DOI:10.11484/jaea-technology-2021-038

# レーザークリーニングによる 鋼材表面塗装膜の分離・除去

Separation/Removal of Steel Surface Coating Film by Laser Cleaning

山根 いくみ 高橋 信雄 澤山 兼吾 西脇 大貴 松本 孝志 小川 潤平 野村 光生 有馬 立身

Ikumi YAMANE, Nobuo TAKAHASHI, Kengo SAWAYAMA, Hiroki NISHIWAKI Takashi MATSUMOTO, Jumpei OGAWA, Mitsuo NOMURA and Tatsumi ARIMA

核燃料・バックエンド研究開発部門 人形峠環境技術センター 廃止措置・技術開発部

Department of Decommissioning Project and Technology Development
Ningyo-toge Environmental Engineering Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

February 2022

**Japan Atomic Energy Agency** 

日本原子力研究開発機構



本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)は、 下記までお問い合わせ下さい。

なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<a href="https://www.jaea.go.jp">https://www.jaea.go.jp</a>)より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission.

Availability and use of the results of this report, please contact

Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub,

Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2022

レーザークリーニングによる鋼材表面塗装膜の分離・除去

日本原子力研究開発機構 核燃料・バックエンド研究開発部門 人形峠環境技術センター 廃止措置・技術開発部

山根 いくみ,高橋 信雄,澤山 兼吾,西脇 大貴, 松本 孝志,小川 潤平,野村 光生,有馬 立身\*

(2021年12月3日受理)

人形峠環境技術センターの設備解体撤去による解体物の発生予想量は全体で約13万トンである。 そのうち放射性廃棄物でない廃棄物(以下 NR: Nonradioactive waste という)となる非放射性廃棄物は約80%である。しかしながら、この NR 対象となる鋼材の一部には汚染された可能性を否定できないものがあり、これらについては汚染が疑われる部分の表面塗装膜を分離・除去させた後、搬出のためのサーベイを実施してから NR としている。

現在の分離・除去方法ではグラインダー等の回転研磨工具による手作業を採用しているが、この方法は粉塵の飛散と吸入防止のためのグリーンハウスの設置や作業員のタイベックスーツと全面マスクの着用を必要とする。このため、分離・除去方法のさらなる改良による作業の短時間化(低コスト化)、作業員への負荷低減、そして、過剰な研磨による二次廃棄物発生の抑制が望まれている。

そこで本研究では、工事現場等で塗装膜分離・除去に使用されるレーザークリーニング技術に着目した。NR 対象物の塗装膜分離・除去技術の向上を目的とし、レーザークリーニング装置を用いた NR 鋼材表面塗装膜の分離・除去性能評価、高速度カメラによる塗装膜飛散挙動の観測と塗装膜回収方法の検討、鋼材表面の粉体に対するレーザー分離・除去性能評価、鋼材表面上のウラン化合物の熱力学的評価を行った。

またこれらに基づいて、今後のレーザークリーニング技術の導入による実作業への適合性についても検討して今後の展開について整理した。

本研究は日本原子力研究開発機構と九州大学との共同研究に基づいて実施した。

人形峠環境技術センター:〒708-0698 岡山県苫田郡鏡野町上齋原 1550

\* 九州大学大学院

i

#### Separation/Removal of Steel Surface Coating Film by Laser Cleaning

Ikumi YAMANE, Nobuo TAKAHASHI, Kengo SAWAYAMA, Hiroki NISHIWAKI, Takashi MATSUMOTO, Jumpei OGAWA, Mitsuo NOMURA and Tatsumi ARIMA\*

Department of Decommissioning Project and Technology Development,
Ningyo-toge Environmental Engineering Center,
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development,
Japan Atomic Energy Agency
Kagamino-cho, Tomata-gun, Okayama-ken

(Received December 3, 2021)

We have dismantled uranium enrichment facilities in Ningyo-toge Environmental Engineering Center since their operation finished in 2001, and the total amount of metallic wastes is estimated to be about 130 thousand tons. Eighty percent of them can be disposed as nonradioactive waste (NR), but there are some steel parts possibly uranium-contaminated.

We need removing painted surface of such steels and radiologically surveying to dispose them as NRs. Though painted surfaces have been conventionally removed through hand working with grinders, this manual work requires installation of green house, protective clothing, and full-face mask, in order to prevent dispersion and inhalation of airborne dusts. We desire further developments of surface cleaning techniques to reduce time, cost, workload, and secondary waste generation caused by excessive grinding.

Therefore, in this study, we focused on the laser cleaning technology used for the separation and removal of paint films at construction sites.

In order to improve the coating separation and removal technology for NR objects, we evaluated the coating separation and removal performance of NR steel surface by laser cleaning system, observed the coating scattering behavior by high-speed camera and investigated the coating recovery method, evaluated the laser separation and removal performance of steel surface powder, and thermodynamically evaluated the uranium compounds on steel surface.

We additionally evaluated the feasibility of laser cleaning techniques in our works basing on these results, and discussed future work plans for further developments of laser cleaning techniques.

Keyword: Decommissioning, Laser Cleaning, Nonradioactive Waste

<sup>\*</sup>Kyushu University

# 目次

1.	は	<u> :</u>
2.	対	象試料及び試験装置1
3.	固	<b>E式及びハンディ式レーザークリーニング装置を用いた塗装膜の分離・除去</b>
	性創	€評価2
	3.1	固定式レーザーの塗装膜分離試験2
	3.2	ハンディ式レーザーの塗装膜分離試験3
	3.3	固定式とハンディ式の比較4
4.	高	速度カメラによる塗装膜飛散挙動の観測と塗装膜回収方法の検討4
	4.1	試験方法
	4.2	照射角度 $0^\circ$ での塗装膜飛散挙動の観測 $\cdots 5$
	4.3	照射角度 $45^\circ$ での塗装膜飛散挙動の観測 $\cdots 5$
	4.4	照射方法及び塗装膜回収方法の検討
5.	塗:	表膜表面に付着した粉体に対するレーザーの分離性能評価 ············5
	5.1	試験方法
	5.2	照射試験結果と分離性能評価6
6.	錮	才表面上のウラン化合物の熱力学的評価 ······6
7.	ま	± &)7
謝	辞	8

# Contents

1.	Intr	oduction ······1					
2.	Target sample and test equipment1						
3.	3. Evaluation of coating film removal performance using fixed and handy						
	las	er cleaning equipment ······2					
	3.1	Fixed laser coating film separation test2					
	3.2	Handy laser coating film separation test					
	3.3	Comparison of fixed type and handy type4					
4.	Obs	ervation of coating film scattering behavior with a high-speed camera and					
	ex	xamination of coating film recovery method ······4					
	4.1	Test method · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·					
	4.2	Observation of coating film scattering behavior at an irradiation					
		angle of 0 ° · · · · · · · · · · · · · · · · · ·					
	4.3	Observation of coating film scattering behavior at an irradiation					
		angle of 45 °5					
	4.4	Examination of irradiation method and coating film recovery method5					
5.	Evaluation of laser separation performance for powder adhering to the						
	coa	ting film surface5					
	5.1	Test method5					
	5.2	Irradiation test results and separation performance evaluation6					
6.	The	rmodynamic evaluation of uranium compounds on the surface of steel6					
7.	. Summary7						
Acl	know	ledgments8					

# 表リスト

Table	2.1	試験試料リスト9
Table	2.2	試験装置の種類及び性能9
Table	3.1	固定式及びハンディ式の特徴10
Table	6.1	実鋼材の元素構成比10
		Table list
Table	2.1	Test sample list · · · · · 9
Table	2.2	Type and performance of test equipment9
Table	3.1	Features of fixed type and handy type10
Table	6.1	Elemental composition of actual steel10

# 図リスト

Fig.	2.1	実鋼材(固定式)11
Fig.	2.2	TP(固定式) 11
Fig.	3.1	H 鋼平面部(固定式, 直角) · · · · · · 11
Fig.	3.2	H 鋼アール部(固定式, 直角)
Fig.	3.3	H 鋼アール部(固定式, 45°)11
Fig.	3.4	電線管(固定式, 直角)12
Fig.	3.5	電線管(固定式, 回転)
Fig.	3.6	縞鋼板(固定式, 直角)12
Fig.	3.7	溶接部(固定式, 直角)12
Fig.	3.8	H 鋼平面部(ハンディ式) · · · · · · · · · 13
Fig.	3.9	H 鋼アール部(ハンディ式)13
Fig.	3.10	H 鋼アール部(ハンディ式: 熟練者) 13
Fig.	4.1	試験方法の概念図13
Fig.	4.2	実鋼材, 照射角度 0°
Fig.	4.3	TP, 照射角度 0° ······14
Fig.	4.4	実鋼材, 照射角度 45°14
Fig.	4.5	TP, 照射角度 45° ············14
Fig.	5.1	レーザー照射前後の TP 表面の様子15
Fig.	5.2	レーザー照射前後のスペクトル図
Fig.	6.1	U-F 系状態図 ······16
Fig.	6.2	Fe-F 系状態図 ·······16
Fig.	6.3	U-O 系状態図 ···········17
Fig.	6.4	Fe-O 系状態図 ·········17
Fig.	6.5	低酸素分圧(0 atm)時の平衡計算
Fig.	6.6	高酸素分圧(0.21 atm)時の平衡計算18

# Figure list

Fig.	2.1	Actual steel material (fixed type)11
Fig.	2.2	Test piece (fixed type)
Fig.	3.1	H-steel flat surface (fixed type, right angle)
Fig.	3.2	H-steel rounded part (fixed type, right angle)11
Fig.	3.3	H-steel rounded part (fixed type, $45^{\circ}$ ) $000000000000000000000000000000000000$
Fig.	3.4	Steel pipe (fixed type, right angle)
Fig.	3.5	Steel pipe (fixed type, rotate)
Fig.	3.6	Striped steel plate (fixed type, right angle)12
Fig.	3.7	Welded part (fixed type, right angle)12
Fig.	3.8	H-steel flat surface (handy type)13
Fig.	3.9	H-steel rounded part (handy type)
Fig.	3.10	H-steel rounded part (handy type: expert)
Fig.	4.1	Conceptual diagram of test method
Fig.	4.2	Actual steel material, irradiation angle $0^{\circ}$
Fig.	4.3	Test piece, irradiation angle $0^{\circ}$
Fig.	4.4	Actual steel material, irradiation angle $45^{\circ}$
Fig.	4.5	Test piece, irradiation angle $45^{\circ}$
Fig.	5.1	State of TP surface before and after laser irradiation
Fig.	5.2	Spectral diagram before and after laser irradiation
Fig.	6.1	U-F system phase diagram · · · · · · 16
Fig.	6.2	Fe-F system phase diagram · · · · · · · 16
Fig.	6.3	U-O system phase diagram · · · · · · · 17
Fig.	6.4	Fe-O system phase diagram
Fig.	6.5	Equilibrium calculation at low oxygen partial pressure (0 atm)18
Fig.	6.6	Equilibrium calculation at high oxygen partial pressure (0.21 atm) ········· 18

This is a blank page.

#### 1. はじめに

人形峠環境技術センターでは、使命を終えた製錬転換施設や濃縮工学施設、ウラン濃縮原型プラントを対象として施設設備の解体撤去を進めている。施設設備を解体することで様々な形状の解体物や廃棄物が発生するが、大部分は非放射性(以下 NR: Nonradioactive waste という。)であり、特に金属が多い。NR 対象物の鋼材の多くは表面に塗装が施してあるが、汚染の履歴を否定できない対象物については、該当箇所の塗装膜を分離・除去し搬出サーベイ後に管理区域外へ搬出している。

現行の塗装膜分離法では、グラインダー等回転工具を用いているが、粉塵の飛散及び吸入防止のためグリーンハウス内でタイベックスーツや全面マスク等の保護具を装着する必要があるため、夏季には高温環境下での作業となり、作業員に相当な負荷がかかっている。また、鋼材の形状に応じた工具の選定や、装備の装着、ハウス設営など塗装膜分離・除去作業に時間を要している。その他、工具形状の制限により、工具の刃先が届かない複雑形状箇所の研磨が難しいことや、粉塵対策の装備が二次廃棄物として発生するなど問題となっている。

レーザークリーニング技術は、近年工事現場等で使用されるなど普及が広がっている技術である。レーザークリーニング装置には固定式とハンディ式の二種があり、固定式は、照射装置を固定して光学的にレーザーを曲げることにより一定範囲にレーザーを照射する仕組みとなっており、対象が平板の場合、レンズから対象の距離が固定されていることで焦点距離の確保が容易であることが特徴である。他方、ハンディ式レーザークリーニング装置は、照射装置が可動式となっているもので、対象の状況を確認しながら様々な角度からレーザーを照射することで、現行法では工具の刃先が届かず分離が困難であった箇所の塗装膜分離が期待できる。そこで、本研究ではNR処理技術の発展を目的として、NR鋼材表面塗装膜の分離・除去性能評価、高速度カメラによる塗装膜飛散挙動の観測、鋼材表面の粉体に対するレーザー分離・除去性能評価、鋼材表面上のウラン化合物の熱力学的評価の4試験を行った。

#### 2. 対象試料及び試験装置

本章で使用した試料を Table 2.1 に、試験装置を Table 2.2 に示す。本試験では固定式 3 種、ハンディ式 1 種の計 4 種の装置を使用した。固定式レーザーでは真上から照射した。

なお、本試験に使用できる実鋼材は形状が単純な平板に限られていたため、本試験では模擬鋼材(以下 TP: Test piece という。)を作成し、試験した。形状は、実鋼材との比較のための平板のほか、従来法では分離作業が困難な試料として H 鋼、電線管及び縞鋼板を使用した。また、塗料は、実鋼材に使用した塗料が物質規制により廃盤となっていたため、TPの塗装は相当品を使用した。塗装厚みは実鋼材、TPのいずれの試料においても  $100\pm20~\mu m$  程度であり、表面粗さ Ra は  $0.13\pm0.4~\mu m$  であった。

なお、塗装からの期間の違いや、成分の違いによる影響が懸念されたため、事前試験とし

て実鋼材及び同形状の平板 TP に対して照射試験を行った。Fig. 2.1, 2.2 に、平板の実鋼材及び TP の分離状態を示す。目視観察の結果 Fig. 2.1 のように鋼材表面が露出し、塗装膜は完全に分離した。一方 TP は、Fig. 2.2 のように薄くなった塗装膜が部分的に残存する様子を観察した。これは、実鋼材と比較して今回作成した TP は、作成からの期間が短く、塗装が十分に乾燥できておらず、溶剤の蒸発等でエネルギーを余分に使用したことなどが考えられる。本結果より、本試験の新しく作成した TP を使用した試験で分離できるとした形状は、実鋼材でも分離できるものとみなした。

3. 固定式及びハンディ式レーザークリーニング装置を用いた塗装膜の分離・除去性能評価レーザークリーニング装置は、工事現場等で塗装膜の分離・除去に使用される技術であるが、原子力分野における使用は普及していない。そこで本章では人形峠環境技術センターで使用する NR 鋼材表面塗装膜に対する市販のレーザークリーニング装置の分離・除去性能を評価した。

本試験ではハンディ式や固定式で分離・除去試験をした試料を目視で観察し、それぞれの 塗装膜分離・除去性能を評価した。

## 3.1 固定式レーザーの塗装膜分離試験

NR 鋼材に対するレーザー処理装置の処理性能を検証するため、はじめに固定式レーザー 試験装置による照射試験を実施した。

#### ①平面部への分離性能

固定式による H 鋼平面部への照射結果を Fig.3.1 に示す。平面部への照射結果として、Fig.2.2 のような部分的に残るものでも、その後の照射を行うことで Fig.3.1 のように塗装膜を完全に分離することが出来た。なお、 $80~\text{mm} \times 80~\text{mm}$  の範囲に対して 100~W 出力レーザーでは 193~秒, 200~W では約 60~秒を要した。分離後の金属表面は平滑であり、ムラなく照射されていた。

#### ②H 鋼アール部の分離性能

アール部 (フランジとウェブの境界) を含むフランジ側面からウェブまでの範囲に対して、ウェブに焦点を合わせ、ウェブの直角方向からレーザー照射を行った。その結果を Fig. 3.2 に示す。130 秒程度の照射でウェブ部分は分離可能であったが、アール部の塗装膜は一部残存した。そこで新しく H 鋼 TP を用意し、 $45^\circ$  傾け、アール部に焦点を当て  $80~\text{mm} \times 20~\text{mm}$  の範囲で約 130 秒間照射した。結果を Fig. 3.3 に示す。Fig. 3.3 に示す通り、アール部の塗装膜を分離できた。この結果より本試験に使用した装置では、 $100\pm 20~\text{mm}$  程度の凹凸であれば焦点深度の調整なしで分離作業を行えるとみられる。

#### ③電線管の塗装膜分離試験

電線管は外周の塗装膜を対象として分離試験を行った。使用した装置は Table 2.2 の No.3 の 100 W レーザーを使用した。まず、電線管を固定して真上から幅 30 mm の範囲に対して照射したところ、Fig.3.4 のように±60°程度の範囲の塗装膜が分離した。また、±75°程度の範囲まで塗装膜が薄くなっていた。この結果より、曲面に対する照射でも照射面に対して±60°程度の範囲であれば十分な分離・除去性能が得られ、照射と回転を繰り返すことで外周全面の分離が可能である。また、電線管を連続的に回転させながら照射した結果をFig.3.5 に示す。10 秒程度の照射で Fig.3.5 のように、鋼材表面が露出した。鋼材の回転速度及び走査速度の制御により、より均質な分離が期待できる。

#### ④縞鋼板及び溶接部の分離試験

縞鋼板の  $100 \text{ mm} \times 80 \text{ mm}$  の範囲に対して 200 秒程度往復照射した結果を Fig.3.6 に示す。なお,装置は Table 2.2 o No.1 を使用した。縞鋼板は Fig.3.6 のように完全に塗装膜を分離した。鋼材溶接部に関しても, Fig.3.7 に示すように 30 秒程度で全体の塗装膜を分離した。

#### ⑤固定式レーザーの分離性能

固定式レーザーでは、単純形状は実鋼材と同程度の厚みの塗装であればムラなく分離できた。また、塗装の厚い部分についても薄くなっていることから、追加で照射することにより分離できるとみられる。複雑形状に対しては、60°程度の傾き、100±20 mm 程度の凹凸であれば照射角度、距離の調整なく分離できるうえ、照射角度、距離の調整を行うことで幅広い形状に対応できるものとみられる。本試験では試料を固定して照射したが、試料を移動、回転させることにより連続して大きな面積を処理できるものとみられる。

#### 3.2 ハンディ式レーザーの塗装膜分離試験

固定式に対するハンディ式の特徴として照射自由度が高いという点があげられる。そこで、平面及び固定式では分離が困難であったアール部に対して作業未経験者が照射試験を行いハンディ式の特徴を検証した。

#### ①平面部

ハンディの単純形状試験では H 鋼の平面部分を対象とした。平面部の  $80~\text{mm} \times 40~\text{mm}$  の範囲に対して 35~秒程度の往復照射した結果を Fig.3.8 に示す。処理後の鋼材表面は固定式ではみられなかった目視で確認できる程度の傷など,手の動きやブレに起因するとみられる照射のムラがみられた。

#### ②H鋼アール部

80 mm×10 mm の範囲に対して 10 秒程度照射した結果を Fig. 3.9 に示す。平面部と同様に鋼材表面には目でわかる程度のレーザー照射による傷など,手の動きやブレに伴う照射のムラを確認した。また,全体的に見ると分離不十分な個所が観察された。これは平板部では焦点距離が一様であるため焦点を合わせやすいのに対し,H 鋼凹み角部では塗装膜に対して焦点距離や角度の変化に対して対応が不十分であったことによるものとみられる。

#### ③ハンディ式レーザーの分離性能

ハンディ式では平面部及びアール部の塗装を分離することが出来た。一方で、前述のとおり、照射後の鋼材にはムラや傷が見られた。照射分離作業の熟練者が H 鋼アール部に照射した結果を Fig.3.10 に示す。作業未経験者と熟練者による塗装膜分離を比較すると、精度良く分離されており、習熟により、的確な焦点距離を保つことができるようになることで、多様な複雑形状に対しても対応できるようになるものとみられる。

#### 3.3 固定式とハンディ式の比較

固定式及びハンディ式の特徴を Table 3.1 に示す。固定式及びハンディ式のレーザーの 照射結果の比較から,固定式はムラのない正確な照射を行える一方で,高さ変化の有る試料については可変式のステージなど別途対応が必要であり,また,ハンディ式では,高さ変化の対応については柔軟な対応ができる一方,分離の正確性が作業者にゆだねられており,ある程度の習熟が必要とみられる。作業中の装備等や作業者の負担に関して,固定式では,作業者と試料を隔離することで,粉塵対策による重装備が不要となり,作業員の負荷が低減するうえ,これまで発生していたグリーンハウス等の二次廃棄物の発生量低減も見込まれる。一方,ハンディ式では,粉塵対策のためタイベックスーツ,全面マスク等の装備が必要となるが,固定式と同様にアクリルボックス等で対象物を囲い照射するなど工夫次第で軽装備での作業も可能となる。また,照射ヘッド部の重量が回転工具程度あるため,長時間の操作は困難であるとみられる。ハンディ式レーザーの誤照射に対する安全対策は,一般的に下に向けて照射するなどして人的に行うことが多いが,インターロックの設置,照射角度や方向の制限などの機械的な対応も可能である。

## 4. 高速度カメラによる塗装膜飛散挙動の観測と塗装膜回収方法の検討

#### 4.1 試験方法

レーザー照射で分離された塗装膜の拡散挙動を観察するため、高速度カメラを用いてレーザー照射時の鋼材表面の様子を撮影し、プルームの発生方向等の検証を行った。試験は鋼材表面に対して照射角度  $0^\circ$  及び  $45^\circ$  で照射し、表面の物質の挙動を撮影した。試験方法の概念図を Fig. 4.1 に示す。なお、本試験は実鋼材と平板 TP を使用した。

#### 4.2 照射角度 0° での塗装膜飛散挙動の観測

Fig.4.2 に実鋼材表面に対して直角方向(照射角度  $0^\circ$  )でレーザー照射したときの鋼材上方の画像を示す。画像のように、照射された箇所の上方へ塗装膜が飛散した。また、照射箇所周辺の塗装膜も微粉化し、同様に鋼材に対して垂直に飛散した。また、TP に対して同様にレーザー照射した Fig.4.3 では、実鋼材と同様に鋼材面に対して垂直に飛散したが、鋼材表面付近に他と比較して大き目な塗装膜片とみられる塊も観察できた。これは塗装膜の乾燥が不十分で、塗装膜が粘り気を持ったことにより、微粉化を妨げられたものとみられる。

#### 4.3 照射角度 45° での塗装膜飛散挙動の観測

Fig.4.4 に,実鋼材表面に対して照射角度  $45^\circ$  でレーザー照射したときの鋼材上方の画像を示す。画像のように,塗装膜は 4.2 と同様に,鋼材表面から垂直にプルームが飛散した。ただし,Fig.4.5 に示した,TP については,照射箇所周辺の塗装膜が微粉化することなく盛り上がり,発生したプルームは照射方向に跳ね返り飛散した。これについても TP の塗装膜内部の乾燥が不十分であり,塗料の粘性が高かったためと推測する。

#### 4.4 照射方法及び塗装膜回収方法の検討

プルームは照射角度によらず鋼材表面から垂直に発生することが分かった。そのため、鋼材面に対して垂直に吸引すると回収効率が高まると考えられる。また、発生したプルームはレーザー光を吸収し、連続の処理を阻害することが考えられる。H 鋼のアール部の処理では、アールに沿う方向で照射するよりもアールに平行な方向で照射する方が、高い処理性能が得られると考えられる。

#### 5. 塗装膜表面に付着した粉体に対するレーザーの分離性能評価

鋼材表面にウランが付着していた場合,ウランは固体(粉状)として存在することが考えられる。そのような試料に対してレーザーによる塗装膜分離・除去を行った場合,母材にウランが取り込まれてしまう事象が懸念される。そこで,本試験では酸化ウランと同様の結晶構造(蛍石構造)を示し,ウランの模擬試料として使用されることのある酸化セリウム(純度 99.99%)を用いて,粉体付着模擬試料の分離試験を実施し,照射前後のTPの比較から表面に付着する粉体の挙動評価を行った。

#### 5.1 試験方法

試料は円盤 TP を使用し、表面に粉状の酸化セリウムを手で刷り込み表面の粉体汚染を模擬した。分離性能は分離試験前及び分離試験後の円盤 TP 表面を ED-XRF (Energy Dispersive X-Ray Fluorescence Spectrometer, XEPOS, Spectro 社製)を用いて測定し、試験前後のセリウム量から評価した。

#### 5.2 照射試験結果と分離性能評価

Fig.5.1 にレーザー照射前後の TP 表面の様子を、XRF で分析したセリウム付近のスペクトルを Fig.5.2 に示す。照射後、TP 表面の塗装膜は概ね分離しており、またスペクトルからセリウムのピークが検出されなくなった。さらに、セリウム以外の検出元素として照射前は塗装膜の成分とみられるカリウム等が多く検出されていたのに対し、照射後には TP の母材の成分である鉄、クロム等が多く検出されたことから、レーザー照射によりセリウムとともに大部分の塗装膜を分離・除去したと推測する。

本試験結果より、塗装膜表面に付着する粉体は処理後の鋼材表面に残存することなく分離されることが明らかとなった。そこで、次章ではウランの熱力学的挙動に着目し、温度上昇に伴うウラン化合物の相変化の解析から、鋼材表面のウランの挙動を評価した。

### 6. 鋼材表面上のウラン化合物の熱力学的評価

5章では塗装表面の粉体の挙動について評価したが、試験に使用したセリウムとウランとでは化学特性等の違いから異なる挙動を示す可能性が考えられる。そこで本章ではレーザー照射時の鋼材の表面上でのウランの動向について熱力学解析ソフト CaTCalc (XE Release Number 2.2.1.1,株式会社計算熱力学研究所製)を用いて平衡計算を実施し、構成元素から推定される化学種と温度、酸素分圧の関係を系統的に評価した。

まず熱力学平衡計算を実施するにあたり、CaTCalc で用いる U-Fe-O-F データベースの信頼性を評価するために、U-F 及び Fe-F 状態図を描画した(Fig.6.1、Fig.6.2)。いずれの状態図においても 3000  $\mathbb C$ までの状態図計算は可能となっている。但し、以下のような留意すべき点がある。U-F 状態図においては、U- $UF_3$  間の実験値が乏しく、信頼性は十分ではないが、それ以外はおおよそ実験値が反映されていること。Fe-F 状態図も同様に、Fe-FeF $_2$  間の信頼度は低いものの、FeF $_2$ -FeF $_3$  は実験値が反映されたものとなっており、FeF $_3$ -F でも、ある程度の信頼性を持って予想することは可能である点。一方、U-O 及び Fe-O 状態図については、全ての組成・温度範囲で信頼できるとのことであった(Fig.6.3、Fig.6.4)。

熱力学平衡計算は、照射場所での元素構成比は、Table 6.1 に示す汚染された実鋼材の分析結果を用いた。温度をパラメータとし、雰囲気の酸素分圧が高い場合と低い場合に対して実行した。温度は短パルス照射の出力及びパルス幅に関係するものとして 0 ℃から3000 ℃まで変化させ、酸素分圧は照射環境(アシストガスに酸素が必要か否か等)に反映させることを目的として、計算のパラメータとした。ここでは、酸素分圧が低い場合は 0 atm、高い場合は 0.21 atm としている。分析場所と平衡計算の結果を堆積物の昇華・蒸発に関係する液相生成及び気相生成を中心に以下に整理する。

## 酸素分圧:低(Fig.6.5)

811  $\mathbb{C}$ から生成する液相では、 $FeF_2$ 、 $UF_4$  が主な化学種であり、高温では  $FeF_2$  及び FeO が主な化学種となる。一方、817  $\mathbb{C}$ から生成する別な相では、Fe(大)、 $UFe_4$  が主要な化

学種である。高温では Fe が主な化学種である。気相は 1566  $\mathbb{C}$  から発生し,主な化学種は,  $UF_4$ ,  $UOF_2$ ,  $FeF_2 \rightarrow Fe$  と推移する。

酸素分圧:高(Fig.6.6)

958  $^{\circ}$ C付近から生成する気相は、主要な化学種は、 $UF_5$ 、 $FeF_3$ (小) $^{\circ}$ UO $_2F_2$  $^{\circ}$ FeF $_2$ 、 $UO_2F$  と推移する。液相は 1481  $^{\circ}$ C付近から生成し、主要な化学種は  $Fe_2O_3$ 、FeO である。

上記より、まず次の 3 点が抑えておくべき点として挙げられる。①U と Fe を比較すると、それらの酸化物に対する生成標準エネルギーは、例えば  $UO_2$  と  $Fe_3O_4$  (または FeO) では、 $UO_2$  の方が低いことである。つまり、酸素と結合して安定化しやすい傾向にある。②フッ化物に対しても同様に、 $UF_3$  と  $FeF_2$  では前者の方が生成自由エネルギーは低くなることが知られている。③酸化物やフッ化物では、より配位数の多いものほど融点や沸点が低くなる傾向がある。

生成する液相及び気相の温度及び組成に着目すると、酸素分圧が低い状況においては温度を上昇させると初めにウランフッ化物や Fe を主とする液相が生成するのに対し、酸素分圧が高い状況においては、ウランフッ化物を主とする気相が生成している。また、酸素分圧の高い状況における液相の生成では、Fe を主とする液相の生成が示唆されており、この結果は、温度上昇によりウランと鋼材が分離している状況と評価できる。

#### 7. まとめ

NR 鋼材の塗装膜分離技術向上のため、建設現場等で広く使用されるレーザークリーニング技術に着目して試験及び計算を実施した。

レーザークリーニング装置を用いた NR 鋼材表面塗装膜の分離・除去性能評価では,固定式及びハンディ式のレーザーの特徴を評価した。その結果,レーザークリーニング装置を用いて様々な形状に対応させる場合,レーザーの焦点距離を適切に保つ必要があることが分かった。固定式は平面または数 mm 程度の凹凸面などに照射する場合,簡単に分離することが出来るが、曲面や凹凸など、照射面に大きな高低差がある鋼材を対象とする場合、照射対象の回転等を含む移動可能な装置が必要である。また、ハンディ式は手ブレ等を抑えるために治具の作成や作業員の習熟が必要となる。また、作業中の装備等や作業者の負担に関して、固定式は粉塵対策による重装備が不要となり、作業員の負荷が低減する一方、ハンディ式では、粉塵対策のための装備が必要と考えられた。

高速度カメラによる塗装膜飛散挙動の観測と塗装膜回収方法の検討では、レーザー照射により分離された塗装膜の挙動を観察するため、高速度カメラでレーザー照射時の様子を撮影した。レーザー照射により加熱された塗装膜は、照射角度に依存することなくすぐさまガス化、微粉化し、鋼材面より垂直に飛散した。このことから、照射角度によらず照射面に対して垂直に吸引回収することで効率的に分離・除去塗装膜の回収できるとみられる。また、

本結果より、H 鋼のアール部のような凹んだ曲面に照射する際は、アールに平行な位置から照射することで飛散した塗装膜(プルーム)の干渉を避けることができるとみられる。

鋼材表面の粉体に対するレーザー分離・除去性能評価では、鋼材表面に付着するウラン化合物は固体として存在するため、セリウム粉体を模擬試料として塗装を施した鋼材をレーザーにより塗装膜分離・除去試験した。その結果、照射により塗装膜とともにセリウムも完全に分離・除去されていた。

鋼材表面上のウラン化合物の熱力学的評価では、不活性ガス雰囲気及び大気雰囲気において、鋼材表面にウラン化合物が付着する試料の熱力学解析を行ったところ、不活性ガス雰囲気よりも大気雰囲気において温度上昇させた場合において気相生成しやすいことが明らかとなった。また、高速度カメラによる温度解析の結果、レーザー照射時の鋼材周辺はウラン化合物の気相生成温度を超えており、NR 鋼材にウラン化合物の付着があったとしても、ウラン及び塗装膜の分離が期待できる。

今後,管理区域にレーザー試験装置を導入し,ウランの付着する実鋼材による分離試験を 行う予定である。また、レーザークリーニング装置は鋼材だけに限らず、コンクリート材に も適用できると考えられることから、管理区域内のコンクリート材を対象とした調査研究 を進める。

#### 謝辞

本報告書の試験は株式会社天満理化研究所、株式会社日本レーザー及び株式会社光響のご協力により実施した。また、本試験は核燃料・バックエンド研究開発部門企画調整室による令和2年度部門長ファンド「若手研究者・技術者育成ファンド」の助成を受けたものである。

Table 2.1 試験試料リスト

No.	名称	材質	形状	寸法[mm]	塗装時期	塗装方法
1	実鋼		平板	$80 \times 250 \times 4.5 \text{ t}$	1980年	下地錆止め塗装
1	材		十极	00 \ 200 \ 4.5 t	ごろ	JIS K 5674
2			平板	$80 \times 250 \times 4.5 \text{ t}$		
3		SS400 TP	H鋼	100×100×500 L		上塗り塗装
4			2 電線管	19.1 $\phi \times 1.6 \text{ t} \times$		JIS K 5492
4	TЪ			$500~\mathrm{L}$	2020年	2回塗り
5	11		縞鋼板	$100\times80\times4.5~\mathrm{t}$		
						合成ペイント塗装
6			円盤	$30 \phi \times 10 t$		JIS K 5516,
						2 回塗り

Table 2.2 試験装置の種類及び性能

No.	1	2	3	4	5
操作方式	固定式	固定式	固定式	ハンディ式	固定式
レーザー 発振器		YAG レーザー			
最大出力	100 W	200 W	100 W	200 W	70 W
最大パルス エネルギー	1.5 mJ	5 mJ	1 mJ	5 mJ	60 J
パルス幅	125 ns	3~2000 ns	100 ns	3~2000 ns	$0.07{\sim}120~{\rm ms}$
繰り返し 周波数	100 kHz	1~4000 kHz	10~500 kHz	1~4000 kHz	1∼500 Hz
波長	1060 nm	1060 nm	1060 nm	1060 nm	_

Table 3.1 固定式及びハンディ式の特徴

種類 条件	固定式	ハンディ式
対応可能形状	単純形状	単純形状,複雑形状
安全対策	軽装備	重装備
分離状態	均一	不均一
操作	焦点距離の調整困難	焦点距離の調整容易
1来作	比較的安易に操作可能	作業員の習熟が必要

Table 6.1 実鋼材の元素構成比

U [atom%]	Fe [atom%]	F [atom%]	O [atom%]
5	45	20	2.5

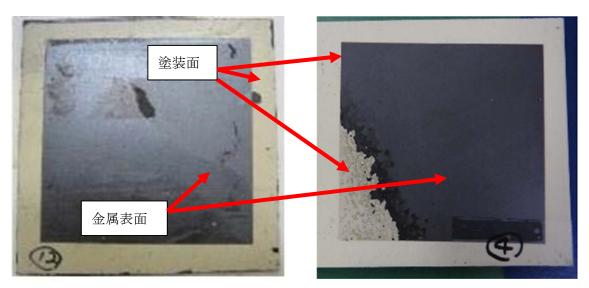


Fig.2.1 実鋼材(固定式)

Fig.2.2 TP (固定式)

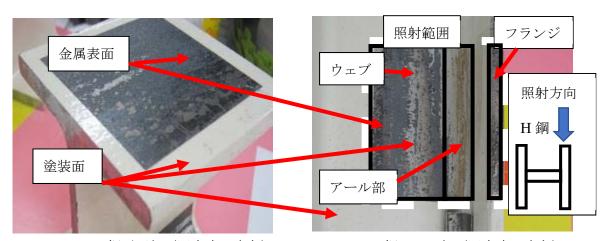


Fig.3.1 H鋼平面部(固定式,直角)

Fig.3.2 H 鋼アール部 (固定式, 直角)

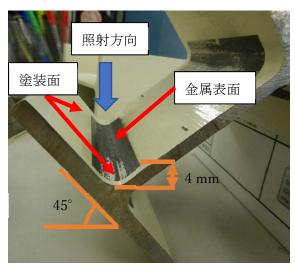


Fig.3.3 H 鋼アール部 (固定式, 45°)

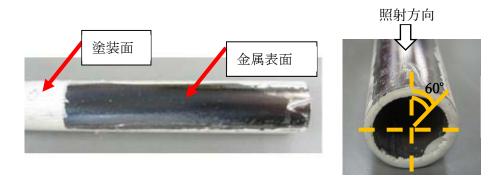


Fig.3.4 電線管(固定式,直角)

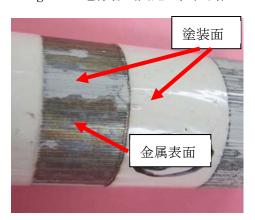


Fig.3.5 電線管(固定式,回転)



Fig.3.6 縞鋼板(固定式,直角)



Fig.3.7 溶接部 (固定式, 直角)

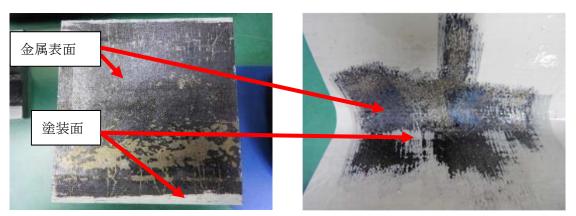


Fig.3.8 H鋼平面部 (ハンディ式)

Fig.3.9 H鋼アール部 (ハンディ式)

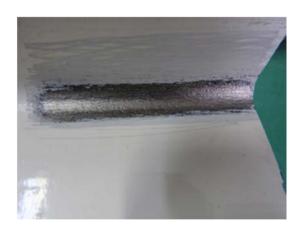


Fig.3.10 H 鋼アール部 (ハンディ式:熟練者)

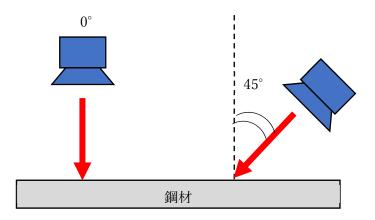
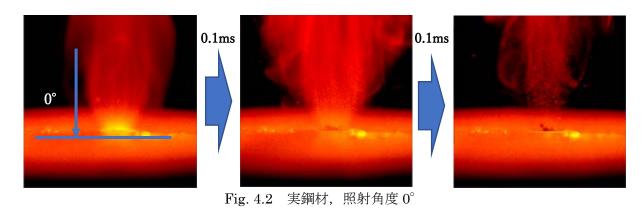


Fig.4.1 試験方法の概念図



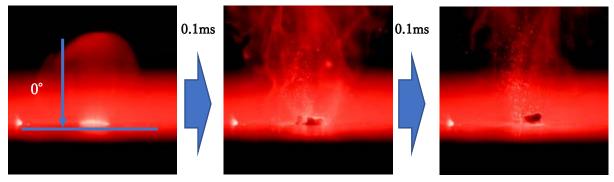


Fig.4.3 TP, 照射角度 0°

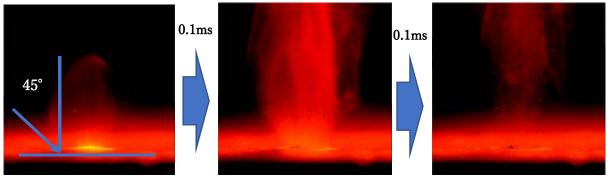


Fig. 4.4 実鋼材,照射角度  $45^{\circ}$ 

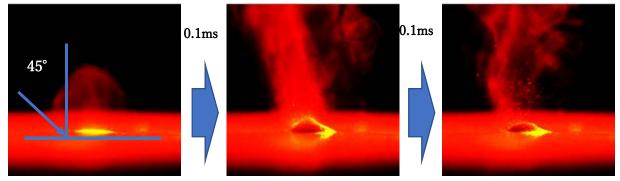


Fig. 4.5 TP, 照射角度 45°



Fig. 5.1 レーザー照射前後の TP 表面の様子

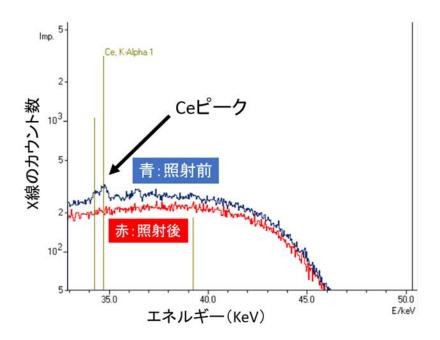


Fig. 5.2 レーザー照射前後のスペクトル図

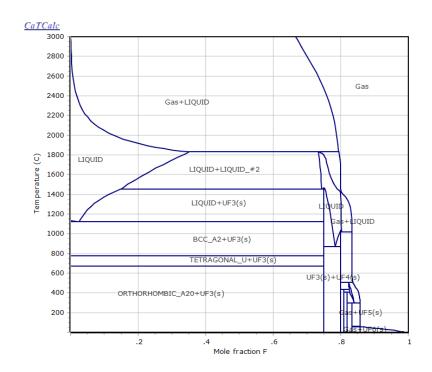


Fig. 6.1 U-F 系状態図

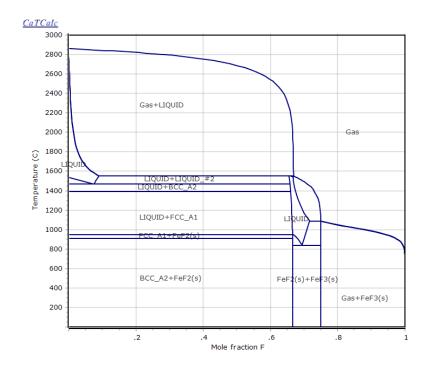


Fig. 6.2 Fe-F 系状態図

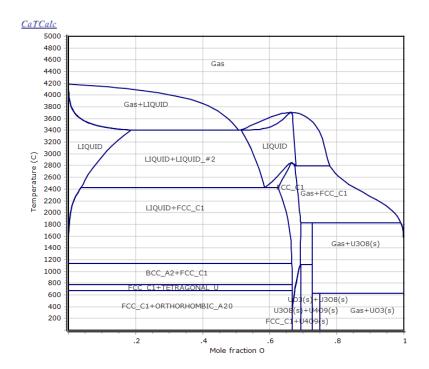


Fig. 6.3 U-O 系状態図

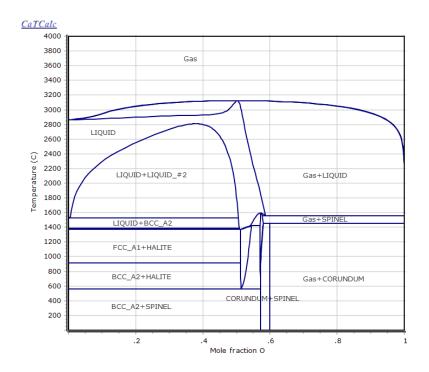


Fig. 6.4 Fe-O 系状態図

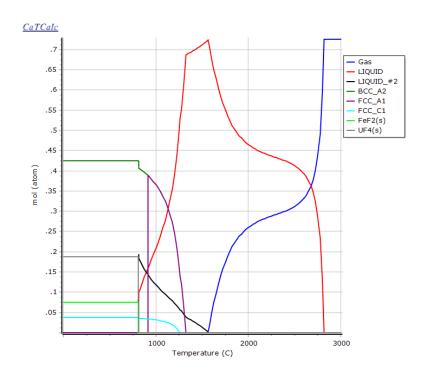


Fig. 6.5 低酸素分圧 (0 atm) 時の平衡計算

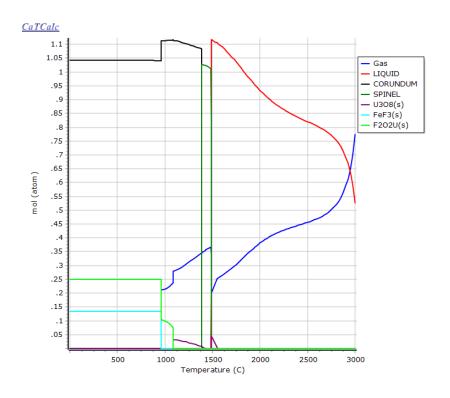


Fig. 6.6 高酸素分圧 (0.21 atm) 時の平衡計算