

第4章

放射性廃棄物乾式 表面除染技術への応用

4-1	プラズマを用いた除染技術とその特長	32
4-2	酸化皮膜の除去と推奨処理条件	33
4-2-1	適用可能な酸化皮膜種類	
4-2-2	減圧アークの推奨処理条件	
4-3	Co-60含有腐食生成物皮膜に対する除染性能	34
4-3-1	配管形状小試験片を用いた場合における評価	
4-3-2	Coの汚染形態に対する依存性	

4-1 プラズマを用いた除染技術とその特長

原子力施設などで行われる除染は、様々な目的や対象があり、これらに合わせ多くの種類がある⁽¹⁾。このうち、主な既存の技術は、化学除染液を使用するものと、プラスト処理によるものがある。比較的新しい除染技術として、レーザーを用いた方法⁽²⁾⁽³⁾やプラズマを用いた方法⁽⁴⁾⁽⁵⁾がある。

原子力発電所の冷却水系統に化学除染液を循環させ行う系統除染は、数週間に及ぶ大規模な除染工程であるが、その効果も大きい。しかし、除染工程によって発生する二次放射性廃棄物として化学除染液が発生するという課題が指摘されてきていた。この様な中で、炭酸ガスと水に分解できるCORD法⁽⁶⁾などのように二次廃棄物を低減した除染方法も開発されており、浜岡原子力発電所などに適用されている⁽¹⁾。一方、プラスト除染に関しては、美浜発電所における蒸気発生器への適用例がある⁽¹⁾。プラスト除染に対する二次廃棄物低減対策としては、耐磨耗性に優れたプラスト材を用い、除染後に付着物を除去後、再利用したり、氷、ドライアイスといったプラスト材を用いた除染方法が開発されたりしている⁽⁷⁾。これらの除染技術に関しては、その技術の向上は目覚ましい⁽¹⁾が、依然として二次廃棄物の低減が課題になっている。

プラズマを用いた除染技術は、化学除染液やプラスト材が必要ないため潜在的に二次廃棄物を低減できる、熱的な作用により除染を行うため比較的处理対象の性状を選ばない、発生方法が多様であるので除染原理として様々な種類がある、といった特長がある。図4-1に種々のプラズマを用いた除染の分類を示す⁽⁸⁾。高温で熱的に除染する方式のものは、処理速度が速い反面、対象物への熱負荷などが大きく、例えば、表面組織の変化や凹凸などの影響が現れると予想される。一方、プラズマ中のラジカルを利用するような方法は、プラズマの重粒子(中性の分子や原子、イオン)の温度が相対的に低く、処理速度が遅いが、対象物への熱負荷が少ない。

減圧アークは、図4-1における気中アーク法の一種で、減圧下で処理対象を陰極(逆極)とした直流の移行形

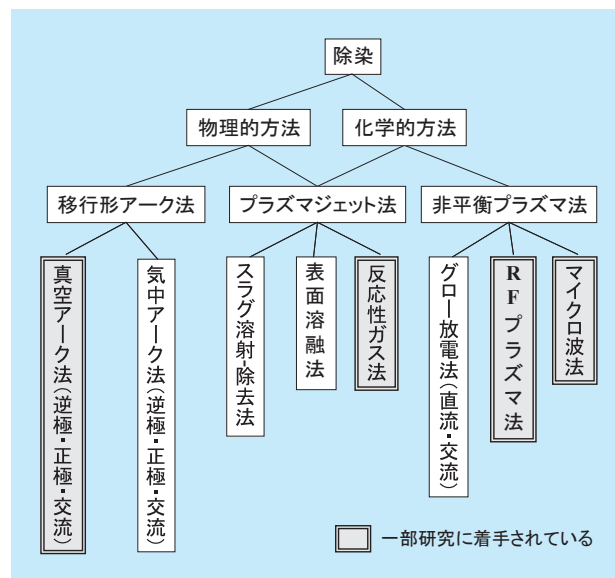


図4-1 プラズマを用いた表面除染技術の分類

アークプラズマを指す。図4-2(a)に減圧アークの写真を示す。その内部に輝度が高い陰極点が観察できる。また、図4-2(b)に減圧アーク除染原理の模式図を示す。表面に酸化皮膜を持つ金属基板を陰極とすると、酸化皮膜を選択的に溶融・蒸発させ、熱的に効率良く除去する特長を持つことが古くから知られている⁽⁹⁾。陰極点が酸化皮膜を求めて動く現象が起こる理由は、酸化皮膜に覆われている箇所からは電子が効率良く放出されるため、陰極点がここを探し動き回るからと推定されている⁽⁹⁾。一方、酸化皮膜で覆われた陰極からの電子の放出のメカニズムに関しては様々なものがあり⁽¹⁰⁾、また、仕事関数の厳密な測定が困難であることなどからその詳細は不明であると考えられる。また、酸化皮膜を除去するのが得意な減圧アークであるが、酸化皮膜が除去された後の金属基板上に対しても形成し得る。このため、母材金属中に存在するコバルト(Co)も、その母材金属と共に溶融・蒸発、除去することができる。ただし、電子放出のメカニズムは、酸化皮膜で覆われた金属基板を陰極としている場合と酸化皮膜が除去された金属基板を陰極としている場合とで異なっていると考えられる⁽¹⁰⁾。

本章では、減圧アークが、原子力発電所の高温・高圧の冷却水環境下で形成される放射性腐食生成物皮膜の乾式表面除染技術へ適用できることを示す。

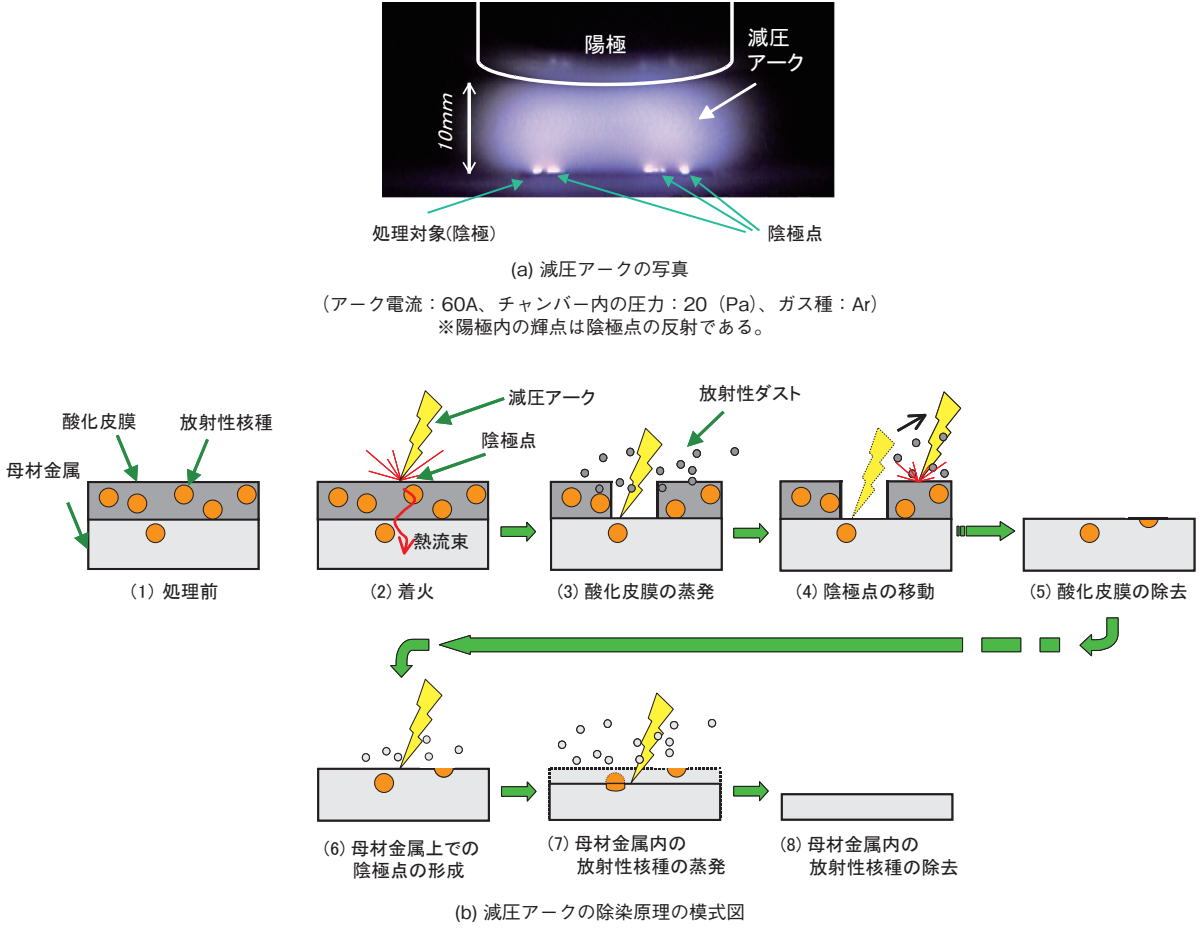


図4-2 減圧アークとそれを用いた除染技術の原理

4-2 酸化皮膜の除去と推奨処理条件

4-2-1 適用可能な酸化皮膜種類

供試試料は、Co-60 を含む腐食生成物皮膜試験片とした。この他に、実験の目的に合わせ、黒皮付き炭素鋼鋼

板、非放射性 Co 付き熱酸化皮膜試験片を併用した。

はじめに、減圧アークを腐食生成物皮膜に適用しこの除去を試みた。

実験後の試験片の写真例、SEM 写真例を処理条件と共に図 4-3 に示す。図に示すように除去後の試験片の表面には、何れも腐食生成物特有の黒色が消失しており、

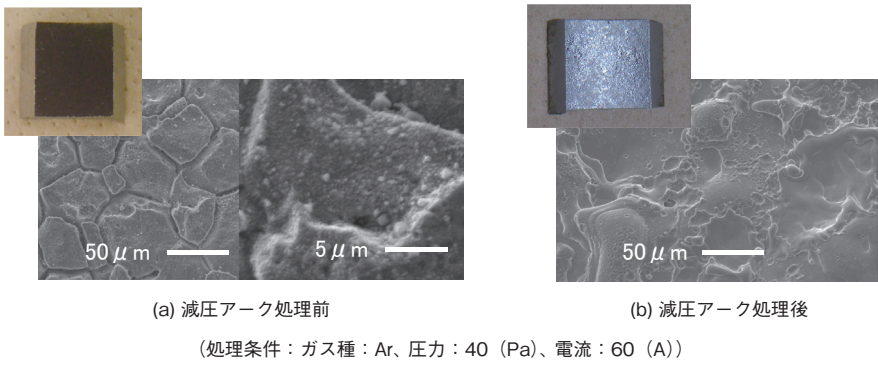


図4-3 減圧アークの適用前後の試験片の写真およびSEM画像

表4-1 酸化皮膜の除去を確認した模擬放射性廃棄物試験片

形状	平板 10×20mm～100mm角 配管 φ39×100mm～φ114×200mm
母材の金属材質	SUS304、SUS316L、SUS430 インコネル 600、S50C、SS400
酸化皮膜の種類 (組成、膜厚)	Co-60含有腐食生成物皮膜 (Fe ₂ O ₃ 、FeCr ₂ O ₄ など、1～2μm) 熱酸化皮膜(FeCr ₂ O ₄ など、1～2μm)、黒皮(Fe ₃ O ₄ 、7μm)

金属光沢が観察された。SEM 写真において、試験片表面の様相を除去前後で比較すると、除去後には試験片表面の数ミクロンオーダーの結晶粒界が消失している。その他の X 線回折法、オージェ電子分光分析などの表面分析結果を併せ、腐食生成物が除去されたことが確認できた。

当研究所において、酸化皮膜除去の実績がある試験片を表 4-1 にまとめる。

4-2-2 減圧アークの推奨処理条件

減圧アークの処理条件としては、減圧アークのガス種類などがある。これらは、処理速度などに影響を及ぼす。これらのパラメータに対して、実験的に見出した推奨処理条件を表 4-2 に示す⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。例えば、Co 除去率の減圧アークのガス種に対する依存性としては、腐食生成物皮膜を除去した時点で比較すると、圧力 50Pa 程度では、いずれのガスの場合も大差なかった。しかし、その後、減圧アークの繰返し処理により母材金属表面に残留した Co を除去する際には、H₂ が最も処理速度（ここでは、単位クーロン量当たりの Co 除去率）が速く、Ar はほぼ同程度であった。単位クーロン量あたりの母材金属の蒸発量を高くできたガス種が同じクーロン量に対してよ

表4-2 減圧アークの推奨処理条件

項目	推奨条件	備考
ガス種	Ar	Arに加え、エンタルピーが高いなどの特長を持つH ₂ 、Coとの化学反応による除染効果が期待されるCOとCF ₄ /O ₂ 混合ガスを選択した。H ₂ が最も処理速度が速く、Arはほぼ同程度である。ただし、不活性であるため、工学的にはArの方が使い易い。
電流	60A	除染性能は40～60Aの範囲では電流に依存しない。処理量はほぼクーロン量に比例するので、電流値が大きい方が処理時間を短くできる。
電極-試験片距離	1～20mm	短い方が、減圧アークの陰極点が極端に分散せず、集中した処理領域が得られる。
雰囲気ガスの圧力	50Pa	低圧の方が陰極点がよく動き回り、処理速度が速い。

り高い Co 除去率を達成できた。ガスと Co との化学反応による除染効果は確認できなかった。

4-3 Co-60 含有腐食生成物皮膜に対する除染性能

4-3-1 配管形状小試験片を用いた場合における評価

放射性廃棄物には、配管形状の廃棄物も多く発生する。例えば、軽水炉の解体廃棄物では、金属廃棄物のうち約 2 割が配管形状であり、このうち 100A (φ 114) 以上の内径のものが 9 割以上を占める。特に内径が小さい配管の場合、陽極の掃引などと共に、除染時に発生するダストが既に処理済みの表面に付着する再汚染などの懸念がある。

そこで、Co-60 を含む腐食生成物をその内面に持つ配管形状試験片 (内径 φ 39 × 100mm) を選択し、これを用いて Co-60 に対する除染性能を評価した⁽¹³⁾。この時の処理条件は、表 4-2 にまとめた推奨処理条件を参照した。陽極は、配管内面を広く処理できる様、掃引した。

図 4-4 に減圧アーク繰返し処理時における Co 除去率の向上の様相を示す。図内の括弧付きの番号は、図 4-2 (b)中の番号に対応する。腐食生成物皮膜除去時における Co 除去率は 60% 程度であった。この理由は、処理前の試験片の母材金属表層内に試験片全体の約 30% の Co が含まれていることと、酸化皮膜除去時に酸化皮膜内の Co の一部が母材金属内に移行し残留するためである⁽¹⁴⁾。すなわち、酸化皮膜内の Co-60 に対する割合としては、85%程度が除去でき、15%程度が母材金属内に移行したこととなる。この後、減圧アークの繰返し処理により Co 除去率は向上し、最終的に Co 除去率 90% 以上を達成することができた。

配管の形状としては、この φ 39 × 100mm に加え、非放射性 Co を含む熱酸化皮膜をその内面に付与した φ 114 × 200mm の試験片によっても Co 除去率を評価し、約 90% の除去率を確認した。処理過程では、一度除染された箇所が別の箇所の処理時に再汚染されている可能性があるが、再汚染された Co も含めて除去でき、最終的に約 90% の除去率を達成できたことが確認できた。

また、この時に要した電荷量は、Co-60 含有腐食生成

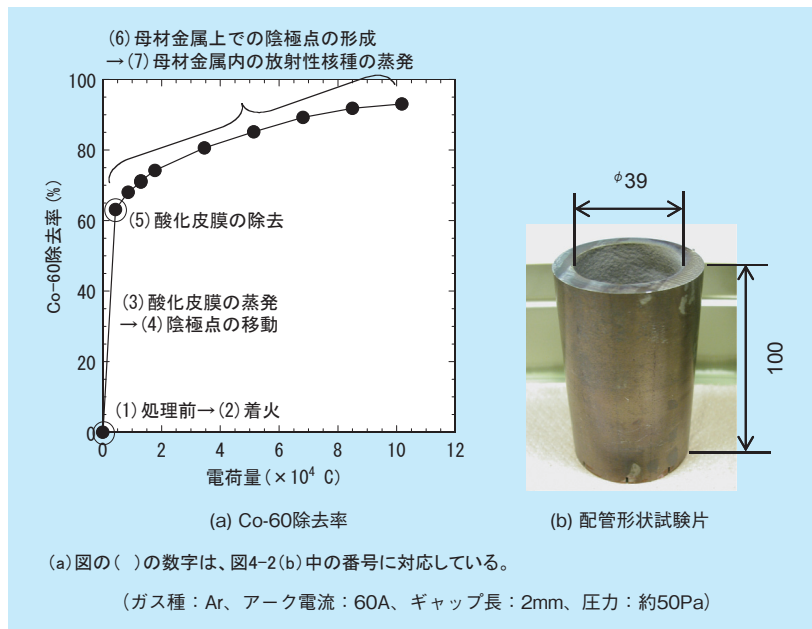


図4-4 Co-60含有腐食生成物皮膜付き配管に対する減圧アークの除染性能

物皮膜試験片に対して、単位面積あたり $310\text{A} \cdot \text{s}/\text{cm}^2$ であった。これは $1 \sim 2\text{cm}$ 角の平板形状の小試験片の場合の $400\text{A} \cdot \text{s}/\text{cm}^2$ に比較して、同等もしくは小さくなる方向であった。これらの結果から、本除染技術の大型廃棄物への適用に際して、処理に必要な電荷量は、小試験片に対して必要な電荷量から予測できると考えられる。

4-3-2 Coの汚染形態に対する依存性

例えば、腐食生成物皮膜などの場合のように、Coが酸化皮膜内に深く分布している場合と、定期点検などで使用する工具などのようにその表面のみが汚染されている場合では、放射性核種による処理対象の汚染の状況は顕著に異なっている。そこで、これらの相違を想定し、Coの汚染形態が除染性能に及ぼす影響を調べた⁽¹²⁾。

この結果、図4-5に示す様に、酸化皮膜内でCoが分布している深さが母材金属との境界付近まで深く分布している汚染形態であると、酸化皮膜除去時の母材金属表面へのCoの移行が顕著になることがわかった。ただし、このような場合でも、図4-4に前述した様に、母材金属表面内のCoを除去できることから、最終的に処理可能であると判断できる。

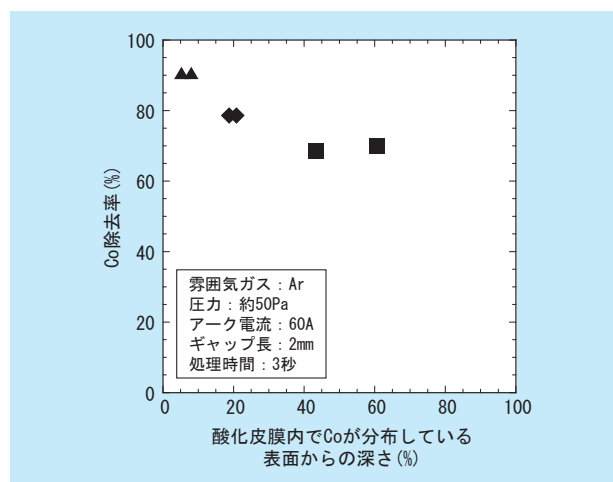


図4-5 減圧アーク除染性能の酸化皮膜内のCo分布深さに対する依存性 (酸化被膜の厚みは $1 \sim 2\mu\text{m}$)

参考文献

- (1) 社団法人 日本原子力学会 編、原子炉水化学ハンドブック、コロナ社、(2000)
- (2) 上原実、伊藤俊行、豊田正三郎、岩崎行雄、原邦男、宮尾英彦：B205 パルスレーザーによる表面除染、日本機械学会第7回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集、p341 (2000)
- (3) 小川竜一郎、福井康太、谷本健一：レーザー除染技術の開発、サイクル機構技報、vol. 15、No. 6、p59 (2002)
- (4) 中澤修、田代清、須藤収、「真空アーク放電による除

- 染技術の開発」、日本原子力学会「2000年秋の大会」、J5 (2000)
- (5) M.Suzuki, H.F.Windarto, T.Matsumoto, K.Sakagishi, 'Microwave plasma decontamination of radioactive material operated at atmospheric pressure', 15th International Symposium on Plasma Chemistry, II-623 (2001)
- (6) 山内章義、高木敏夫、佐藤義雄、加藤裕明、藤田剛：浜岡原子力発電所1号機における原子炉再循環系システム化学除染Ⅱ－除染方法と適用結果－、日本原子力学会「1994年秋の大会」、Q52 (1994)
- (7) 谷本健一、照沼誠一：核燃料サイクル施設のデコミッショニング技術に関する研究開発、デコミッショニング技報、vol. 18、No. 11、p37 (1994)
- (8) 足立和郎、天川正士、古川静枝、藤原和俊、神戸弘巳：プラズマを用いた放射性廃棄物表面除染技術に関する調査、電力中央研究所調査報告、W00030 (2001)
- (9) 安藤弘平、長谷川光雄：溶接アーク現象 増補版、株式会社産報、(1962)
- (10) 武田進：気体放電の基礎、東京電機大学出版局、(1990)
- (11) 古川静枝、足立和郎、藤原和俊、天川正士、神戸弘巳：プラズマを用いた放射性廃棄物の表面除染技術の開発－減圧アークを用いた非放射性腐食生成物の除去に関する基礎検討－、電力中央研究所研究報告、W01004 (2001)
- (12) 古川静枝、神戸弘巳、天川正士、足立和郎：プラズマを用いた放射性廃棄物の表面除染技術の開発（その7）－減圧アーク乾式表面除染技術における除染能力の総合評価－、電力中央研究所研究報告、H08001 (2007)
- (13) 古川静枝、神戸弘巳、天川正士、足立和郎：プラズマを用いた放射性廃棄物の表面除染技術の開発（その6）－減圧アーク除染技術の配管形状廃棄物への影響－、電力中央研究所研究報告、H05012 (2006)
- (14) 神戸弘巳、藤原和俊、足立和郎、古川静枝：プラズマを用いた放射性廃棄物の表面除染技術の開発（その3）－減圧アークによる放射性腐食生成物の除染性能－、電力中央研究所研究報告、T02026 (2003)