspected165mm Crack

隔壁のひとつのスラブにあったもので、貫通している。クラックは多数あるが、その内の隔壁部分だけを表示している。

2.2 埋設管探査

厚さ1.5mのコンクリート供試体に設置した埋設管 (Fig.6) を探査した実験の結果がFig.7である。2探触子法を使用した。2つの探触子を底辺とし、円形断面の埋設管が頂点となる二等辺三角

形が形成された場合に反射波のピークが最大になることを利用し、埋設管の位置と深さを特定している。この実験で得られた技術を基に、柏崎刈羽原子力発電所では貫通の削孔をするため、鉄筋や埋設管に干渉しない削孔位置を特定する業務を受注している。

2.3 音速(コンクリート)からの強度算出(推定)

ある新設道路トンネルで調査を依頼された。調

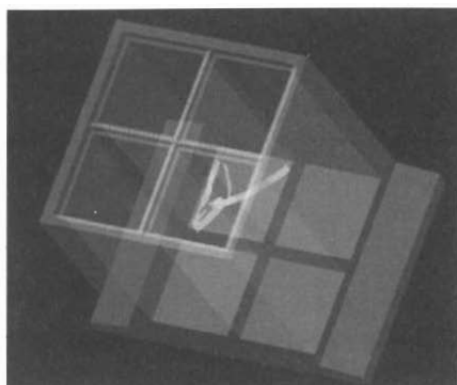


Fig.5 Cracks in 3D Picture

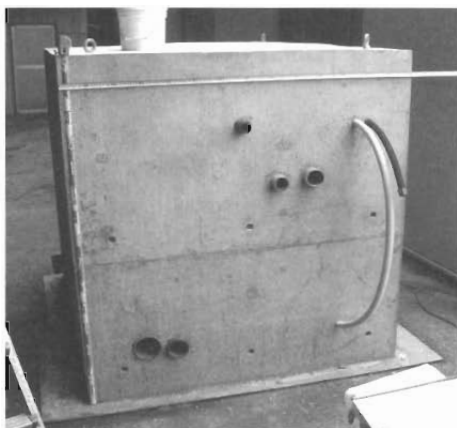
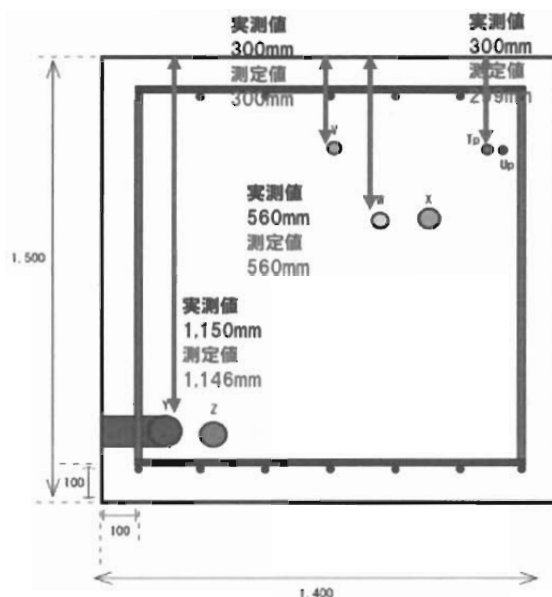


Fig.6 Test Piece



- ※埋設管種別
 Tp: 照明用電線管 (合成樹脂可とう管28φ)
 Up: TV共聴配管 (合成樹脂可とう管26φ)
 V: 給湯管 (給湯用銅管48φ)
 W: 給水管 (塩ビライニング管60φ)
 X: 屋内消火栓用配管 (配管用炭素鋼管76φ)
 Y: 汚水管 (塩ビライニング鋼管115φ)
 Z: 排水管 (塩ビライニング鋼管90φ)

Fig.7 Result of Measurement

査項目は音速からの強度算出と内部不良の有無である。調査箇所によってコンクリート打設後の日数が異なるため、これまで蓄積したデータから4週強度に換算した。(Table 1)(これまでに供試体で打設直後から4週までの音速を測定したデータに基づいて作成している。)

4週強度に換算した音速を基に、音速から強度を推定する式 (Table.2) を作成して使用した。この換算式の係数も、過去の実構造物採取コアによる実測データに基づいている。

上記の計算結果の総括表がTable 3である。

※総括表の単位…版厚①②: mm、到達時間: μS、音速: m/sec.、強度: N/mm²。

2.4 コンクリート強度の推定

新型転換炉原型炉施設「ふげん」の解体に当たっては、建屋・構築物等のコンクリート強度が重要となるため、SDS法によるコンクリート強度推定技

Table 1 Revision Coefficient (1w. to 4w.sound speed)

28日音速/7日音速=4518/4389=1.034
1週補正: 1.034
1.5週補正: 1.028
2.1週補正: 1.022
2.5週補正: 1.017
3.1週補正: 1.010
3.4週補正: 1.007

Table 2 Conversion Equation (sound speed/strength, concrete)

<p>■推定換算式</p> <p>$Y = 13,223 X - a$ $Y =$ 現場採取テストピース強度28N $X =$ 現場健全部音速4,110と3,970の平均値 $Y = 28, X = (4110 + 3970) / 2 / 1000 = 4.04$ $a = 24.1$ 従って $Y = 13,223 X - 24.1$ $Y =$ 圧縮強度 (N/mm²) $X =$ 音速 (km/sec)</p>

Table 3 Result of Measurement

基本音速										
測点名称	版厚①	版厚②	到達時間	音速		打設日	材齢	評価対象音速	評 価	
	424.3		103.3	4107			6.0週	4110		
	424.3		106.9	3969			5.1週	3970		
各測点								測定音速	4週換算音速	4週換算推定強度
測点名称	版厚①	版厚②	到達時間	音速①	音速②					
	300	345	86.8	3456	3975		6.0週	3980	28.5	
	300	370	96.3	3115	3842		2.1週	3927	3930	27.9
	300	370	89.5	3352	4134			4225	4230	31.8
	300	370	114.1	2629	3243			3314	3310	19.7
	305	355	100.3	3041	3539		1.5週	3638	3640	24.0
	305	355	97.4	3131	3645			3747	3750	25.5
	305	355	99.9	3053	3554			3653	3650	24.2

術の適用性を確認するための試験測定を実施した。

(1) 手法と測定結果

2.3の道路トンネルの手法を発展させた手法である。すでに各種の深さ（表層部を除く）でのコア抜きによる強度分布の実測データがあるため、対象壁の表面からの深さ別の強度分布と、その強度を持つコンクリートの厚さを確定し、強度を音速に変換後、表層部以外の超音波透過時間を算出する。全体の透過時間と、表層部以外の透過時間の合計との差が表層部分の透過時間に相当する。表層部の厚みと透過時間から音速を割り出し、音速から強度に変換すれば不明な表層部の強度が推定できる。Fig.8に考え方を示す。

(2) 具体的手法 (Fig.8 参照)

①音速測定

対象となる壁面で透過時間Tと全体音速Vを測

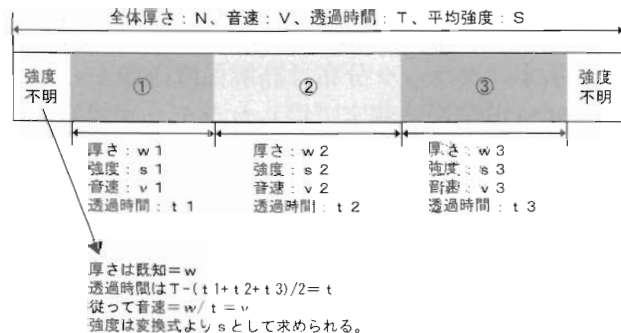


Fig.8 Distribution Map of Penetrating Time (super sonic)

定する。測定値は3点の平均とする。

②平均強度算出

すでに壁厚毎に強度が測定されているため、ここから平均強度を算出する。

③音速・強度換算式作成

②の平均強度と測定した音速から、音速と強度の相関式 (Fig.9) を求める。

④断面強度分布

深さ別のコア強度のデータから断面方向の既知の強度分布を作成する。これには内部強度の分布式 (Fig.10) を併用して、コアが採取されていない部分の深さ強度を算出している。

⑤強度別 (深さ別) 透過時間算出

音速と強度の相関式 (Fig.9) から強度を音速に変換し、深さ別に透過時間を求める。

(Fig.8のs1, s2, s3からv1, v2, v3を求め、さらにt1, t2, t3を求める。)

⑥表層部透過時間算出

壁厚全体の透過時間から④の透過時間合計を減算し表層部分の透過時間を算出する。

⑦表層部音速算出

表層部分の透過時間とその長さ (厚さ) から、表層部の音速が得られる。この場合、透過時間は表層部裏側と表側に相当している。

⑧表層部強度算出

表層部音速を相関式にあてはめ、強度を算出する。

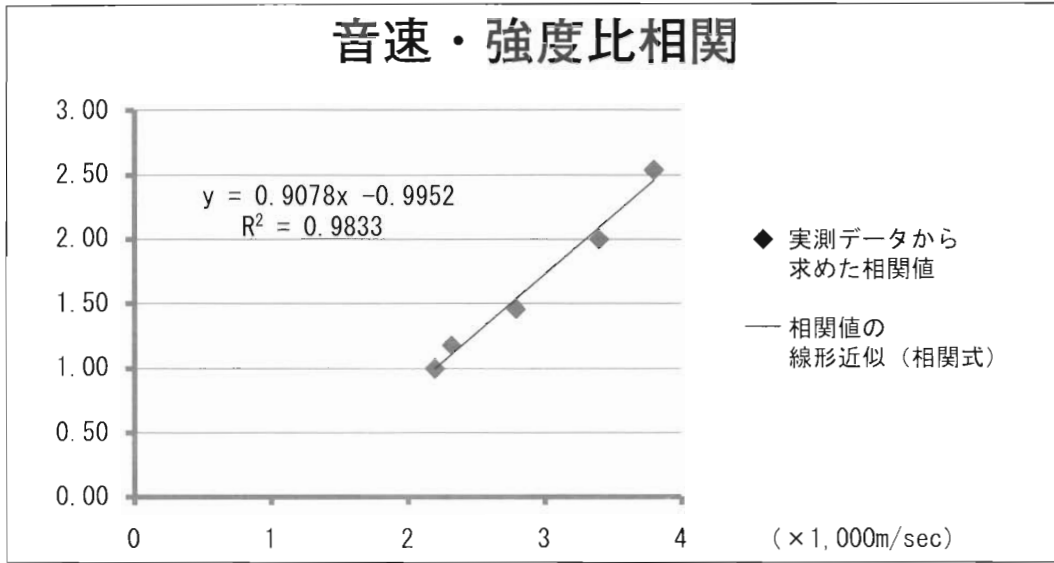


Fig.9 Conversion Equation (sound speed/strength, concrete wall)

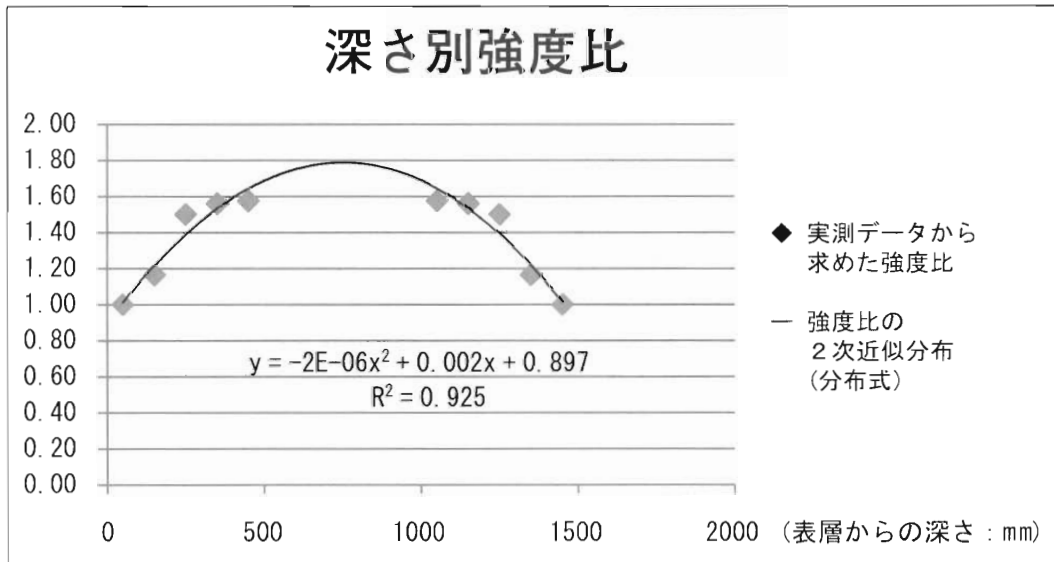


Fig.10 Conversion Equation (sound speed/strength, surface of wall)

⑨ 壁厚音速と表層部強度関連式作成

上記結果から、壁厚平均音速と表層部強度の相関式 (Fig.11) を求めたものを示す。

この式から得られた表層部強度の数値は、少数ではあるが表層部から採取したコアの強度と近似のものであった。

2.5 コンクリート背面空洞

Fig.12は某発電所導水路トンネル上部覆工厚とその背面状態の立体一括表示画像である。グレー

の表示が背面礫層、赤い線がクラック、トンネル断面と背面礫層の間の透明部が上部コンクリート厚を示す。クラック分布は高解像度画像から、その他はSDS超音波測定で得られたデータである。

2.6 道路下構造調査

ある自治体での道路下の調査結果 (Fig.13) を示す。現場は片側2車線の道路で、私鉄高架をくぐるアンダーパスとなっており、冠水のひどい地点であった。アスファルトとコンクリート合わせ

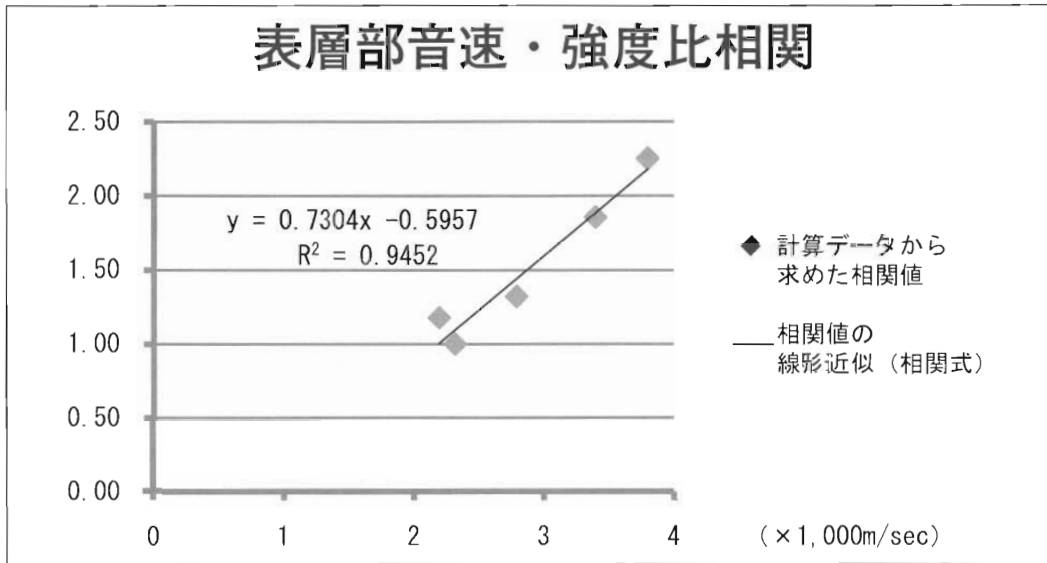


Fig.11 Sound Speed/Strength Conversion Equation (surface of wall)

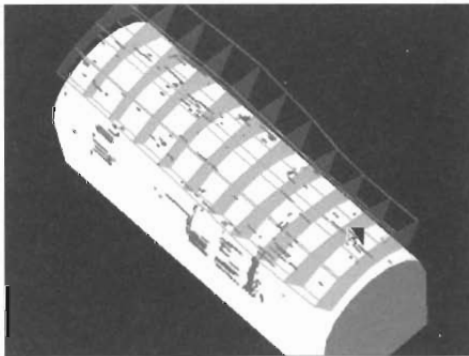


Fig.12 Result of Total Measurement in 3D Pictures

て厚さ1 mの設計であったが、過去の工事でも冠水が止まらなかったため、調査を依頼された。図は調査結果の平面図で、1区画に1点の測定でその区画の結果としている。太い点線で囲まれた区

画が1 m以下の厚さしか認められなかった区画である。この調査結果は試掘や過去の工事写真で正しいことが確認された。この調査結果に基づく工事で湧水は止められた。アスファルト越しに地下を探索した初めての例である。

4. まとめ

超音波によるコンクリートの探査は経験値に大きく左右されるが、クラック深さについては明確な波形が得られるため、問題は少ない。また音速を基準にコンクリートの強度を推定することについては、基準となる強度と音速のデータを整備することで、かなりの正確さを持つことができると考える。埋設管探査は波形の判断が難しいため、

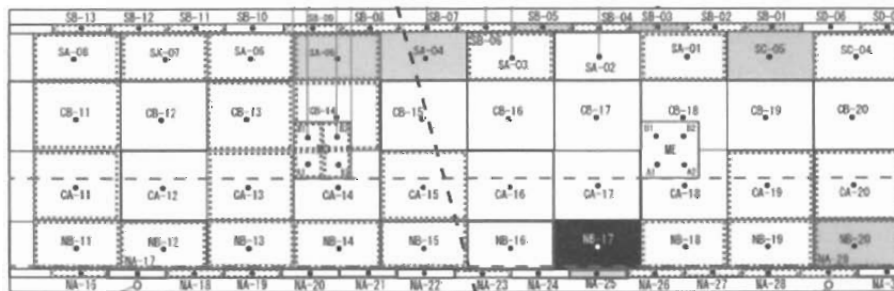


Fig.13 Result of Measurement (under the road)

断面でのデータが1回の探査で得られる装置を考案中である。いずれにしても、超音波でのコンクリート探査には電磁波レーダーやX線にはない利点が数多いため、今後も研究と実績を重ね、より確実な探査方法の確立に努力したい。

5. 謝辞

今回の投稿に当たっては、多くの方のご協力をいただいたが、とりわけ独立行政法人日本原子力研究開発機構 (JAEA) 敦賀本部 原子炉廃止措置研究開発センター (ふげん) にフィールドを提供いただいたことに感謝の意を表す。

試験研究炉等廃止措置における除染技術実証試験

村上 督* 川太徳夫* 東浦則和**

Decontamination Technology Test for Decommissioning of Research Reactor

Tadashi MURAKAMI* Kawata NORIO* Norikazu HIGASHIURA**

試験研究炉等の廃止措置において「解体物の放射能濃度をクリアランスレベル (C/L) 以下に低減すること」を目標として、実機の機器類を使用した除染試験を実施した。具体的には独立行政法人日本原子力研究開発機構原子炉廃止措置研究開発センター (以下、「ふげん」という。) の主蒸気系、給復水系、炉浄化系等から採取した試験片を対象に、ウェットブラストによる物理除染法と有機酸による化学除染法について除染試験を実施した。

試験の結果、放射能レベルの比較的低い炭素鋼の主蒸気系、給復水系はいずれの除染方法を用いても C/L 以下まで除染できた。しかし、放射能レベルの比較的高いステンレス鋼の炉浄化系は物理除染法及び化学除染法のいずれの場合も C/L 以下まで除染するのは比較的困難であることが判明した。

The decontamination test was carried out using contaminated test specimens taken out from an actual plant with a goal of “reducing radioactivity concentration of dismantled parts in less than clearance level (C/L)” in the decommissioning process of research reactors. For this purpose the decontamination test about mechanical method using wet blast and chemical method by organic acid were conducted on the test specimens which were gathered from the main steam, feed and condensate water and clean up water systems of “Fugen” Decommissioning Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency.

According to the test results, the decontamination on the specimens of the Main steam and Feed and condensate water system which were relatively lower radioactivity concentration were completed by both decontamination methods respectively and the radioactivity concentration after decontamination test decreased less than C/L. But the test results showed that in the case of the clean up water system, relatively higher radioactivity, the radioactivity concentration after decontamination was higher than C/L, an achievement satisfying C/L was difficult with the above both decontamination methods.

* : (財) 原子力安全技術センター (NUCLEAR SAFETY TECHNOLOGY CENTER)

** : 株式会社TAS (TAS Co., Ltd)

本報告は、特別会計に関する法律 (エネルギー対策特別会計) に基づく文部科学省からの受託事業として、財団法人原子力安全技術センターが実施した平成20年度「試験研究炉等廃止措置安全性実証等 (研究開発段階炉の調査)」の成果です。

1. 除染技術の調査

1.1 調査の進め方

「除染技術の調査」の調査の進め方を Fig.1.1 に示す。

試験研究炉等の廃止措置で適用可能と考えられる設備の解体物の放射エネルギー低減を目的とした物理除染および化学除染等の除染技術を文献で調査した。その結果、廃止措置時の解体物をクリアランスレベル以下にすることが可能で、かつ、解体物の形状(単純形状、複雑形状)に応じて柔軟に対応できる除染技術として、物理除染としてウエットプラスト法、化学除染として有機酸除染法を選定し、実機の放射能汚染された解体物への適用性について検討した。

1.2 文献調査

i) 文献調査¹⁾でこれまでに公開された除染技術

を調査した結果を Table 1.1, 1.2 に示す。

- ii) 物理除染については、プラスト除染が除染性能(除染係数)が比較的高く、設備規模(構成)も簡素であることから、解体廃棄物をクリアランスレベル以下にするための除染法として適用性があるものと判断した。
- iii) 化学除染方法については、これまでに開発・実機適用された技術として過マンガン酸カリウムやシュウ酸を使用するCORD法やHOP法がある。これらの技術は主に供用中除染に適用することを想定されており、解体後除染に適用するには条件等の再確認が必要である。また、過マンガン酸塩を使用する等廃液の取扱い性や2次廃棄物処理処分の点での課題がある。また、高い除染性能が得られる硫酸や硝酸を使用する方法もあるが、これらの廃液は2次廃棄物の処理処分の点でやはり課題がある。ここでは可能な限り簡素な除染方

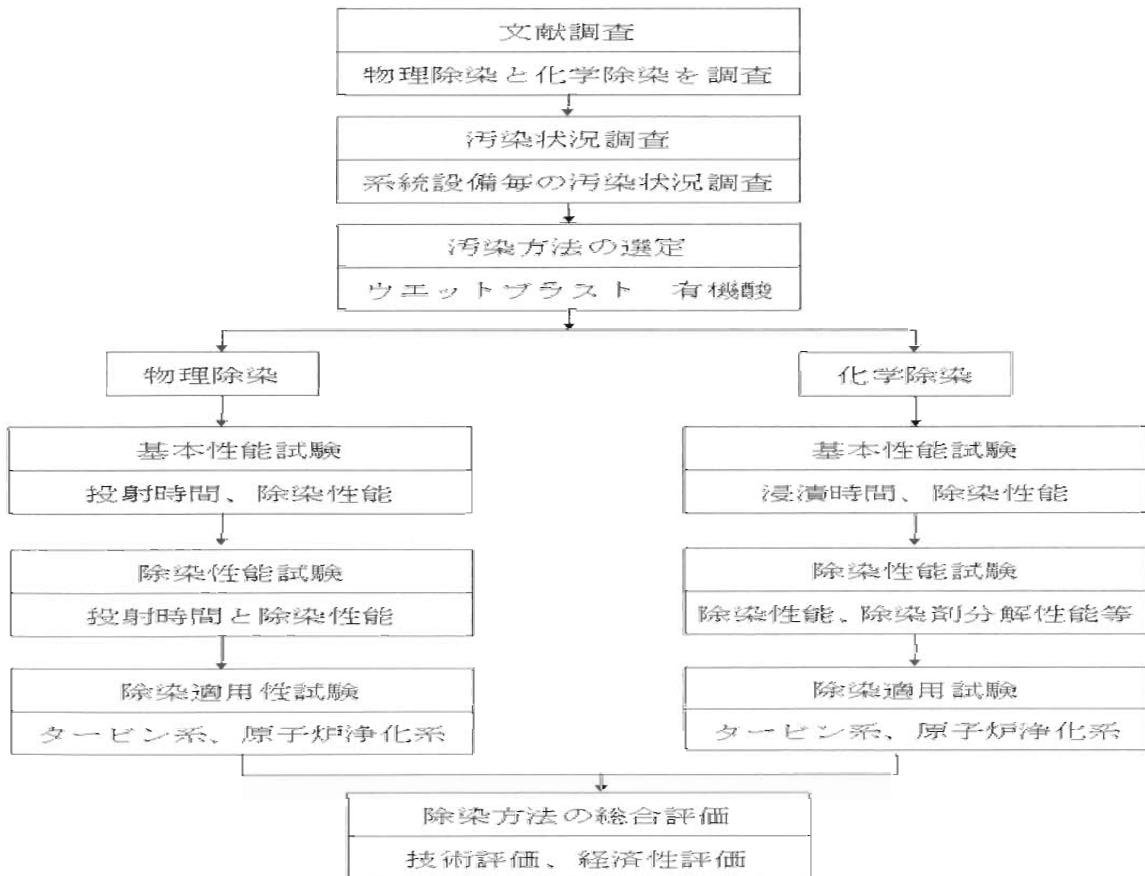


Fig.1.1 Study Process for Decontamination Technology Research

Table 1.1 Comparison of Mechanical Decontamination Technologies

	気中高压水除染法	水中高压水除染法 (キャビテーションジェット除染)	水中自走式ブラッシング吸引除染法	プラスト除染法
概念図				
適用	・解体後の一定形状の廃棄物除染に適する。 ・汚染レベルの低い廃棄物除染に適する。	・解体後の一定形状及び若干複雑な構造物の除染に適する。 ・ある程度の固着力を有した廃棄物除染に適する。	・タンク等の底部に堆積した放射性クラッド除去に適する。 ・ブラッシングにより付着物を剥離除去する。	・酸化皮膜等固着力が強く、かつ高線量当量率の放射性クラッド除去に適する。
適用実績	・熱交換器管板上堆積スケール除去 ・化学除染後のルーズ汚染除去 ・その他付着汚染除去に適用多数あり	・キャナル除染 (平面) ・燃料取扱装置がリッジ除染 ・SGスラッグラッシング (スラッグ除去)	・タンク及びピット底面除染	・一次系配管及び機器内面除染
除染係数 (DF)	2~10 (付着力の低い低レベル廃棄物が対象)	2~10 (固着クラッドの除去に有効)	2~10 (堆積したクラッド除去に非常に有効)	10以上
設備規模	・高压ポンプ、除染タンク及びフィルタにより構成され、比較的小さい。	・専用ノズル以外の主要設備は気中高压水除染と共通設備が多い。	・走行台車、操作部、吸引ポンプ及びフィルタより構成される。	・プラストノズル装置及びアオスト材循環設備により構成される。

Table 1.2 Comparison of Chemical Decontamination Technologies

除染法	AP-AC法	NP-改AC法	NP改AC希薄法	CORD法	HOP法	SOOP法	硝酸セリウム法	硫酸セリウム法	
特徴	・濃厚液法 (S.54~H.5 使用) ・AP液とAC液の混合防止装置が必要 ・2次廃棄物発生量が多い	・酸孔工程の酸性を水工程と同じ酸性としたことにより、液混合による除染性能の低下を抑制	・除染濃度を希薄化	・容易に分解可能な過マンガン酸及び過硫酸を使用。 ・紫外線分解等が可能 ・2次廃棄物発生量が少ない。	・触媒分解により2次廃棄物発生量が少ない。	・0.1%にてCeリッチな酸化物の溶解が可能 ・常温で施工可能 ・除染液 (0.1%はわ) により再生可能	・0.1%にてCeリッチな酸化物の溶解が可能 ・除染液 (0.1%はわ) は電解再生可能	・1%にてCeリッチな酸化物の溶解が可能 ・除染液 (0.1%はわ) は電解再生可能	
除染条件	除染剤	KMnO ₄ KOH クエン酸 シュウ酸 他	KMnO ₄ HNO ₃ クエン酸 シュウ酸 他	KMnO ₄ HNO ₃ クエン酸 シュウ酸 他	H ₂ O ₂ シュウ酸	KMnO ₄ シュウ酸 ヒドロジン	HNO ₃ 硝酸セリウムオゾン	HNO ₃ 硝酸セリウム	H ₂ SO ₄ 硫酸セリウム
	除染剤濃度	10%程度	数%程度	1%以下	1%以下	数%程度	1%程度	1%程度	
	温度 (°C)	60~80	60~80	60~80	60~80	25~95	室温	50~80	50~80
除染性能DF (試験方法等)	30~40 (実績/循環)	30~40 (実績/循環)	30~50 (実績/循環)	30~50 (実績/循環)	5~30 (実績/循環)	30~ (確認試験/循環)	300~ (確認試験/浸漬)	300~ (確認試験/浸漬)	
廃棄実績	国内にて実績あり	国内にて実績あり	国内にて除染実績多数	国内にて除染実績多数	国内にて実績あり (ふげん等)	海外にて実績あり (NPPESにて確認試験実施)	NPPESにて確認試験実施	NPPESにて確認試験実施	

法を模索することとして、有機酸による除染試験の適用性を検討することとした。

1.3 汚染状況調査

i) 「ふげん」系統設備及び汚染状況の整理

除染方法の適用を検討する場合は処理対象物の汚染状況を把握する必要がある。「ふげん」の系統構成、環境 (流体、運転中の温度、圧力、材料等) 及び各系統の表面線量率及び表面汚染密度等に関する調査結果の例を Table 1.3 に示す⁶⁾。

ii) 汚染の性状

冷却材再循環系統の汚染濃度が比較的低い理由として、供用期間中の被ばく低減のために実施し

た系統化学除染²⁾ 効果であることが考えられる。その際のクラッド (腐食生成物) の性状調査で、クラッドは、クロムを含有するヘマタイト、マグネタイトが主成分となっており、これは水素注入により溶解酸素濃度が低下したことによりクロムが溶解しにくい3価クロム含有量が増加したものと考えられる。一般にBWRのクラッド中のクロムの含有率としては1~10%とされているが、仮にクロム含有率が15%以上になると、還元除染剤の場合クロム基体に妨害されて除染効果が少なくなるとの報告³⁾ があり、留意が必要である。

Table 1.3 Radiation Contamination Density of Fugen Facilities ⁶⁾

系統番号	測定系統	測定場所	測定機器	測定時期	Co-60 表面汚染密度 (Bq/cm ²)	Co-60 濃度 (Bq/t)	
原子炉冷却系							
21	冷却材再循環系	吐出管	R/B 1F	Y	H16.2	8.0E+01	4.4E+06
21	(Aグループ)	アノード	R/B 1F	Y	H16.2	1.5E+03	4.9E+07
21		下降管	R/B 1F	Y	H16.2	1.1E+02	6.9E+06
21	冷却材再循環系	吐出管	R/B 1F	Y	H16.2	5.2E+02	2.9E+07
21	(Bグループ)	アノード	R/B 1F	Y	H16.2	4.6E+02	1.5E+07
21		下降管	R/B 1F	Y	H16.2	8.6E+03	5.4E+08
12	原子炉出入口管	入口管	R/B 1F	電離箱	H17.2	5.5E+03	1.1E+09
12	(Aグループ)	上昇管	R/B 1F	電離箱	H17.2	1.2E+04	1.8E+09
12	原子炉出入口管	入口管	R/B 1F	電離箱	H17.2	7.2E+03	1.5E+09
12	(Bグループ)	上昇管	R/B 1F	電離箱	H17.2	2.5E+04	3.8E+09
22	冷却材浄化系	デミ入口	A/B 1F Hx室 V22-2A入口	電離箱	H17.2	2.7E+03	4.1E+08
22		デミ出口	A/B 1F ボンプ室 V22-9A	電離箱	H17.2	8.2E+01	1.7E+07
22	冷却材浄化系	給水戻り	T/B B1 Hx室 給水合流前	電離箱	H17.2	1.6E+02	3.3E+07
蒸気系							
84	主蒸気・補助蒸気系	MSIV外	T/B B1 MS管室	NaI	H17.2	4.0E+01	2.3E+06
タービン設備							
84	タービン本体	HPタービン	T/B 1F 1F	スミヤ	H14.1	2.2E+01	3.9E+06
84		LPタービン	T/B 1F 1F	スミヤ	H14.1	3.0E-01	1.2E+04
84	復水器		T/B B2 復水器下部	NaI	H17.2	8.8E+00	5.0E+05
84	復水・給水系	CP出口	T/B B2 CP室 V84-2A 入口	NaI	H17.2	6.8E+00	9.0E+05
84		デミ出口	T/B B2 コンデミ室復水ストレーナ出口	NaI	H17.2	4.8E+00	7.1E+05
84		RFP出口	T/B B2 V84-17A入口	NaI	H17.2	2.5E+01	9.7E+05
84		給水戻り	T/B B1 MS管室 V84-21A	NaI	H17.2	1.8E+02	7.1E+06
84		84系デミ出口	T/B B2 復水再循環配管 V84-8入口	NaI	H17.2	1.2E+01	1.7E+06
工安系							
71	高圧注水系	ポンプ出口	A/B B2 V71-2B入口	NaI	H17.2	1.4E+02	1.2E+07
72	低圧注水系	ポンプ出口	A/B B2 MV72-5A後	NaI	H17.2	6.8E+01	3.7E+06
74	隔離冷却系	ポンプ出口	A/B B2 MV74-3A後	NaI	H17.2	4.8E+00	4.7E+05
75	余熱除去系	ポンプ入口	R/B 1F MS管付近 A系	電離箱	H17.2	6.1E+02	5.7E+07
75		ポンプ出口	A/B B2 A-ポンプ入口	電離箱	H17.2	3.7E+03	3.5E+08
76	蒸気放出タービン冷却系	Hx入口	R/B B2 A-Hx付近	電離箱	H17.2	5.4E+02	7.2E+07
72	低圧注水系	蒸気母管出口	R/B B2 蒸気母管 V72-23出口	電離箱	H17.2	1.2E+03	6.6E+07
18	遮蔽冷却系	ポンプ出口	A/B B1 ボンプ室 Hx入口	NaI	H17.2	2.2E+01	3.3E+06
18		Hx出口	A/B B1 Hx出口	NaI	H17.2	1.8E+01	2.6E+06

1.4 除染方法の選定

除染技術の文献調査結果等に基づき、「ふげん」への除染技術の適用性を検討した。その前提条件と結果を以下に示す。

- i) クリアランスレベル以下の廃棄物を目指した除染方法の選定の考え方

選定した除染方法の適用実績を文献より調査・整理し、「ふげん」の各系統設備の汚染状況を踏まえ、適用性を整理し所期の除染性能が得られるかを検討・比較整理した。様々な除染方法があるが、いずれの方法を適用する場合も最終的には除染後に放射能濃度としてクリアランスレベル以下 (Co

-60:0.1Bq/g未満)になることの確認が必要である。

ii) 除染による効果及び得失

選定する除染方法については「ふげん」の廃止措置に適用した場合の効果を検討する必要がある。物理除染法は小口径配管や複雑形状の除染に向かない等の対象物に制約があるが設備が簡素である。一方、化学除染は汚染の高低や除染対象物の形状の制限がなく除染が可能であるが設備が複雑になる。これらの得失を考慮すると、汚染の高低、形状に応じて物理除染と化学除染の組合せが合理的と考えられる。

iii) 物理除染

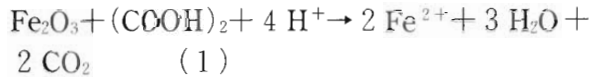
解体後の除染に適用する物理除染法として、Table 1.1に示された除染方法のうちから、ブラスト法を選定した。ブラスト法にはブラスト材を圧縮空気とともに投射するドライブラスト法と、圧縮空気に代えて圧力水とともに投射するウエットブラスト法があるが、ドライブラストの場合は放射性粉塵の飛散による内部被ばく、粉塵対策としての防護着用等による作業効率の低下、ブラスト装置内粉塵の洗浄処理、排気系の粉塵対策等が必要であり、「ふげん」には廃液処理設備があること等を考慮して、ウエットブラスト法を試験対象方式として選定した。

iv) 化学除染

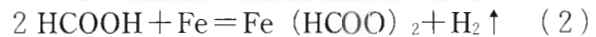
解体後の除染に適用する化学除染法として、Table 1.2に示された除染方法を参考に、それらの除染方法をそのまま選定するのではなく、除染廃液に起因する2次廃棄物の発生が少なく、廃液処理が容易な有機酸による除染方法を検討した。その結果、有機酸の選定では「ふげん」の系統除染で適用されたシュウ酸を選定し、過マンガン酸カリウム等の金属を含む除染剤を使用しない簡素な除染方法の適用を調査した。

また、文献調査⁽⁴⁾⁽⁵⁾によると炭素鋼の除染剤として有機酸のうちのギ酸を適用している例もあり、ここではステンレス鋼にはシュウ酸、炭素鋼にはギ酸を除染剤として選定した。

ここで除染のメカニズムを整理すると、ステンレス鋼表面の酸化皮膜中の鉄酸化物はシュウ酸により還元溶解され、その化学反応式は(1)式のとおりとなる。



また、炭素鋼の酸化皮膜の主成分である酸化鉄(Fe_3O_4 、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$)の溶解速度は、炭素鋼母材と比較して非常に小さいため、酸化皮膜は下部の金属母材が(2)式に示す反応により溶解することで母材から剥離しギ酸水溶液中に移行する。



2. 除染試験

2.1 物理除染試験

i) 基本除染性能試験

ブラスト材料の種類及び噴射時間と除染性能を把握する基本性能試験を実施した。その試験条件をTable 2.1に、試験結果をFig.2.1, 2.2に、試験装置の外観をFig.2.3に示す。

- ①炭素鋼における各ブラスト材の除染効果は、アルミナ>ガラスビーズ>ジルコンの順で、いずれもクリアランスレベルまで処理できることが確認された。
- ②ステンレス鋼における各ブラスト材の除染効果は、アルミナ>ガラスビーズ>ジルコンの順で、いずれもクリアランスレベルまで処理できることが確認された。

ii) 除染性能試験

実機処理を想定し、処理速度が速い平射ノズルを用いて、クリアランスレベル以下にできる除染性能を目標に、ウエットブラスト法による除染性能試験を実施した結果をFig.2.4, 2.5に示す。

Table 2.1 Test Condition of Wet-blast

項目	条件
距離	100mm
圧力 / 角度	0.4MPa : 45°, 90°
噴射ノズル	(スリット式) 平射ノズル
ブラスト材濃度	30 (v/v) %
噴射時間	5~120秒/回 max 600秒
ブラスト材	ガラスビーズ (GB) ジルコン (Zr) アルミナ (Al)

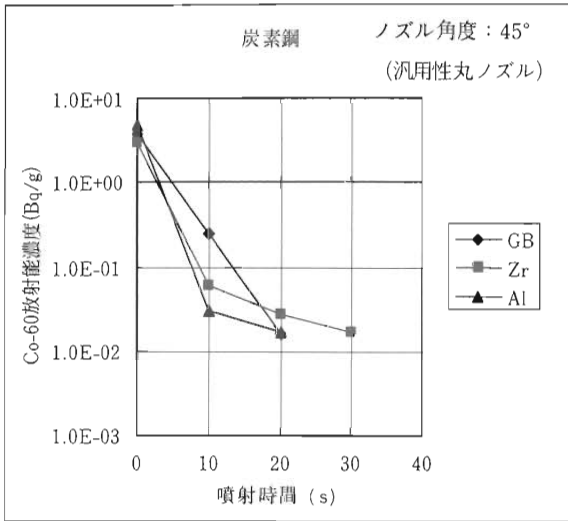


Fig.2.1 Basic Performance Test for Carbon Steel

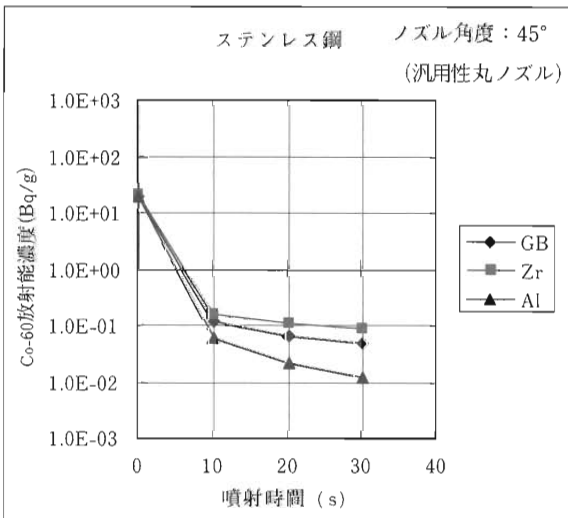


Fig.2.2 Basic Performance Test for Stainless Steel

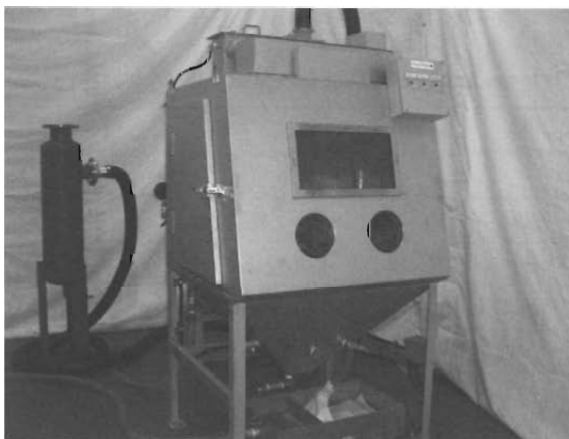


Fig.2.3 Appearance of Wet Blast Test Equipment

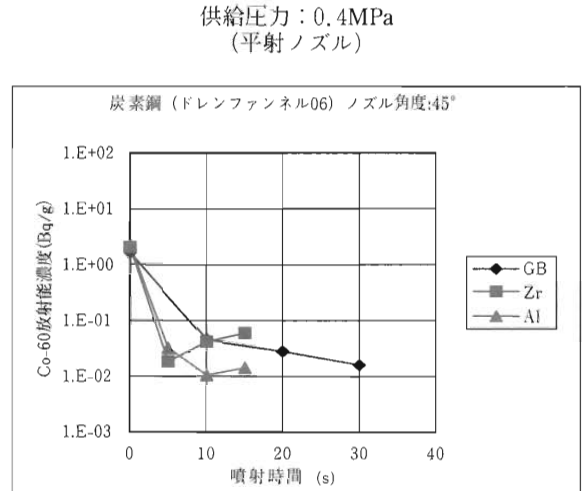


Fig.2.4 Performance Test for Carbon Steel

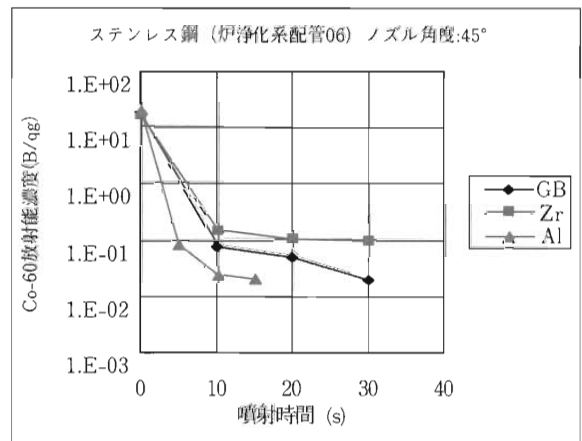


Fig.2.5 Performance Test for Stainless Steel

- ①炭素鋼およびステンレス鋼における研削力は、大きいほうからアルミナ、ガラスビーズ、ジルコンの順であった(丸ノズルと同じ傾向)。
- ②腐食が少なく、熱的影響も受けていない炭素鋼(汚染レベルの低い試験片)、及び、再生熱交換器出口側(炉浄化系脱塩器下流)で採取したステンレス鋼(汚染レベルの低い試験片)については、クリアランスレベル以下まで除染できた。
- ③腐食が多い炭素鋼(汚染レベルの高い試験片)や再生熱交換器入口側(蒸気ドラム下流)で採取したステンレス鋼(汚染レベルの高い試験片)については、目標処理時間30秒(注)以内でクリアランスレベル以下まで除染できなかった。
(注)実機の除染対象物寸法を80cm×30cmと仮定し、これを約1時間以内で除染するとし

た場合の試験片（5 cm×5 cm）の除染に要する時間

iii) 除染適用性試験

「ふげん」の実系統から採取した炭素鋼及びステンレス鋼試験片を用いて、クリアランスレベル以下にできる除染性能を目標に、ウエットブラスト法による除染適用性試験を実施した。

- ①炭素鋼として主蒸気配管（隔離弁付近及び止弁付近）と湿分分離器ドレン配管を対象に除染試験を実施した。その結果、いずれの場合も照射時間6秒程度でクリアランスレベル以下となった。
- ②ステンレス鋼として再生熱交入口配管、非再生熱交出口配管、浄化系戻り配管を対象に除染試験を実施した。その結果を Fig.2.6 に示す。いずれの場合も目標照射時間30秒内でクリアランスレベル以下にすることはできなかった。

2.2 化学除染試験

i) 基本除染性能試験

炭素鋼及びステンレス鋼試験片を用いて、クリアランスレベル以下にできる除染性能を目標に、有機酸法による基本除染性能試験を実施した。試験条件を Table 2.2 に、試験手順を Fig.2.7 に示す。

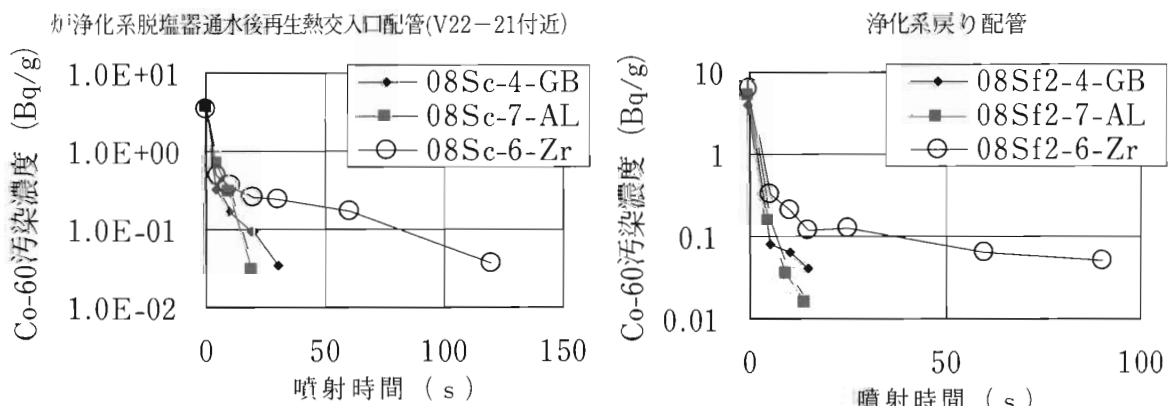
①炭素鋼除染試験

- a. 炭素鋼試験片について、ギ酸濃度を0.2mol/L（1%）1.1mol/L（5%）2.2mol/L（10%）と変化させて試験した結果、試験に適用する濃度

は除染性能のよい2.2mol/L（10%）を選定した。処理温度は90℃で1時間除染を行い、処理後の試験片を純水洗浄に続き超音波洗浄することによりクリアランスレベル以下とすることができた。

Table 2.2 Test Condition of Chemical Decontamination

	炭素鋼	ステンレス鋼
除染剤濃度	ギ酸：10%	シュウ酸：1%
除染温度	90℃	95℃
除染時間	浸漬(1h) + 超音波洗浄(3min) (繰返し)	



【条件】 ノズル：平射ノズル、ブラスト材濃度：30(V/V)%
ノズル角度：90°、噴射圧力：0.4MPa

Fig.2.6 Decontamination Test for Stainless Steel

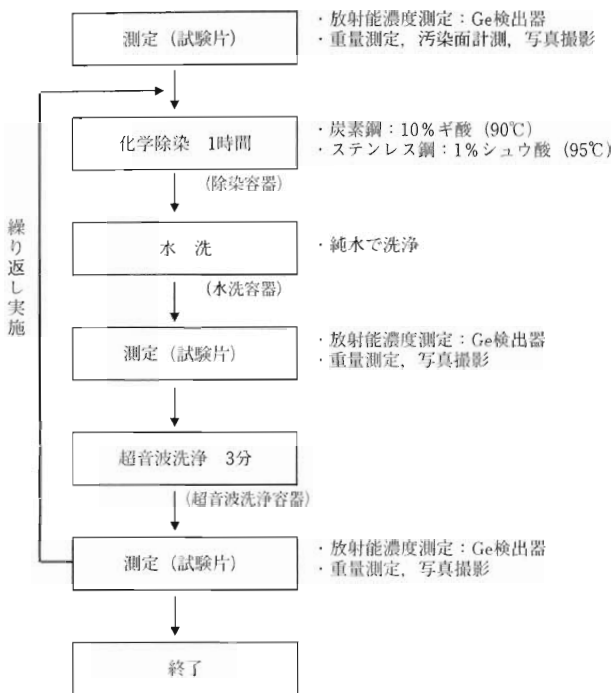


Fig.2.7 Test Step of Chemical Decontamination

② ステンレス鋼除染試験

a. ステンレス鋼試験片については、除染剤にシュウ酸を用い、濃度を2000ppm (0.2%)、10000ppm (1%)、20000ppm (2%) と変化させて試験した結果、除染性能と除染廃液の分解

性を考慮して試験時の濃度は10000ppmを選定した。処理温度は95℃で1時間除染を行い、処理後の試験片を純水洗浄に続き、超音波洗浄することによりクリアランスレベル以下とすることができた。

ii) 除染性能試験

汚染レベルの異なる炭素鋼及びステンレス鋼試験片を用いて、クリアランスレベル以下にできる除染性能を目標に、有機酸 (ギ酸・シュウ酸) 法による除染性能試験を実施した。

① 炭素鋼で腐食が少なく熱的影響も受けていないもの (汚染レベルの低い試験片) の除染性能は良く、10%ギ酸溶液で1時間程度処理することによってクリアランスレベル以下まで除染できた。

② 再生熱交換器出口側 (炉浄化系脱塩器下流) で採取したステンレス鋼 (汚染レベルの低い試験片) は、1%のシュウ酸を用いて処理温度95℃で1時間除染を行い、処理後の試験片を純水洗浄に続き、超音波洗浄することによりクリアランスレベル以下まで除染することができた。

③ 腐食が多い炭素鋼 (汚染レベルの高い試験片) や再生熱交換器入口側 (蒸気ドラム下流) で採取したステンレス鋼 (汚染レベルの高い試験片) はFig.2.8に示すとおりクリアランスレベル以下まで除染することはできなかった。この除染処理後の試料の断面ミクロ観察をした結果、試

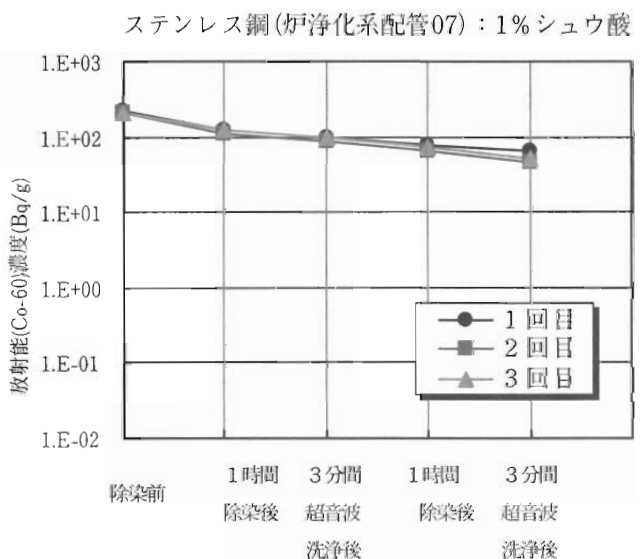
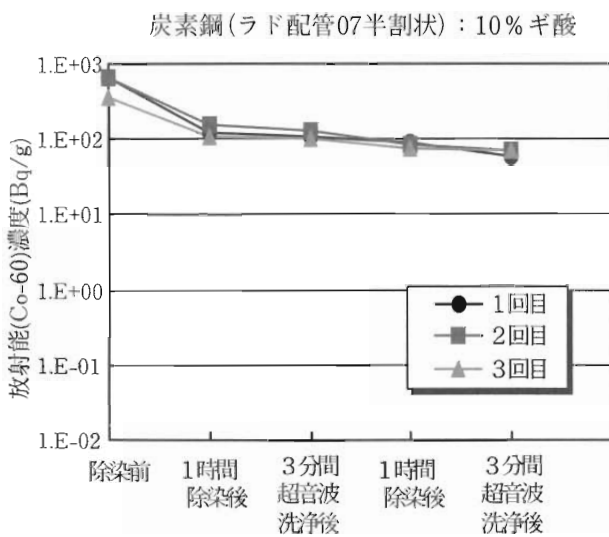


Fig.2.8 Performance Test for Higher Contaminated Steel

験片の酸化皮膜は除去されていたが、母材表面までが浸食されていることが判明した。母材の浸食のため、この浸食部分に汚染した除染剤が進入し、純水洗浄、超音波洗浄で除去できなかったことより再汚染が生じた可能性がある。

iii) 除染適用性試験

「ふげん」の設備系統の異なる箇所から採取した炭素鋼及びステンレス鋼試験片を用いて、クリアランスレベル以下にできる除染性能を目標にして、試験を実施した結果をFig.2.9, 2.10に示す。また試験装置の外観をFig.2.11に示す。



Fig.2.11 Appearance of Chemical Decontamination Test Equipment

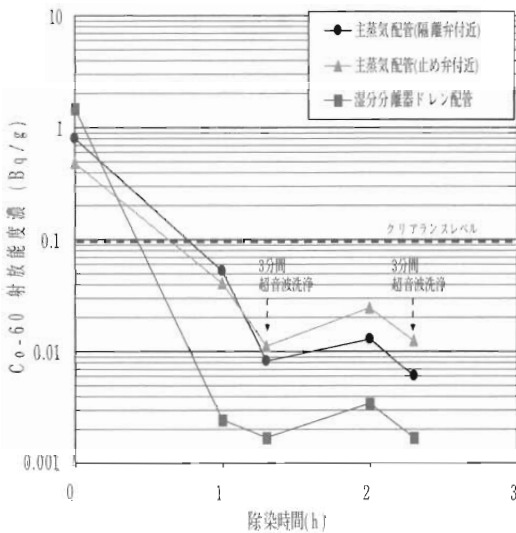


Fig.2.9 Test Result using 10% Formic Acid for Carbon Steel

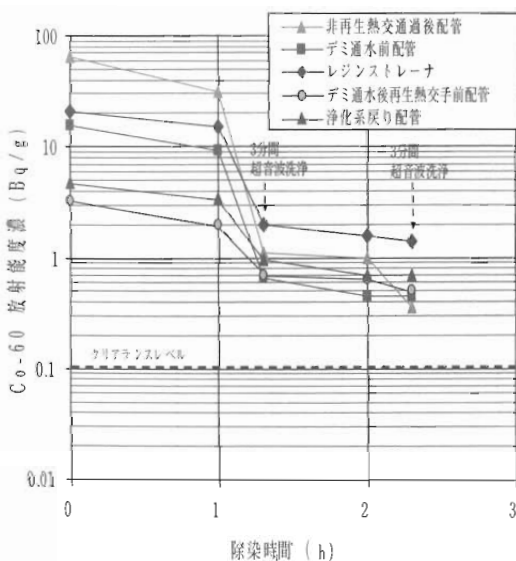


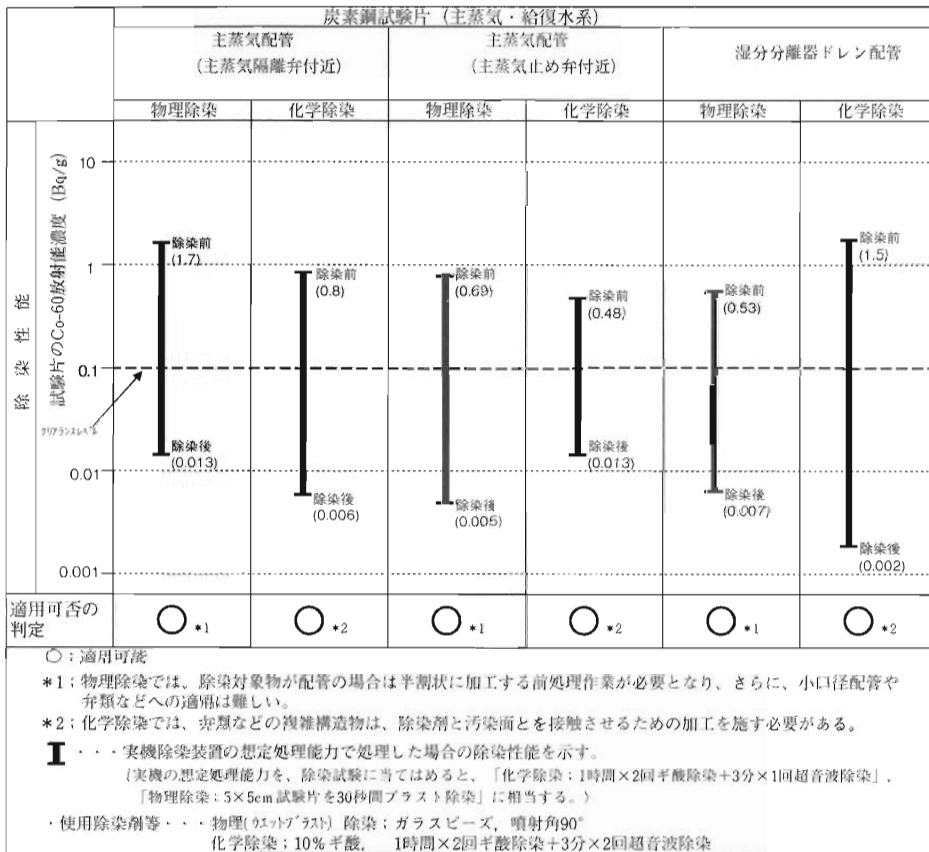
Fig.2.10 Test Result using 1% Oxalic Acid for Stainless Steel

- ①炭素鋼として主蒸気配管（隔離弁付近及び止弁付近の配管）及び湿分分離器ドレン配管を採取して、10%ギ酸による除染を行った。その結果、いずれの配管も1時間の除染処理でクリアランスレベル以下とすることができた。
- ②ステンレス鋼として炉浄化系配管（再生熱交手前配管、非再生熱交通過後配管等）を採取して、1%シュウ酸による除染を行った。その結果、いずれの配管も2時間の除染処理でもクリアランスレベル以下とすることができなかった。
- ③除染試験に使用した廃液の処理方法として、二次廃棄物の発生を低減させるため除染剤の分解剤として過酸化水素を使用した。この廃液の分解反応を促進させるために鉄イオンを添加してフェントン反応により酸化力の強いヒドロキシラジカル($\cdot\text{OH}$)を発生させて分解処理をした。

$$\text{Fe}^{2+} + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{Fe}^{3+} + \text{OH}^- + \cdot\text{OH}$$
 その結果、ギ酸は約1時間で、シュウ酸は約4時間で目標濃度である100ppm以下に分解処理ができ、最終的に既設の液体廃棄物処理系で処理が行えることを確認した。

3. まとめ

これまでに実施した除染適用性試験等の結果から、実機においてクリアランスレベル以下まで除染処理ができる適用性を整理した結果をFig.2.12, 2.13に示す。



— 物理除染法、化学除染法の適用可能範囲
 (ただし、物理除染では、除染対象物が配管の場合は半割状に加工する前処理作業が必要となり、さらに、小口径配管や弁類などへの適用は難しい。
 また、化学除染では、弁類などの複雑構造物は、除染剤と汚染面とを接触させるための加工を施す必要がある。)
 ● 試験片の採取箇所

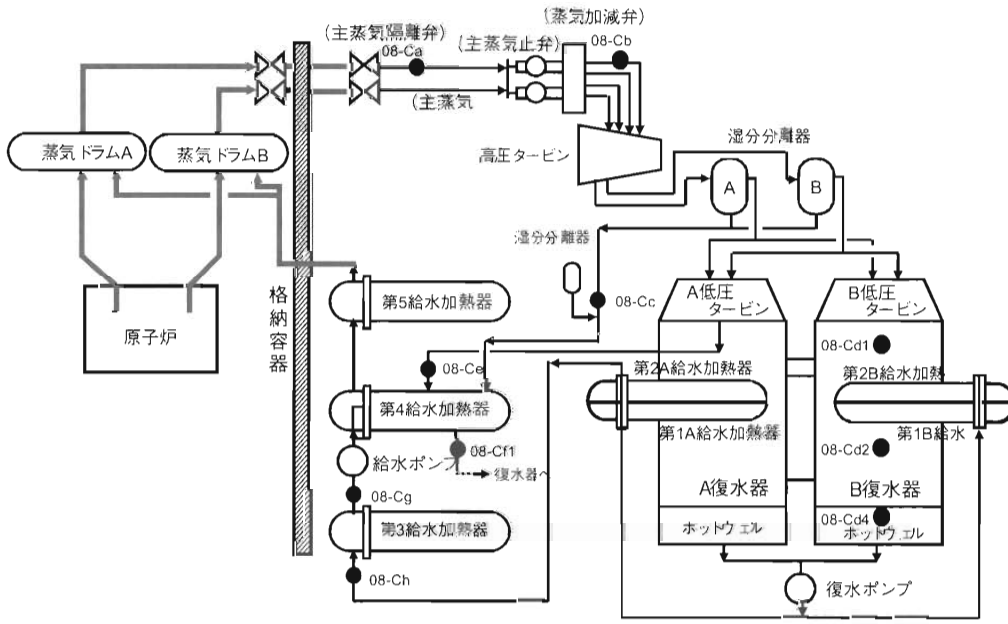


Fig.2.12 Decontamination Performance Evaluation Map for Fugen Facilities (Carbon Steel)¹⁰⁾

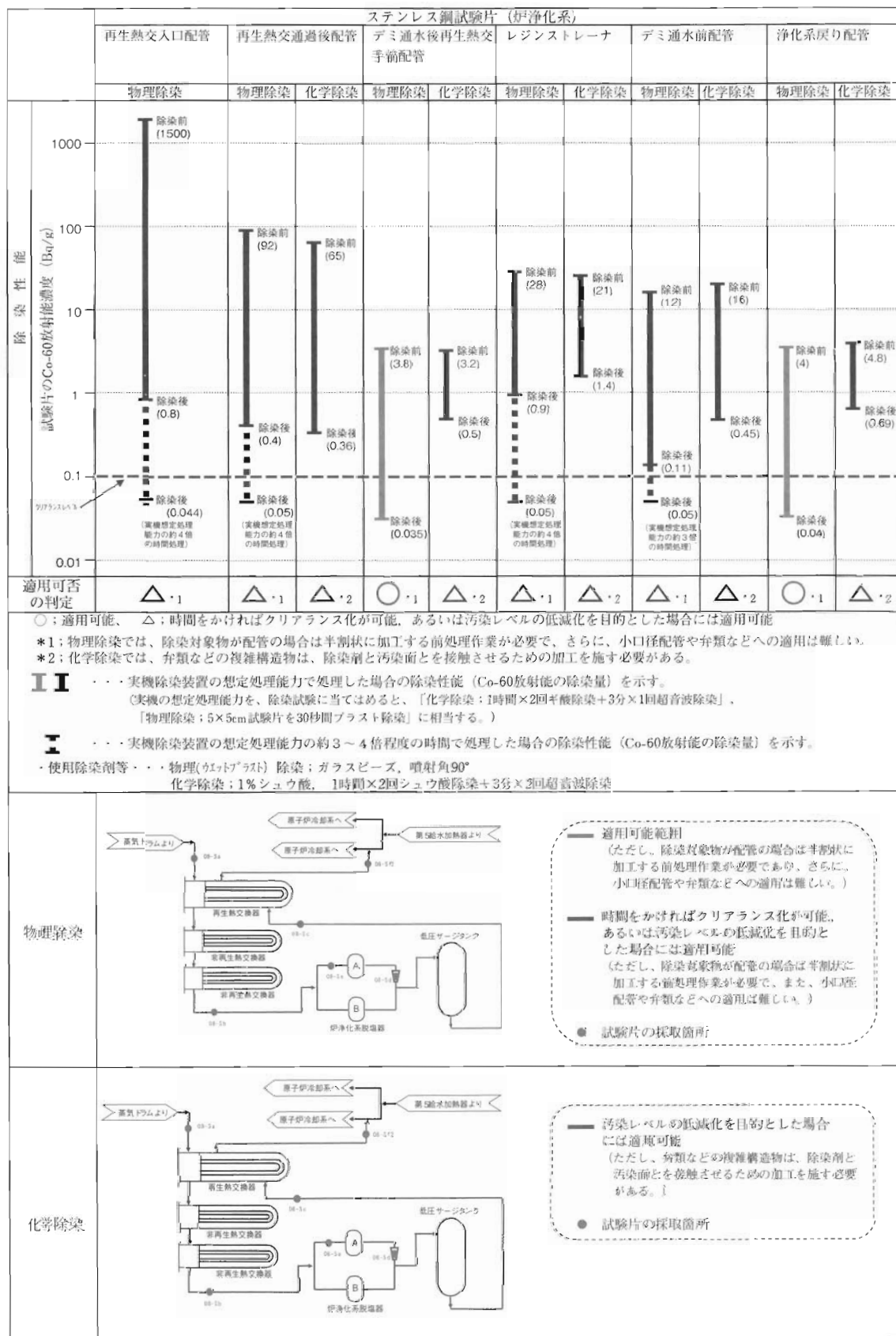


Fig.2.13 Decontamination Performance Evaluation Map for Fugen Facilities (Stainless Steel)¹⁰⁾

これから、炭素鋼については物理除染あるいは化学除染のいずれの方法でもクリアランスレベル以下に処理することが可能であると考えられる。しかし、ステンレス鋼については炉浄化系脱塩器通水後の再生熱交入口配管と浄化系戻り配管の使用条件が低音・低圧の部分の試験片はクリアランスレベル以下にできたが、その他の部分はクリアランスレベル以下に処理することができなかった。これらの部分についてはさらに除染性能の高い手法を適用するか、クリアランスレベルよりも放射能レベルの高い極低レベル放射性廃棄物としての処分を選択する等、今後の検討が必要である。

謝 辞

本実証試験は文部科学省の委託業務^{6)~10)}として実施して各種の指導をいただいた他、「ふげん」からは施設供与と実機試験片の提供等の協力をいただいた。また各々の試験については本業務で設置された「試験研究炉等廃止措置安全性実証等委員会」の委員の方々に指導いただくとともに、地元企業等の協力を得て各種の試験を遂行して所期の成果を得ることができた。ここに関係各位のご協力に感謝申し上げる。

参考文献

- 1) 石樽監修「原子力施設における除染技術」テクノプロジェクト、(1984) p244-260.
- 2) 森田、青木ら、酸化還元除染法による「ふげん」

- ん」原子炉冷却系Bループの系統化学除染結果、サイクル機構技報、No.7 (2000.6) p1-9.
- 3) 日本原子力学会編、原子炉水化学ハンドブック、9.除染.
- 4) 遠田、矢板、酒井、蜂須賀、日本原子力学会和文論文誌、Vol.3、No.3 (2004)、p36-46.
- 5) 遠田、佐藤ら、ギ酸化学除染技術の開発、日本原子力学会和文論文誌、Vol.5、No.4、p.364-373 (2006).
- 6) 平成16年度電源開発促進対策特別会計受託事業成果報告書「試験研究炉等廃止措置安全性実証等(研究開発段階炉の調査)」:(財)原子力安全技術センター、平成17年3月.
- 7) 平成17年度電源開発促進対策特別会計受託事業成果報告書「試験研究炉等廃止措置安全性実証等(研究開発段階炉の調査)」:(財)原子力安全技術センター、平成18年3月.
- 8) 平成18年度電源開発促進対策特別会計受託事業成果報告書「試験研究炉等廃止措置安全性実証等(研究開発段階炉の調査)」:(財)原子力安全技術センター、平成19年3月.
- 9) 平成19年度エネルギー対策特別会計委託事業成果報告書「試験研究炉等廃止措置安全性実証等(研究開発段階炉の調査)」:(財)原子力安全技術センター、平成20年3月.
- 10) 平成20年度エネルギー対策特別会計委託事業成果報告書「試験研究炉等廃止措置安全性実証等(研究開発段階炉の調査)」:(財)原子力安全技術センター、平成21年3月.

原子炉の廃止措置に用いる系統除染及び解体後の機器除染技術

宮坂靖彦*

Full System and Segmented Parts Decontamination Techniques Used in Decommissioning of Reactor

Yasuhiko MIYASAKA *

除染技術は、供用期間中に系統及び機器の汚染レベルを下げる、あるいは廃止措置においては作業者の被ばく低減等を目的とし、例えば、化学的、機械的、電気化学的除染など数種類の方法に分類される。

廃止措置の除染技術では、供用期間中の除染技術と比較して機器や系統システムは、再使用しないことから母材表面を十分に除去する強除染することが許されるが、二次廃棄物の発生量の最小化を図るべきである。

本報告では、主に諸外国の発電炉の廃止措置に用いられている大型機器／系統除染及び解体後の機器除染の技術の現状について紹介する。

最近の希釈酸化還元除染プロセスである、例えば、CORD、DFD法等は、商業ベースで多くの実績を残し、有効な技術として評価されている。また、ブラスト除染は、解体機器の除染に非常に効率的で二次廃棄物が比較的少ないことから広く用いられている。代表的なブラスト材は、アルミナ、鉄、ジルコニア、ドライアイスなどである。

Decontamination is to reduce radiation exposure for workers during restoring components/systems and decommissioning. Decontamination techniques can be classified into several different ways depending decontamination process, e.g. chemical, mechanical, electrochemical, etc.

The techniques used in decontamination for decommissioning purposes have two main differences in comparison with common in-service decontamination techniques.

- The techniques can be allowed to effect the integrity of the base materials. This is because, in principle, the component or system will not be served.
- The techniques should generate the minimum quantity of secondary wastes.

This report describes an overview of the large component/full system and the segmented parts decontamination techniques used for decommissioning in the nuclear power plant.

Recent experiences of the dilute cyclic oxidation reduction decontamination processes e.g. CORD and DFD methods are extensive and the processes are commercial base. Blasting is a very effective decontamination method that is widely used to segmented parts. Typical abrasive media are alumina, steel, zirconia, dry-ice pellet, etc..

* : (財) 原子力研究バックエンド推進センター (Radioactive Waste Management and Nuclear Facility Decommissioning Technology Center)

1. はじめに

原子力施設の廃止措置における除染は、作業者の被ばく低減、放射性物質の放出と体内被ばくの抑制、機器の再利用及び廃棄物管理を容易にすること等を目的として行われる。原子炉の解体を進めるに当たり、解体対象の機器・配管等に付着している放射性物質を解体の前後において除去する作業が行われる。廃止措置のための除染技術をFig.1に示す。

除染技術の選択には、廃止措置プロジェクト全体での被ばく量とコストとを考慮して実施されるべきで、安全性、除染効果、経済的効果、及び廃棄物の最小化を考慮する必要がある。¹⁾

除染には、化学的方法、電気化学的方法、物理的方法、溶融及びこれらを組合わせた方法がある (Table 1 参照)^{1), 2)}。解体関連の除染には、解体作業に従事する作業員の被ばく低減を目的とした解体前にする系統除染等と、解体によって発生した放射性廃棄物の汚染レベルを低減させ、その後の処理処分を容易にすると同時に一部の廃棄物を再利用可能にして全放射性廃棄物量の低減を図ることを目的とした解体後除染がある。

除染効果は、除染することによって汚染が除染前の何分の1になったかを示す除染係数 (DF: Decontamination Factor) で表される。

Table 1 Decntamination Techniques ^{1), 2)}

区分	種類	方法
化学的除染法	CAN-DECON	還元反応の利用
	LOMI	
	CITROX	
	酸化還元反応の利用	CORD
		DFD
		HOP法
		T-OZON
	酸化又は酸溶解反応の利用	硫酸セリウム
		DECOHA
		ODP/SODP
DECOFOR		
MEDOC		
ゲル剤、発泡剤と除染剤を組合わせた利用	ゲル	
	フォーム	
電気化学的除染法	電解研磨	産業界で一般に行われている電解研磨技術を利用
	機械電解研磨	
	中性交番電解	
物理的除染法	水ジェット	水自身あるいは研磨剤を用いる表面除染
	超音波	
	ブラスト	
	CO ₂ アイスブラスト	
その他	溶融除染	溶融し、揮発性の物質のフィルタ捕集及びスラグ除染
	ストリップパブルコーティング	コーティング材を塗り、その中に汚染物を抽出して除去する

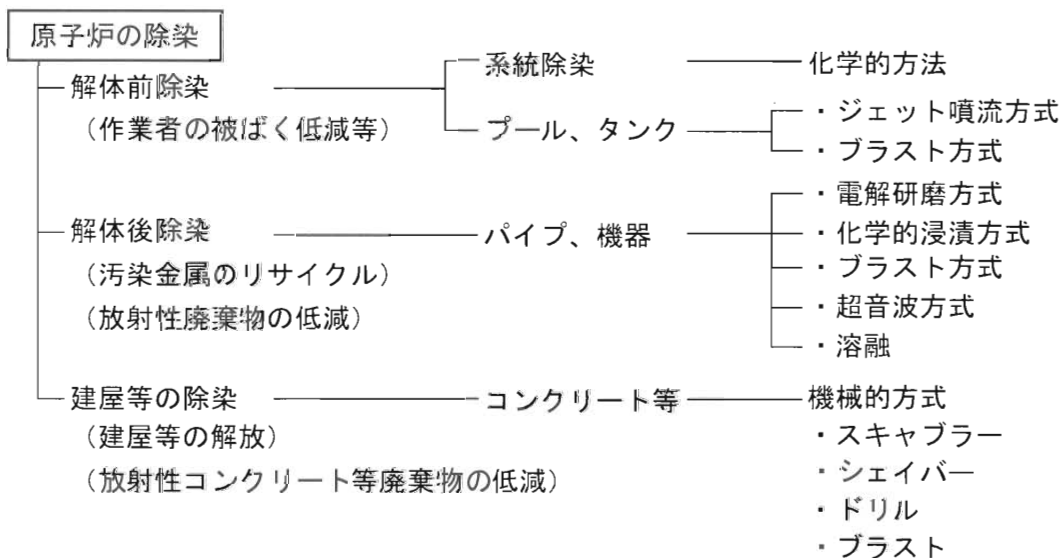


Fig.1 Decontamination Techniques for Decommissioning ¹⁾

2. 系統除染技術

2.1 概況

解体前除染には、原子炉1次系の系統除染と燃料プールや廃液貯蔵タンク等の除染がある。系統除染は、化学除染が一般的であり、解体作業現場の空間線量を下げ、解体作業員の被ばく線量を低減することが主たる目的である。系統除染ではその現場に除染装置を持ち込み、あるいは既設の設備を使って機器・配管を除染する。プールや燃料やタンク等の除染では、高圧水ジェットやブラスト除染等が用いられている。

系統除染は、除染する機器、配管内に化学溶液を循環させ、内表面の汚染放射能を溶出させる方法である。廃止措置に適用される系統除染は、供用中原子炉施設の除染の延長線上に位置づけられるが、供用中除染のように材料の健全性に対する厳しい制約がない。即ち、除染対象物は、除染後に解体撤去されることが決まっているので安全が保証される範囲内であれば、汚染機器の母材までも侵食するような除染法も許容できる。

系統除染で重要なことは除染効果の向上の他に、除染に付随して発生する2次廃棄物（廃水、廃イオン交換樹脂等）量の低減及びその処理の容易さである。2次廃棄物の発生量を少なくする方

法としては、除染剤の再生利用及び使用済除染剤の分解処理等が考えられている。

系統除染の1980年末までの共用中除染等には、CAN-DECCN法、LOMI法、CITROX等の還元性除染剤が使用されていたが、特にクロム含有率の高いクラッドの場合、還元性除染剤では溶解が困難であった。^{2), 3)}

最近の軽水炉の系統除染は、次節に述べるクラッドの特性を考慮して開発された酸化及び還元反応を組み合わせて高い除染係数を得る酸化還元除染法が主流であり、諸外国では主にCORD法及びDFD法が採用されている。

廃止措置でCORD法を最初に実施したのがベルギーの動力試験炉BR-3で1991年である⁴⁾。最近のCORD法の適用例では、ドイツのシュターデの平均DF74、スウェーデンのパーゼベック1号機の平均DF300及び2号機の平均DF93と高い除染効果が得られている^{5), 6)}。DFD法では、米国のピックロックポイント廃止措置において1997年に適用して平均DF15、また翌年にメインヤンキーに適用して平均DF31と良い成績を残している⁷⁾。また、日本では、CORD法の他にHOP法及びT-OZON法⁸⁾も採用されている。これらの系統除染の適用状況等を比較して、Table 2に示す。

Table 2 Comparison of CORD, DFD, HOP and T-OZON for Full System Decontamination

除染法		CORD	DFD法	HOP法	T-OZON法
溶解原理		酸化/還元	酸化/還元	酸化/還元	酸化/還元
除染剤	酸化剤	過マンガン酸	過マンガン酸カリウム	過マンガン酸カリウム	高濃度オゾン水
	還元剤	シュウ酸	・希薄フッ化ホウ素酸 ・シュウ酸	・シュウ酸 ・pH調整剤 ；ヒドラジン	シュウ酸
供用中/ 改修工事 適用施設例		・福島第1-2号機、-3号機、5号機 (BWR) ・浜岡1号機 (BWR) ・島根1号機 (BWR)	—	・敦賀1号機 (BWR) *「ふげん」	浜岡3号機他、(BWR)
廃止措置 適用施設例		・BR-3 (PWR) ・MFZR (PHWR) ・ヴェルガッセン(BWR) ・コネチカットヤンキー (PWR) ・シュターデ (PWR) ・パーゼベック1号機、2号機 (BWR)	・ピックロックポイント (BWR) ・メインヤンキー (PWR) ・ゾリタ (NITROXプロセス追加) (PWR)	「ふげん」	—

2.2 クラッドの生成と特性^{2),9)}

軽水炉の1次系内に生成される放射性腐食生成物(クラッド)は、BWRではヘマタイト(α - Fe_2O_3)及びマグネタイト(Fe_3O_4)を主成分とした鉄酸化物である。

一方、PWRでは、蒸気発生器の伝熱管にクロムとニッケル含有量の多いインコネルを使用しているので、酸化被膜の外層に Fe_3O_4 またはニッケルフェライト($NiFe_2O_4$)、内層に $NiFe_2O_4$ の他、クロム酸化物($FeCr_2O_4$)などのクラッドが形成される。放射能蓄積に重要な反応では、外層の Fe_3O_4 中の一部の2価の鉄イオン又は $NiFe_2O_4$ 中の一部の2価ニッケルイオンが溶液に存在する2価のコバルトイオン(主な核種 ^{58}Co , ^{60}Co)と置換し、 $CoFe_2O_4$ を形成すること、また内層の $FeCr_2O_4$ 等の鉄イオンの一部が2価のコバルトイオンと置換して $CoCr_2O_4$ を形成する。

クラッド中の鉄やニッケル及びクロムは、主に3価の状態が存在して溶解速度が遅く、難易性である。

2.3 CORD法

CORD (Chemical Oxidation Reduction Decontamination) 法は、(独)シーメンス社で開発した酸化還元除染法である。CORD法の前身であるOZOX法を改良し除染効果を向上すると共に廃棄物発生量の最小化を図った除染プロセスである。CORD法は、酸化剤としてOZOX法の過マンガン酸カリウムの代わりに過マンガン酸($HMnO_4$)を用い、また還元剤に低濃度化(0.1-0.3%)したシュウ酸などのジカルボン酸を用いるマルチステップマルチサイクル酸化/還元除染プロセスの総称(CORDファミリーとも称す)である。酸化被膜プロファイル及びCORD UV法とCORD D UV法による酸化被膜の除去範囲をFig.2に示す。¹⁰⁾(ここでのDは廃止措置用の除染技術を、また、DVは紫外線照射を意味する)

CORD UV法は、温度 $90^{\circ}C \pm 5^{\circ}C$ の条件で、最初のステップで過マンガン酸を加え、酸化層内の酸化クロム(Cr_2O_3)をイオン化する。ステップ2で過マンガン酸を還元するシュウ酸($H_2C_2O_4$)を注入し、酸化層を溶解し除染が開始される。イオン化金属は複合物として溶解される。ステップ3でイオン交換樹脂で腐食生成物及びマンガンを吸

着し、浄化する。その後、廃止措置に用いる強力除染法としてFig.3に示すCORD D UVプロセスが開発された。この除染方法では、CORD法と同様に過マンガン酸及びシュウ酸を用い、中間リンスや除染剤の交換なしに系統に一度水張りするだけで実施する。この概念は、最初の2サイクルでは酸化層のみ除去し、この段階で母材金属の溶解による余分な廃液発生が回避される。放射能の大半を占める酸化被膜の溶解後、除染サイクルを繰り返し残留放射能が除去されるまで母材を均一に溶解し、目標のDFを達成する。過酸化水素及び紫外線照射により添加したシュウ酸を炭酸ガスと水に分解し、2次廃棄物の発生を少なくする工夫がなされている。¹⁰⁾

米国のコネチカットヤンキー(PWR型、60万kW_e)の系統除染は、CORD法により93°Cの条件

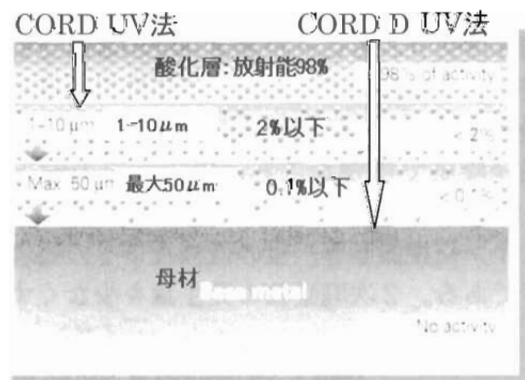


Fig.2 CORD Method and Activity Profile of Oxide Layer¹⁰⁾

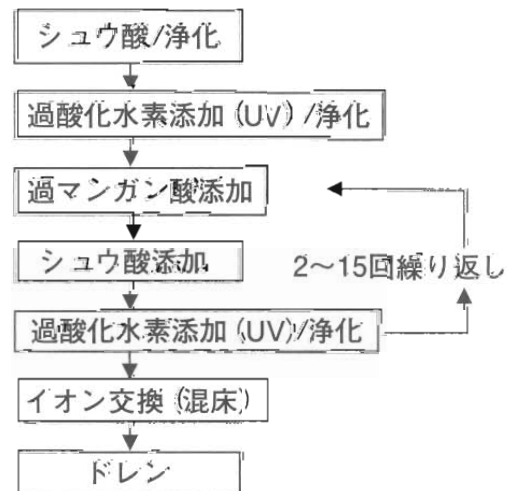


Fig.3 Schematic Diagram of CORD D UV Process¹⁰⁾

で、1998年7月に実施した。Fig.4に示す系統構成図のように汚染レベルが高い原子炉压力容器から汚染物を配管系に持ち出さないように容器内をバイパスする工夫をしている。当初計画では、4サイクルを予定した。CORD UVプロセスでの第2サイクル終盤に除染液約4 m³を漏えいするトラブルを発生したが除染目標をほぼ達成したことから強力除染であるCORD D UVによる第3サイクル及び第4サイクルを中止した。漏えい除染液

は、設計上留意していた区域内にとどまり、安全に回収した貴重な経験が報告されている。¹¹⁾

CORD法によるコネチカットヤンキー等の系統除染の実施結果をTable 3に示す。

2.4 DFD法等

DFD (Decontamination for Decommissioning) 法は、後で述べるフッ化ホウ素酸 (HBF₄) の還元反応を利用したDECOHA法をベースに米国の電

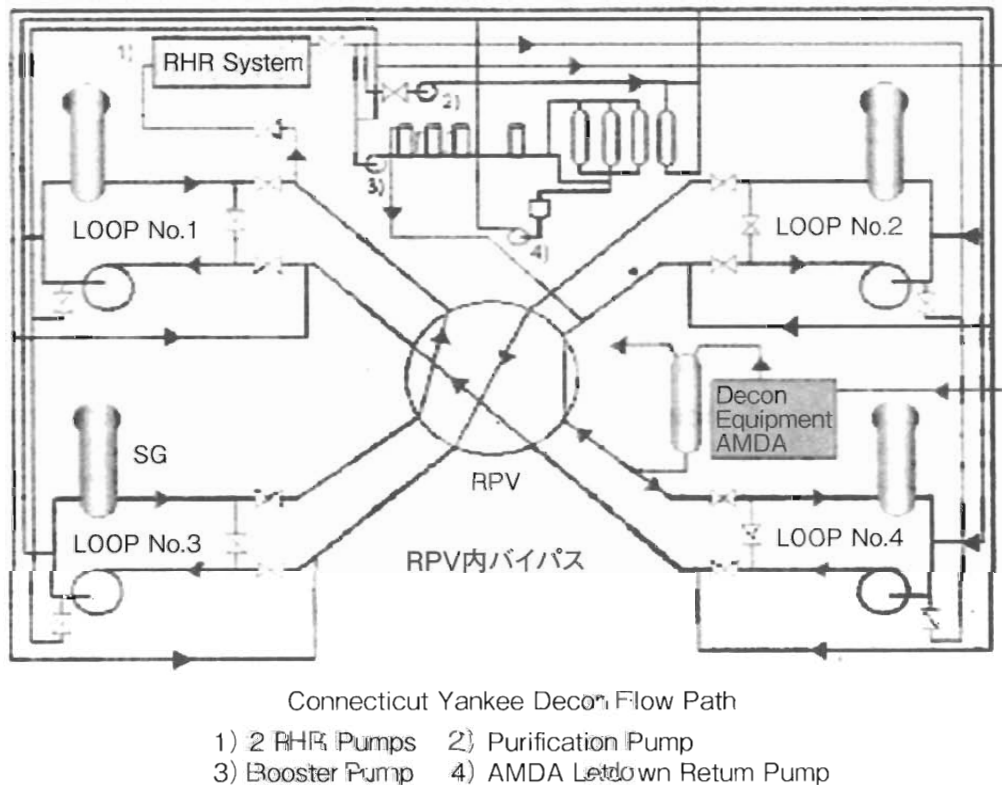


Fig.4 Full System Decontamination Scope of Connecticut Yankee by CORD UV Process ¹¹⁾

Table 3 Results of Full System Decontamination by CORD Method ^{3), 10), 11)}

プラント (炉型、出力)	除染範囲	除染 面積 (m ²)	除染 体積 (m ³)	回収 槽容量 (m ³)	除去 放射量 (TBq)	廃棄物 除去量 (kg)	平均DF (範囲)
BR-3 (PWR;10.5MW _e)	一次	1,200	-	1.3	βγ; 2 α; 0.2	33 (腐食物)	10
コネチカット ヤンキー (PWR;570MW _e)	一次系	400	130	12.5	5	182	16
シェターデ (PWR;670MW _e)	一次系	-	-	15	23	-	74
	補助系	-	-	-	-	-	38

力研究所 (EPRI) が開発した酸化還元除染法である。ステンレスを主体とする系統では、温度90°Cから95°Cの条件で、除染剤に希薄フッ化ホウ素酸／過マンガン酸カリウム (KMnO₄)／シュウ酸を用いる。この除染プロセスはFig.5に示すように希釈フッ化ホウ素酸で酸化被膜及び母材を効率良く溶解し、過マンガン酸カリウムでクロム系酸化物を溶解することで除染効果を上げる。廃液はイオン交換樹脂で浄化される。米国では、回収樹脂

を高性能廃棄物容器(HIC)に入れて処分している。米国のメインヤンキー発電所でのDFD法による系統化学除染時の構成図をFig.6に示す。^{7), 12), 13)}

NITROX/DFD法; 2006年4月に恒久停止したスペインのゾリタ (Zorita) 原子力発電所 (PWR型) では、DFDプロセスだけでは予備試験で除染効果が上がらないと判断し、NITROXプロセス (希釈シュウ酸、過マンガン酸と硝酸の希釈溶液) を組み合わせた方法が選定された。第1ステップ除染ではCr (3価) をCr (6価) に変え、酸化層を溶解するNITROXプロセスを、第2及び第3ステップ除染にDFDプロセスを用いている。その結果、Fig.7に示すように合計約800Ci (26TBq)

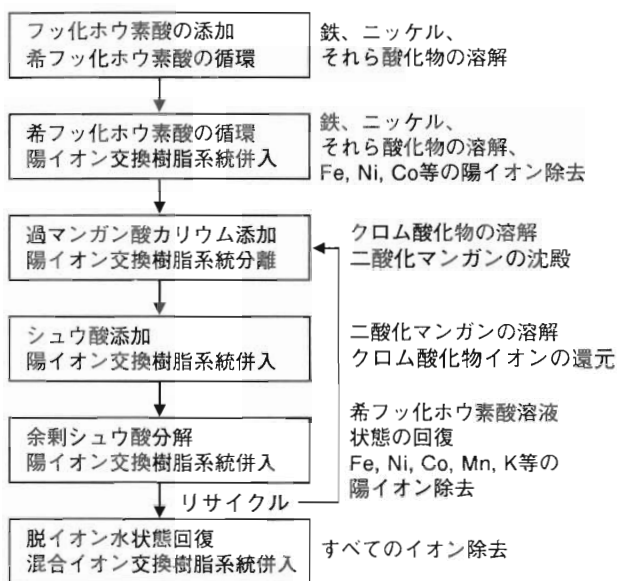


Fig.5 Schematic Diagram of DFD Process ⁷⁾

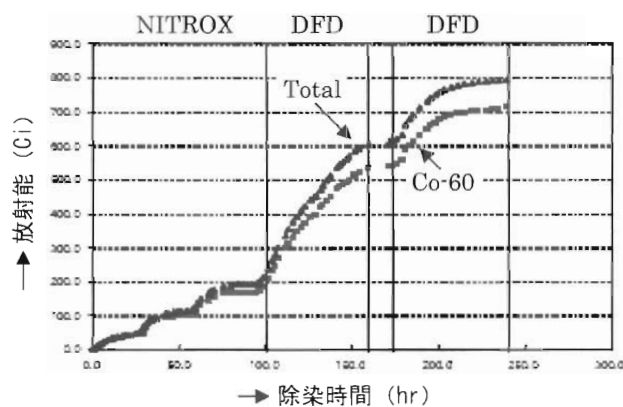


Fig.7 Removal Activity of Decontamination Process at Zorita ⁵⁾

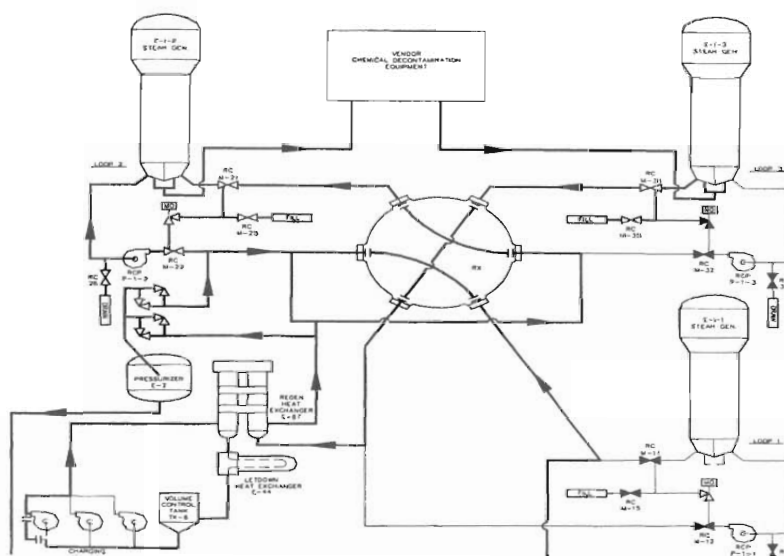


Fig.6 Full System Decontamination Scope of Maine Yankee by DFD Process ⁷⁾

Table 4 Results of Full System Decontamination and Trojan Clean Holdup/ Regen HEX by DFD Method 5), 7), 12), 13)

プラント (炉型;出力)	除染範囲	除染面積 (m ²)	除染体積 (m ³)	回収樹脂 (m ³)	除去放射量 (TBq)	廃棄物除去量 (kg)	平均DF
ビッグロック ポイント (BWR;67MWe) 1*	・圧力容器 ・一次冷却系 ・蒸気ドラム系 ・化学処理系統	1000	121	15.2	15	Fe:470 Cr:63 Ni:42	15
メインヤンキー (PWR;860MWe) 1*	・一次冷却系 ・化学体積制御系 ・余熱除去系	600	151	15	3.7	Fe:120 Cr:50 Ni:115	31
グリタ ² (PWR;160MWe)	・一次冷却系 ・補助系	900	-	13	26	金属 234	30
トロージャン (PWR;1,170 MWe) 1*	化学体積制御系 ホールドアップ タンク ³	44.7	28.8	1.6	0.02	44	3.6
	再生熱交換器 (3基) ³	-	-	0.6	0.05	0.5	66

1* DFD法、² NITROX/DFD法、³ 現位置での解体撤去前の機器除染

を除去し、DF30と良い結果を得ている。⁵⁾

DFD法等によるビッグロックポイント等の系統除染及びトロージャン発電所での大型機器の現位置での除染の結果をTable 4に示す。

2.5 HOP法

HOP法 (Hydrazine, Oxalic Acid, Potassium permanganate) は、日立が開発した酸化還元除染法である。この除染法では、温度90℃±5℃の条件で、酸化剤に過マンガン酸カリウム、還元剤にシュウ酸を用いる。¹⁴⁾

「ふげん」の恒久停止後の系統除染は、酸化剤に過マンガン酸カリウム(200~500ppm)を用いた酸化除染(Cr溶解)と還元剤にシュウ酸(2000ppm)を用いた還元除染(鉄酸化物溶解)を繰り返すことにより、付着酸化物を溶解する方法で行われた。このプロセスでのスラッジ水等の廃液はすべて既存の処理施設で処理し、イオン交換樹脂で浄化している。この結果は、廃止措置準備期間及び解体作業等による被ばく線量は除染しない場合の約1/5に低減、また、廃棄物処理処分費用も低減できると評価している。¹⁵⁾

2.6 T-OZON法

T-OZON法は、東芝が開発した酸化還元除染法である。この除染法では、温度90℃±5℃の条件で、最初に還元剤としてシュウ酸(2000ppm)で鉄酸化物を溶解し、次に酸化剤として高濃度オゾン水(1~5ppm)を用いクロム酸化物等を溶解する。この工程を必要に応じて2回以上繰り返す。2次廃棄物の回収には、溶解金属イオン補足にカチオン樹脂を用い、最終浄化及び酸化助剤捕捉には混合イオン交換樹脂を用いる。2次生成物は容易に除去できるので2次廃棄物の低減が期待できる方法として注目されている。廃止措置プラントへの適用例はまだないものの、国内のBWRプラントの原子炉冷却系の供熱期間中の除染に2000年から多く適用され、例えば、浜岡3号機(BWR型)の原子炉一次冷却系のステンレス部分では平均DFI6であった。^{8), 16)}

3. 解体後の機器除染技術

3.1 概況

解体した機器・配管等のうち放射能で汚染しているものは、その後の処理処分を容易にすること及び放射性廃棄物量を減量することを目的として

除染を行う。原子力施設の解体では、多量の解体廃棄物(110万kW級の商用発電炉で約50万t)が発生するが、このうち除染等により“放射性物質として扱う必要のない物”で金属はPWRで3,000トン、BWRで21,000トンと試算されている。¹⁷⁾

機器除染を行った解体廃棄物は残存した放射能の量に応じて処理処分される。残存汚染がほとんど認められない状態(クリアランスレベル)まで除染された廃棄物は、スクラップ材として売却が可能になる。また、再利用レベルあるいはスクラップ化レベルまで除染できなくても、廃棄物の放射能レベルを下げることでその後の廃棄物の管理や処理処分を容易にできる。従って、解体後の機器除染をどのように行うかは、解体から廃棄物の処理処分に至るプロセスに大きな影響を及ぼす。

3.2 化学除染

化学的除染は、除染溶液を使用して除染対象物の表面に付着した汚染物を酸溶解、還元溶解、酸化溶解反応で除去する除染法である。除染溶液としては酸、アルカリ、キレート剤等を使う。酸化剤を加え溶解力を高めた硫酸セリウム除染法などの技術も開発されている。これらは、通常、化学薬剤中に除染対象物を浸すタイプのものが多いが、なかには除染剤を泡あるいはゲル状にして除染対象物に付着させるタイプの技術もある。化学的除染は、複雑な形状の除染対象物に対しても除染液が接すれば除染効果が期待できる所に大きなメリットがあるが、放射性の化学廃液が発生することや除染時間が比較的長くなるところに問題がある。

最近、系統除染で述べたCORD法、DFD法、HOP法及びT-OZON法も機器除染に多く用いられている。また、実績のある化学除染方法の適用例を以下に記述する。

DECOHA法は、スイスのJ.Hanulikによって開発されたフッ化ホウ素酸(HBF_4)の還元反応を利用した化学除染プロセスと化学除染で溶解した金属の電気化学的回収を組合せた除染方法であり、系統除染及び解体後機器除染の両方に適用できる。除染対象物の形状、寸法に合わせて小型の物品類は浸漬除染、配管系、蒸気発生器等は除染液の系統内循環、タンク内部あるいは設備、コンク

リート表面は除染材の吹付けにより除染可能である。除染液は電解により再生され、同時に金属、放射性核種もこの時に除去される。¹⁸⁾

DECOFOR法は、希釈蟻酸(Formic Acid)溶液を除染剤にした除染方法で、ニッケル、鉛、銅、炭素鋼、アルミニウム等の広い範囲の金属に適用できる。この除染法の主な利点は経済的で、作業員に対する化学的毒性がなく、また液体廃棄物の発生がなく、少量の固体廃棄物が発生するのみという点である。固体廃棄物の発生量は被除染物の0.01-0.1%で、金属及びその酸化物の形で処分される。また除染速度は速く、しかも効率的である。室温における除染速度は、0.5-1.0%の蟻酸濃度で、鉛と銅表面に対して約 $1.0\text{mg}/\text{cm}^2/\text{min}$ 、アルミニウム、炭素鋼、ニッケルに対しては $0.1-1.00\text{mg}/\text{cm}^2/\text{hr}$ である。この除染法が米国エネルギー省及び他の廃止措置プロジェクトで採用され、無拘束放出レベルまで直接除染を可能にしている。¹⁹⁾

SODP法(Strong Ozone Decontamination Process)は、オゾン除染法(DOP)を強力なオゾン法に改良したもので、80年代後半にPWRからの解体物の無制限放出のためスウェーデンのStuds-vik社で開発された。硝酸、セリウム、オゾンを基本とし室温で実施された。2次廃棄物にはキレート剤は含まない。この方法はAgesta原子力プラント(スウェーデン)の2基のステンレス製蒸気発生器に少し遅れてDampierre PWR(フランス)のインコネル製蒸気発生器に適用されて非常に良い結果を得ている。²⁰⁾

MEDOC法(Metal Decontamination by Oxidation with Cerium)は、BR-3で採用された除染法である。化学除染と除染剤の電解またはオゾンによる再生を組合せたシステムであり、 Ce^{4+} イオンの強力な酸化作用を利用し、 $\text{Ce}^{4+} \rightarrow \text{Ce}^{3+}$ になることで金属表面を溶解除染する。 Ce^{3+} になったセリウムイオンは電解またはオゾンにより、再び Ce^{4+} に戻り、連続的に除染を行うもので電解液により硫酸法、硝酸法及び両方を混合した方法である。特にクラッド中の難溶性の Cr^{3+} を可溶性の Cr^{6+} へ酸化して除去できるためクロム高含有クラッドに対する除染効果が高い。除染係数は100~10,000が得られ、Ti、ハステロイ-C、ジルカ

ロイ等の除染にも使用できる。BR-3 廃止措置での約25トンの汚染金属を除染した結果は、1回の処理容量約0.5トン（表面積20m²）を4～10時間で実施し、クリアランスレベル以下（0.1Bq/g以下）で再利用を可能にした。²¹⁾

REDOX法（硫酸 - セリウム（IV））は、JPDRの一次系統除染に適用して良い結果を得たことから解体後の機器除染にも浸漬化学除染として用いられた。²⁾

3.3 電気化学除染

電気化学的除染技術としては、既に一般に産業界で金属表面研磨技術として用いられてきた電解研磨技術が挙げられる。この方法では、比較的短時間に高い除染効果が得られるのが大きな特徴である。しかし電解研磨技術も化学的除染技術と同様、電解液に化学薬剤を用いるため放射性の廃液が発生する問題がある。また複雑な形状の除染対象物に対しては除染効果がそれほど上がらない場合もある。これに対しては、複雑形状物の除染も可能となるように、電解研磨除染技術にブラッシングのような物理的な作用を組み合わせた技術も開発されている。

ドイツのグンドレミンゲン発電所（KAB-A）の廃止措置では、解体金属（鋼材）を対象にFig.8に示すリン酸・電解研磨除染法を採用した。1トンの解体廃棄物を除染に対して処分廃棄物15kgである。一般にリン酸のリサイクルが課題であったが、Fig.9に示す方法を開発した。電解研磨における電気化学的反応は、リン酸中の溶出鉄濃度を一定の割合で増加させる。この鉄濃度が、100g/

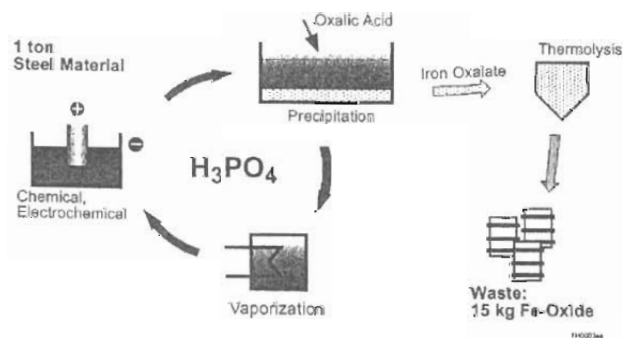


Fig.8 Electrochemical Decontamination with Phosphoric Acid ²²⁾

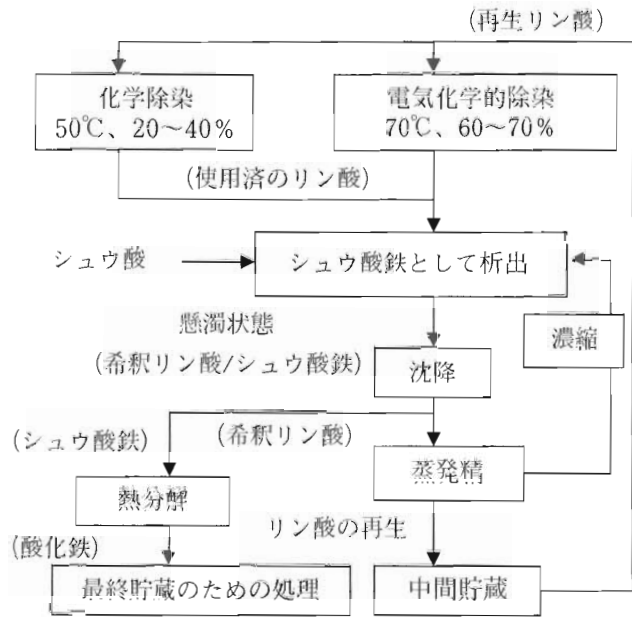


Fig.9 Electrochemical Decontamination and Regeneration of Phosphoric Acid (KRB-A, Germany) ⁴⁾

dm³を超えるとリン酸鉄の析出が起こり、除染効率が落ちる。このためリン酸は定期的に交換するか、再生されねばならない。リン酸の再生は、Fe²⁺とシュウ酸の反応によって行う。しかし鋼を電気化学的に除染するとリン酸中のFe³⁺濃度が高くなるため、シュウ酸鉄を沈殿させることができない。このため連続的に酸洗いでFe³⁺をFe²⁺にする必要がある。このようにしてFe²⁺の濃度を高くしてから、リン酸の電解溶液はシュウ酸水溶液と混合される。このとき放射能（主として⁶⁰Co）の大部分は鉄と一緒に沈殿し、電解液から分離される。この沈降分離されたシュウ酸鉄は乾燥後、最終処分までの中間貯蔵される。残りのリン酸は蒸発精留して除染前の濃度に戻される。³⁾

KAB-Aでは、この除染法等により約60%の無制限解放、また除染・溶融処理により制限付き約25%と合わせ金属全体の再利用率約85%を達成した。²³⁾

3.4 物理的除染

物理的除染法は、機械的あるいは熱的衝撃力や振動、破碎、剥離、溶融等の物理現象を応用するもので、高圧水洗浄や超音波洗浄、研磨材などを吹き付けるブラスト法などがある。一般に物理的除染では使用した水や研磨材などの二次廃棄物が

多くなることから最近では研磨材を再利用した方法が使われている。

3.4.1 高圧水洗浄

高圧水洗浄用ランスは高圧ポンプユニットとその付属品から構成され、ポンプは固定型または可搬型のガソリン及びディーゼルエンジン、モーター、蒸気タービンで駆動される。高圧水ジェットは表面洗浄に効果があることは判っており、原子力分野においてもルーズなまたは中程度の固着状態の汚染物除去に使われる。水圧は7~140Paで、流量は0.3~23dm³/sの範囲で使われるが、圧力35~70Pa、流量0.4~3 dm³/sの範囲が一般的である。噴射圧力を高くしても必ずしも洗浄、除染効果が上がらないということに留意すべきである。除染廃液は沈降分離により剥離片を除去し、その上澄液をろ過した後で再利用することで廃液の発生量を低減できる。この方法は、現位置での大型タンク、プール内壁除染にも有効である。⁴⁾

3.4.2 超音波洗浄

超音波は、機械的な縦波であり、長い間原子力以外の産業で表面が汚れた材料の洗浄に利用されてきた。特にこの超音波洗浄は、オイル、グリース、泥及びスケールの除去に効果的であり、多種多様な材質、大きさ、形状の除染対象物に適用された。このことから原子力分野でも最初に表面洗浄の目的で適用された方法の1つである。

この超音波洗浄法は、他の除染法を適用できない表面が複雑な形状の除染対象物に有効である。金属、ガラス及び各種のプラスチック部品の孔、ひび及び割れ目から汚れを除去するのに適してい

る。その一般的な使用例は、均一に汚染した道具及び小物類に対してであり、水を張った超音波洗浄槽に除染対象物を浸漬して行われる。化学除染と超音波洗浄の両方の効果を組合せ、水の代わりに除染剤を添加した溶液中で超音波洗浄する方法の開発、及び内部が汚染している除染対象物の外側に超音波発振器を設置して内部の汚染を除去する方法等もある。また可搬型の超音波発振器も考案されている。¹⁾

3.4.3 ブラスト除染

ブラスト除染は、研削材が空気又は水等の高速噴射流体により除染面を押し流される際に、表面汚染物を削る非常に効果的な除染法である。ブラスト法には、下記の方法があり、一般に大面積の除染対象物に対して作業効率が高いと評価されている。

- ①ドライブラスト法：キャリアに圧縮空気を使用する方法
- ②ウェットブラスト法：キャリアに高圧水を使用する方法
- ③ウェットエアブラスト法：圧縮空気を使用し、水と研削材のスラリー吹付方法

代表的な研磨剤には、ハード・メディアとして砂、金属小球、アルミ酸化物、ジルコニアなどが、ソフト・メディアとしてプラスチック小球、ドライアイスなどがある。ジルコニアは、特に、良く使われるアルミナに比べ研磨粒子が割れにくく繰り返し使用性能が良い。ブラスト材の種類と特徴をTable 5示す。^{23), 8)}

ドイツのヴェルガッセン発電所 (KWW) では、発電所内に2基の研磨材入りのブラスト除染設備

Table 5 Characterization of Blasting Materials ^{23), 8)}

研削材	研削性	モース硬度	汚染性	比重	形状	消耗性
珪砂	高	7	高	2.5	不定形	非常に大
鋼珠	高	7.5	高	7	球形	小
アルミナ	中	9	中	3.8	不定形	中
ジルコニア	高	12	中	6	球形	小
クルミ殻	無	2	中	0.8	不定形	中
ガラスビーズ	小	5~6	小	2.5	球形	小
プラスチック	無	—	小	1.2	円柱形	中

を設置し、解体物7,600トンの約55%を無制限解放している。このプラスト除染では、除染後のレベル $0.03\text{Bq}/\text{cm}^2$ 目標に研磨材に鉄グリッドを用い圧力8~10バール、プラストノズル速度200~250m/s、10~15kg(グリッド材)/分で行っている。その他、KWWは、大型機器等をスウェーデン Studsvik社に輸出し、約35%分をプラスト除染・溶融処理し、合計約85%のリサイクルを実現している。^{24), 25)}

3.4.4 溶融除染

溶融では、溶解過程で多くの放射性核種を均一にインゴットに封じ込めとともに、放射性核種をスラグ中に濃縮し、また粉塵等をフィルタに捕集できることから除染効果がある。溶融は、複雑な原型機器の形状から単純形状に変換する重要なステップであり、形状単純化によってクリアランス測定を容易にする。このように除染効果に加え、接近して表面測定することができない問題を解決する。¹⁾

揮発性で半減期30年の ^{137}Cs は、スラグ及び換気フィルタで捕獲除去される。また、ウラン等の汚染物では約99%の除染効果がある。(Table 6参照)²⁶⁾

EU諸国では、EC委員会の指針を参考に無制限と条件付きクリアランスレベルに区分して規制している。原子炉施設で主要な核種である ^{60}Co の場合、無条件で $0.1\text{Bq}/\text{g}$ に対し、溶融を前提とする条件付きでは $1\text{Bq}/\text{g}$ である。また、ウラン汚染の廃棄物の場合、無条件で $1\text{Bq}/\text{g}$ に対し、条件付き $10\text{Bq}/\text{g}$ である。これらの基準に基づき、EU諸国では、プラスト除染又はプラスト除染/溶融等により解体金属の再利用が進んでいる。²⁷⁾

4. 廃棄物処理センターでの機器除染・処理

スウェーデン、米国、ドイツ等では、解体撤去された機器等は、ISOコンテナ等の大型輸送容器に入れて列車、トレーラ、あるいは輸送船等により廃棄物処理センターに搬入される。化学除染、プラスト除染等と溶融処理の組み合わせで解体物のリサイクルが進められている。

スウェーデンの Studsvik社では、除染、細断及

Table 6 Paths of Radionuclides after Melting ²⁶⁾

核種	核種	核種の移行割合 (%)		
		金属	スラグ	ダスト
α 核種	$^{235,238}\text{U}$	1	99	
	^{241}Pu			
	^{241}Am			
	$^{231, 234}\text{Th}$			
	$^{234\text{m}}\text{Pa}$			
β ・ γ 核種	^{60}Co	88	11	1
	^{63}Ni	90	10	-
	^{90}Sr	<1	97	2
	$^{134,137}\text{Cs}$	<1	60	40
	$^{152,154}\text{Eu}$	4	95	1
	^{144}Ce	50	50	<1
	^{54}Mn	60	39	1
	^{65}Zn	36	12	52
	^{95}Zr	28	72	-
$^{103,106}\text{Ru}$	67	<1	33	

び溶融処理技術を取り入れた蒸気発生器(SG)等の大型機器等を含むリサイクル事業を展開している。除染には、1994年以前にはSODP除染法を用いていたが、現在では、二次廃棄物の発生量が少なく、除染が簡単なプラスト除染を取り入れている。最も頻繁に使用されるのが回転式研磨装置を用い鉄グリッド研磨材による除染である。インコネル600(高ニッケル-クロム-鉄合金)のSG伝熱管の内側は、除染の密度が比較的高いために現状では溶融による減容のみでリサイクルされていない。しかし、リサイクル率を向上させるために化学除染方法の検討が行われている。Studsvik社において、米国のEPRIはStudsvik社及びUKと共同で、SG伝熱管を対象に希フッ化ホウ素酸を用いたDFDX法による除染ループ試験を行っている。

このDFDXプロセスでは、Fig.10に示す電気化学的セルにより溶解液から二次廃棄物である金属残渣を回収することができる。その結果、非常に高い除染効果を得られ、また、二次廃棄物も従来のDFD法でのイオン交換樹脂の回収に比べ1/10に減少する。^{28), 29)}

米国のES社 (Energy Solution) は、オークリッジ処理工場 (旧DURATEK社) において、原子力施設の解体又は施設運転保守から発生した機器のリサイクルに向けての除染・溶融処理する処理施設を操業している。この工場での除染作業は、対象廃棄物に応じて主にブラスト除染 (鉄、スポンジ、ドライアイス) を、また化学除染も採用している。³⁰⁾

ドイツのSiempelkamp社は、ブラスト除染・溶融、及び再利用加工する専用工場を稼働し、すでに2万トン以上の処理実績を有する。溶融して生産したインゴットは、確認測定後に無条件クリアランスレベルであればインゴットで売却され、条件付きクリアランスレベル以下であれば二次溶融で生産したインゴットから廃棄物容器等に再加工され使用されている。^{26), 27)}

5. まとめ

最近の諸外国の廃止措置では、原子炉永久停止後の早期の解体が経済的であるとの評価が定着しつつある。米国の軽水炉メインヤンキー、ビックロックポイント、コネチカットヤンキー等の廃止

措置では、8年から10年間でサイト解放まで達成している。これらのプラントでの最初の重要な作業として、DFD法又はCORD法による一次系の機器配管周りの放射線レベルを下げるための系統除染が行われている。系統除染は、解体作業者の被ばく低減の観点から見ると早期解体を可能にし、長期の安全貯蔵はもはや必要性としていない。ドイツ、スペイン等でもCORD法等により系統除染を早期に実施している。我が国でも「ふげん」でのHOP法の採用、またBWR型炉でのT-OZON法による供用中除染の実績が報告されている。T-OZON法は、特に、二次廃棄物の発生量が少ないことから廃止措置への適用も期待されている。系統除染は、化学除染剤を用い、温度が90℃ から95℃ と高いため、系統の信頼性が確保できる早期に実施し、その際の除染液の漏洩対策にも留意する必要がある。

解体後の機器除染技術は、廃棄物低減及びリサイクルの観点から化学的、電気化学的及び物理的な多くの除染技術が研究開発されている。機器除染の場合それぞれの技術が長所短所を合わせ持っており、解体から生じる多種多様の廃棄物を1つの技術でカバーすることは難しい。むしろ、何種類かのものを用いてそれぞれの短所を互いにカバーする方法が考えられる。上記のCORD法、DFD法、T-OZON等は、機器除染にも十分に適用可能で実績を残している。化学又は電気化学除染では、特に、除染液のリサイクル及び二次廃棄物の低減化が重要である。また、研磨材を用いたブラスト除染は、二次廃棄物の処理・減容及び除染効果の観点から評価されている。諸外国では、原子力施設の解体機器あるいは廃棄物を受け入れる廃棄物処理センターが操業しており、特に、解体金属はクリアランス測定が容易な単純形状の物にブラスト除染、複雑形状の物にブラスト等/溶融除染によるリサイクルシステムが成立している。

参考文献

- 1) "Nuclear Decommissioning, Decontamination Techniques Used in Decommissioning Activities," A Report by NEA Task Group on Decommissioning (1999).
- 2) 安中秀雄 "JPDRの解体と除染技術" 原子力工

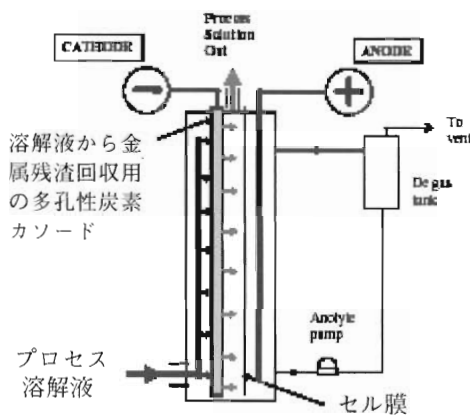


Fig.10 Schematic Block Diagram of DFDX Electrochemical Cell ²⁹⁾

- 業, 36[8], 65(1990).
- 3) "Decontamination and Decommissioning of Nuclear Facilities," IAEA-TECDOC-511(1998).
 - 4) Handbook on Decommissioning of Nuclear Installations EC, EUR 16211 EN(1995).
 - 5) Francisco Madrid Garcia, etc., "Chemical Decontamination for Decommissioning- The Jose Cabrera(Zorita)NPP," ANS.EVS.IAEA.OECD/NEA, Avignon, Sep.-Oct., 2008.
 - 6) Hakan Loretz, "The Barseback NPP-Decommissioning project," ANS.EVS.IAEA.OECD/NEA, Avignon, Sep.-Oct. 2008.
 - 7) Ron Morris, "Experience of chemical decontamination," Nuclear Eng. Inter, Aug.(2002).
 - 8) M.ENDA, etc., "Chemical and mechanical decontamination processes to minimize secondary waste," Decommissioning Challenges an Industrial Reality," ANS.EVS.IAEA.OECD/NEA, Avignon, Sep.-Oct. 2008.
 - 9) 辻 利秀, "軽水炉プラントの水化学、第3回水化学の基礎 - 酸化被膜特性" 日本原子力学会誌、Vol. 51, No. 5(2009).
 - 10) H.O.Bertholdt, S.L.Watson, "HP/CORD D UV, A New Decontamination Process for Decommissioning of Nuclear Stations," SPECTRUM'98(1998).
 - 11) Scott Watson, etc., "Striking the Right CORD: Decontamination for Decommissioning at Connecticut Yankee," Radwaste Magazine March/April 1999.
 - 12) Rick Reid, Stanly Kupka, Braian Clark, "DFD Experience Including Big Rock Point, Maine Yankee and Trojan Nuclear Stations," EPRI/NEI Decommissioning Workshop, Dec.1998.
 - 13) David Bradbury etc., "The EPRI DFD Process - Decontamination Retired Component-sand Reactor Coolant Systems Following Plant Shutdown," Radwaste Magazine (Sep./Oct.2001).
 - 14) 西村 弘、他「ふげん」の今後の活用、サイクル機構技報 No.1 12/1998.
 - 15) 森田 聡、III原子炉冷却系の系統除染結果、ふげんデコミニュース第3号2004年.
 - 16) 東芝レビュー 2003年3月.
 - 17) 原子力施設におけるクリアランス制度の整備について、(平成16年12月13日) 総合エネルギー調査会・保安部会 廃棄物安全小委員会.
 - 18) J Hanulik, etc., "Chemical decontamination for decommissioning with application of DECOHA technology on metal, concrete and brickwork," C436/040 IMech (1992).
 - 19) Michel Klein, Andre Rahier, "Chemical Decontamination MEDOC Using Cerium and Ozone, From Laboratory and Pilot Tests to Industrial Operations," WM'00 (2000).
 - 20) R.Kohli, J.Hanulik, "An innovative chemical decontamination system for free release," SPECTRUM'98 (1998).
 - 21) M. Lindberg, H. Sterner, "Free release decontamination of SG tubing from a VVER (Greifswald)," ICONE 5(1997).
 - 22) Norbert Eickelpasch, etc., "Lessons Learned by Dismantling, Two German BWRs," Radwaste magazine, Jan. 1997.
 - 23) 「原子力発電プラントの水化学管理と基盤技術」日本原子力学会誌 (1991).
 - 24) Thomas Schmidt, etc., "Handling of radioactive material in relation to the dismantling of the nuclear power plant Wurgassen" KONTEC (2003).
 - 25) Jorg Viermann, etc., "Recycling of scrap metal from the deconstruction of the Wurgassen nuclear power plant," KONTEC (2003).
 - 26) U.Quade, W.Muller, "Recycling of radioactively contaminated metal scrap by melting," IAEA-CN-143/16, (2006).
 - 27) 宮坂靖彦 "スウェーデン及びドイツにおけるウラン廃棄物の処理処分の現状" デコミッションング技報、第37号 (2008年3月).
 - 28) Lena Bergstrom, "Volume Reduction of Large Component-Minimising Waste Volume by Maximising Recycling," Decommissioning Challenges, Sep.28 2008.
 - 29) Christopher J.Wood, etc., "Decontamination and Recycling of Material from Retired Components," DD&R 2005, Aug. 2005.
 - 30) DURATEK社提供のパフレット.

RANDEC's Capability

Radioactive Waste Management and Nuclear Facility Decommissioning Technology Center (RANDEC) has contributed to the establishment of decommissioning technology, and promoted the investigation on radwaste treatment and disposal business including selection of disposal places for radwaste from RI facilities, institutes etc.

The capability and service of RANDEC are ;

to implement decommissioning research, development and investigation.



to provide technical information on decommissioning.



to train for decommissioning.



to investigate radwaste treatment and disposal business including site selection of disposal place for radwaste from RI facilities, institutes etc.



to inform and enlighten the public about decommissioning and radwaste treatment and disposal business.

© デコミッションング技報 第40号

発行日 : 平成21年10月15日

編集・発行者 : 財団法人 原子力研究バックエンド
推進センター

〒319-1107 茨城県那珂郡東海村豊白一丁目3-37
Tel. 029-283-3010
Fax. 029-287-0022

ホームページ : <http://www.randec.or.jp>
E-mail : decomi@randec.or.jp