

JAERI-M
8076

JRR-3 一次冷却重水系の化学除染の
検討 その1
(CAN-DECON法による化学除染)

1979年2月

近藤 忠美・田中 純利・吉島 哲夫・重本 雅光
飯田 省三・堀木欧一郎・佐々木吉方

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

JRR-3一次冷却重水系の化学除染の検討、その1
(CAN-DECON法による化学除染)

日本原子力研究所東海研究所研究炉管理部

近藤 忠美・田中 純利・吉島 哲夫・重本 雅光

飯田 省三・堀木歐一郎・佐々木吉方

(1979年1月10日 受理)

JRR-3の一次冷却系はポンプランナーから出たステライト金属粉末の放射化物、破損燃料より流出したウラン、そのウランが核分裂した核分裂生成物及びプルトニウムで汚染され、保守作業に支障をきたしていた。

最近、JRR-3を改造する計画が立てられ、その計画では現在の炉心タンク、一次冷却系の機器類を全て廃棄し、更新する予定である。この解体計画を完全に行うため、化学除染法が調査され、カナダのCANDU炉で開発されたCAN DECON 法が最適であると推定された。

この報告書ではJRR-3の一次冷却系にCAN DECON 法を適用するについての検討と、一次冷却系から集められたスラッジによる除染実験が述べられている。CAN DECON 法はウラン、核分裂生成物、プルトニウムの除染には効果的であり経済的であるが、ステライト金属粉末には効果的でない事が証明された。

JAERI-M 8076

Studies on chemical decontamination of JRR-3 primary cooling system , No.1 (Decontamination by CAN DECON process)

Tadami KONDO, Sumitoshi TANAKA, Tetsuo YOSHIIJIMA, Masamitsu SHIGEMOTO,
Shozo IIDA, Oichiro HORIKI and Yoshinori SASAKI

Division of Research Reactor Operation,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 10, 1979)

The primary cooling system of JRR-3 is contaminated with activated stellite metal powder from pump runner, uranium oxide from failed fuel and fission products and plutonium from the contaminant uranium. This makes JRR-3 maintenance difficult. The plan of upgrading JRR-3 is now in progress, which involves replacement of the core tank and primary cooling system. To make the reactor disassembly safe, chemical decontamination processes have been investigated. The CAN DECON process developed and approved for the CANDU reactor in CANADA, a heavy water reactor similar to JRR-3 is possibly the most suitable.

In this report are described feasibility of the CAN DECON process to the JRR-3 primary cooling system and the decontamination tests made with sludge collected from the primary system. The process is found to be effective and economical for the decontamination of uranium, fission products and plutonium, but not for stellite metal.

Keywords: Chemical Decontamination, JRR-3 Reactor Primary Coolant System, CAN DECON Process, Activated Products.

目 次

1. まえがき	1
2. JRR-3一次系の汚染状況	2
3. 一次系内スラッジのサンプリング	3
4. 除染剤L-106 の性能実験	4
4.1 水に対する溶解性	4
4.2 L-106溶液に対する原子炉構造材の溶解実験(I)	5
4.3 L-106溶液に対する原子炉構造材, ステライト粉末の溶解実験(II)	5
4.4 L-106のイオン交換樹脂に対する吸着特性	6
4.4.1 イオン交換樹脂のイオン交換容量変化	6
4.4.2 隠イオン交換樹脂の貫流点の測定	7
4.5 L-106溶液中溶解イオンのイオン交換樹脂による除去	7
4.6 L-106の放射線分解	8
4.6.1 ^{60}Co γ 線照射による放射線分解	8
4.6.2 停止中炉心内照射による放射線分解	8
4.7 一次系スラッジの溶解除染実験	9
4.7.1 一次系スラッジの溶解実験	9
4.7.2 ストレーナの除染実験	11
5. スラッジ内ウラン, ブルトニウムの定量とL-106による除染実験	11
6. 結果と考察	12
7. まとめ	13
謝 辞	14
参考文献	14

Contents

- 1 Preface
- 2 Contamination of Primary Cooling System at JRR-3
- 3 Sampling of Sludge in Primary Cooling System
- 4 Ability Test of Decontamination Compounds(L-106)
 - 4.1 L-106 Solubility to Water
 - 4.2 Reactor Material Solubility to L-106 Solution(I)
 - 4.3 Reactor Material and Stellites Powder Solubility to L-106 Solution(II)
 - 4.4 L-106 Absorbability to Ion Exchange Resin
 - 4.4.1 Capacity Change of Ion Exchange Resin
 - 4.4.2 Measurement of Break Through Point in Anion Exchange Resin
 - 4.5 Removal of Solted Material in L-106 Solution by Ion Exchange Resin
 - 4.6 Decomposition of L-106
 - 4.6.1 Decomposition of L-106 by Co-60 γ ray Irradiation
 - 4.6.2 Decomposition of L-106 by Residual Activity in JRR-3
 - 4.7 Decontamination Experiment of Sludge
 - 4.7.1 Decontamination Experiment of Sludge
 - 4.7.2 Decontamination Experiment of Strainer
- 5 Quantitative Analysis of Uranium, Plutonium in Sludge and Decontamination Experiment of Sludge by L-106 Solution
- 6 Experimental Results and Consideration
- 7 Conclusion
- Acknowledgements
- References

1. まえがき

JRR-3では一次冷却重水系（以下、一次系といふ）のエキスパンションジョイント部分をはじめとして、一次系全体に⁶⁰Cnの沈着や燃料破損（1968～69年）に基づくウラン、核分裂生成物（以下、F.P.といふ）の汚染があり、その結果、ポンブルームなどの空間線量率が上昇し、機器保守作業などの面で支障をきたしている。⁶⁰Cn生成素材であるステライトはすでにその使用を中止している。破損した天然ウラン燃料（被覆材、アルミニウム）はすべて炉心からとり出され、現在は燃料全部が微濃縮酸化ウラン（被覆材、ジルカロイ-2）に変更されている。

JRR-3管理課では、一次系の除染に関して機械的、物理的方法について検討している。

JRR-3改造計画の進展に伴ない、解体作業時の被曝の低減、撤去機器の放射能汚染レベル（α核種を含む）の低減化のために、一次系の化学除染が望まれている。

化学除染に関する研究成果および実施例は数多く報告されている。^{1), 2)} それらの中で重水炉および軽水炉における化学除染の実施例として、

- 1) 硫酸法によるスイスのDIORIT³⁾
- 2) AP-CITROX 法によるアメリカのPRT^{4), 5), 6), 7)}
- 3) CAN-DECON 法によるカナダのGentilly-1, NPD⁸⁾
- 4) REDOX-CYCLING 法によるカナダのDouglas point⁹⁾
- 5) NS法によるアメリカのDresden UNIT 1¹⁰⁾

などがある。DIORIT炉を除いた他の原子炉における化学除染はいづれも成功裏に終了しているが、これらの化学除染方法は動力炉用に開発されたものであり、研究炉における化学除染の実施例はない。

JRR-3は重水冷却型で、一次系の主構造材はアルミニウムとステンレススチールであり、冷却材の温度は80°Cに制限されている。これらの条件を考慮し、上記化学除染方法の中からJRR-3に適する除染方法を検討した結果、除染剤L-106を使用するCAN-DECON法を選定した。

CAN-DECON 法はAECLがCANDU^{*1)}型原子炉を化学除染するために開発した方法であり、DF^{*2)} 2～4で成功している。使用する除染剤L-106の組成は有機酸であることが公表されている。この方法の特徴は以下のとおりである。

- 1) 少量のL-106を重水中に添加、溶解するだけなので燃料の取出し、重水の抜きとりを必要としない。
- 2) 重水の濃度低下が少ない（1回の除染で0.005%の濃度低下）
- 3) L-106で除染された⁶⁰Cn、ウラン、F.P.等はL-106とともにイオン交換樹脂に吸着され、廃棄されるので大量の放射性廃液が生じない。

*1) CANada Deuterium Uranium

*2) Decontamination Factor DF = $\frac{\text{除染前の線量率}}{\text{除染後の線量率}}$

- 4) L-106は有機化合物であるが、化学除染時の濃度が低いので放射線分解に伴なりガスの発生は無視できる。
- 5) L-106による原子炉構造材の腐食がない。
- 6) 他の化学除染法と比較して、大巾な経費節約ができ經濟的である。
- 我々は以上の利点について確認実験および除染試験を行った。その結果、CAN-DECON法をJRR-3一次系に適用しても何ら問題を生じないことが判明した。また、ウランF.P.等の除染について除染効率が高く、そのDFはウランについて約20, ^{239}Pu について約3であった。しかし、ステライト合金の摩耗粒子に対する溶解能力が小さいため、 ^{60}Co の除染については効果的でない(DF 1.4~1.6)ということが判った。
- 本報告はJRR-3一次系内汚染状態の把握および除染剤L-106を使用するCAN-DECON法について研究炉にも用いられるか否かを調査および諸実験を行い、本法の有効性について検討したものである。

2. JRR-3一次系の汚染状況

JRR-3は炉出力10MWの重水減速冷却型の原子炉で1962年臨界になり、1965年より10MWの共同利用運転を開始した。一次系の炉心タンクの材質はアルミニウム5052(52S)で、燃料棒はアルミニウム1200(2S)を冷却管に使用し、現在は微濃縮酸化ウランを燃料とし、ジルカロイ-2で被覆している。燃料棒の本数は243本でアルミニウムで被覆した17本のカドミウム中空円筒棒状の制御棒がある。中性子領域内の炉材料はほとんどアルミニウム材であるが一次系配管はステンレススチールである。炉心断面図をFig. 1に示す。

JRR-3一次系内の汚染状況は、ポンブルーム内の空間線量率の上昇によって知ることができる。その空間線量率の主な放射線源は ^{60}Co である。 ^{60}Co の発生源は一次系ポンプ類のスラストランナにステライト合金(コバルト約6.0%含有)が盛金されており、これがポンプの運転により摩耗して重水中に放出され、炉心に運ばれ中性子により放射化されて、重水とともに再びポンブルームに戻り、炉心出入口のエキスパンションジョイント、チャッキバルブ、熱交換器出入口のエキスパンションジョイントなどの隙間および各タンク類の底部に沈着して熱交換器局部的に高線量率となっている。1963年から1977年までのポンブルーム内の熱交換器エキスパンションジョイント付近と均圧管中央部の原子炉停止中の表面線量率の変化をFig. 2に、JRR-3一次冷却系フローシートをFig. 3に、熱交換器エキスパンションジョイント付近の配置図をFig. 4に示す。表面線量率は中高出力特性試験運転、10MW利用運転期に急上昇し、1967年にはほぼ飽和値に達している。これは原子炉運転開始当初からポンプ類のステライト合金が連続的に摩耗していたものと推定できる。1968, 1969年にエブ類のステライト合金が連続的に摩耗していたものと推定できる。1968, 1969年にエブ類のステライト合金が連続的に摩耗していたものと推定できる。依然とエキスパンションジョイント部分のドレン法による除染で表面線量率は低下しているが、依然と

4) L-106は有機化合物であるが、化学除染時の濃度が低いので放射線分解に伴なうガスの発生は無視できる。

5) L-106による原子炉構造材の腐食がない。

6) 他の化学除染法と比較して、大巾な経費節約ができ經濟的である。

我々は以上の利点について確認実験および除染試験を行った。その結果、CAN-DECON法をJRR-3一次系に適用しても何ら問題を生じないということが判明した。また、ウランF.P.等の除染について除染効率が高く、そのDFはウランについて約20, ^{239}Pu について約3であった。しかし、ステライト合金の摩耗粒子に対する溶解能力が小さいため、 ^{60}Co の除染については効果的でない(DF 1.4~1.6)ということが判った。

本報告はJRR-3一次系内汚染状態の把握および除染剤L-106を使用するCAN-DECON法について研究炉にも用いられるか否かを調査および諸実験を行い、本法の有効性について検討したものである。

2. JRR-3一次系の汚染状況

JRR-3は炉出力10MWの重水減速冷却型の原子炉で1962年臨界になり、1965年より10MWの共同利用運転を開始した。一次系の炉心タンクの材質はアルミニウム5052(52S)で、燃料棒はアルミニウム1200(2S)を冷却管に使用し、現在は微濃縮酸化ウランを燃料とし、ジルカロイ-2で被覆している。燃料棒の本数は243本でアルミニウムで被覆した17本のカドミウム中空円筒棒状の制御棒がある。中性子領域内の炉材料はほとんどアルミニウム材であるが一次系配管はステンレススチールである。表面積はアルミニウム材で約 $3 \times 10^6 \text{ cm}^2$ 、ステンレススチールで約 $5 \times 10^6 \text{ cm}^2$ である。炉心断面図をFig. 1に示す。

JRR-3一次系内の汚染状況は、ポンブルーム内の空間線量率の上昇によって知ることができる。その空間線量率の主な放射線源は ^{60}Co である。 ^{60}Co の発生源は一次系ポンプ類のスラストランナにステライト合金(コバルト約60%含有)が盛金されており、これがポンプの運転により摩耗して重水中に放出され、炉心に運ばれ中性子により放射化されて、重水とともに再びポンブルームに戻り、炉心出入口のエキスパンションジョイント、チャッキバルブ、熱交換器出入口のエキスパンションジョイントなどの隙間および各タンク類の底部に沈着して熱交換器局部的に高線量率となっている。1963年から1977年までのポンブルーム内の熱交換器エキスパンションジョイント付近と均圧管中央部の原子炉停止中の表面線量率の変化をFig. 2に、JRR-3一次冷却系フローシートをFig. 3に、熱交換器エキスパンションジョイント付近の配置図をFig. 4に示す。表面線量率は中高出力特性試験運転、10MW利用運転期に急上昇し、1967年にはほぼ飽和値に達している。これは原子炉運転開始当初からポンプ類のステライト合金が連続的に摩耗していたものと推定できる。1968、1969年にエキスパンションジョイント部分のドレン法による除染で表面線量率は低下しているが、依然と

して高線量率のまま現在に至っている。

一方、JRR-3は1969年1月の天然ウラン金属燃料の破損の発生により、重水中にウランが溶出した。1969年1月に重水中に $120 \text{ ng}/\text{ml}$ のウランが検出され、同年3月には最高 $750 \text{ ng}/\text{ml}$ のウラン濃度に達した。この後、ウラン除去作業(イオン交換樹脂、陶管フィルタ等を使用)の結果、同年12月頃には検出感度(約 $3 \text{ ng}/\text{ml}$)以下まで重水中ウラン濃度を低下させることができた。しかし、この除去期間中に一次系内に付着したウラン量も多く、約9gのウランが付着したものと考えられる。炉心外一次系ステンレススチールの配管にはほぼ一様に $10 \sim 20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の割合で、ウランが付着しており、炉心部アルミニウムの表面には平均 $19 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の割合で付着している。特に炉心部アルミニウムの表面は、異常な針状バイヤライト($\beta-\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$)の沈着層で覆われ、 $\text{UO}_3 \cdot \text{XH}_2\text{O}$ の微粒子がその沈着層の中に、ある厚みをもって埋め込まれた状態で汚染されている。

現在、重水中のウラン濃度は検出感度以下であるが、炉心部アルミニウムに埋め込まれたウランが原子炉運転により核分裂したり、 ^{239}Pu 等の α 放射性核種を生成するため、重水の放射能濃度が増加し、一次系の α 汚染をひき起こしている。主重水及び精製重水の γ 線スペクトルをFig. 5 に、重水のカバーガスであるヘリウムガスの γ 線スペクトルをFig. 6 に示す。重水中のF.P. の濃度は ^{135}I で $6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 、天然ウランにより生成される ^{239}Np で $1.2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。一方、中性子領域のアルミニウムの(n,γ)反応によって生成される ^{24}Na の濃度は $3 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である(1977年度平均)。なお、重水中の ^{60}Co は約 $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度の濃度であるが、これは放射化されたステライト金属粒子が難溶性であるためと考えられる。

3. 一次系内スラッジのサンプリング

一次系DT-6下部および緊急重水汲上回路からスラッジをサンプリングし、目視観察、表面線量率の測定を行った。また、スラッジをピンセットその他により分別し、その表面線量率とGe(Li)半導体検出器による γ 線スペクトルの測定を行った。スラッジおよび分別した汚染物の表面線量率をTable 1に、 γ 線スペクトルをFig. 7~9に示す。目視観察の結果、スラッジ内にはイオン交換樹脂、カーボン状黒色粉末、灰色粉末、アルミニウムと思われる金属片等が含まれていた。分別後の汚染物の表面線量率から、それらの中でもっとも大きくスラッジの表面線量率に寄与しているのは数 μ ~数 10μ の粒子であり、それはまた磁性を有していることが確認された。 γ 線スペクトルによって、 ^{60}Co だけが検出されたことも考慮すると、これらの微粒子はステライト合金そのままの微粒子である。

して高線量率のまま現在に至っている。

一方、JRR-3は1969年1月の天然ウラン金属燃料の破損の発生により、重水中にウランが溶出した。1969年1月に重水中に $120 \text{ ng}/\text{ml}$ のウランが検出され、同年3月には最高 $750 \text{ ng}/\text{ml}$ のウラン濃度に達した。この後、ウラン除去作業(イオン交換樹脂、陶管フィルタ等を使用)の結果、同年12月頃には検出感度(約 $3 \text{ ng}/\text{ml}$)以下まで重水中ウラン濃度を低下させることができた。しかし、この除去期間中に一次系内に付着したウラン量も多く、約 9 g のウランが付着したものと考えられる。炉心外一次系ステンレススチールの配管にはほぼ一様に $10 \sim 20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の割合で、ウランが付着しており、炉心部アルミニウムの表面には平均 $19 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の割合で付着している。特に炉心部アルミニウムの表面は、異常な針状バイヤライト($\beta\text{-Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$)の沈着層で覆われ、 $\text{UO}_3 \cdot \text{XH}_2\text{O}$ の微粒子がその沈着層の中に、ある厚みをもって埋め込まれた状態で汚染されている。

現在、重水中のウラン濃度は検出感度以下であるが、炉心部アルミニウムに埋め込まれたウランが原子炉運転により核分裂したり、 ^{239}Pu 等の α 放射性核種を生成するため、重水の放射能濃度が増加し、一次系の α 汚染をひき起こしている。主重水及び精製重水の γ 線スペクトルをFig. 5 に、重水のカバーガスであるヘリウムガスの γ 線スペクトルをFig. 6 に示す。重水中のF.P. の濃度は ^{135}I で $6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 、天然ウランにより生成される ^{239}Np で $1.2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。一方、中性子領域のアルミニウムの(n, α)反応によって生成される ^{24}Na の濃度は $3 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である(1977年度平均)。なお、重水中の ^{60}Co は約 $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度の濃度であるが、これは放射化されたステライト金属粒子が難溶性であるためと考えられる。

3. 一次系内スラッジのサンプリング

一次系DT-6下部および緊急重水汲上回路からスラッジをサンプリングし、目視観察、表面線量率の測定を行った。また、スラッジをピンセットその他により分別し、その表面線量率とGe(Li)半導体検出器による γ 線スペクトルの測定を行った。スラッジおよび分別した汚染物の表面線量率をTable 1 に、 γ 線スペクトルをFig. 7~9 に示す。目視観察の結果、スラッジ内にはイオン交換樹脂、カーボン状黒色粉末、灰色粉末、アルミニウムと思われる金属片等が含まれていた。分別後の汚染物の表面線量率から、それらの中でもっとも大きくスラッジの表面線量率に寄与しているのは数 μ ~数 10μ の粒子であり、それはまた磁性を有していることが確認された。 γ 線スペクトルによって、 ^{60}Co だけが検出されたことも考慮すると、これらの微粒子はステライト合金そのままの微粒子である。

Table 1 Surface dose rate from sludge in JRR-3 primary system.

スラッジ	表面線量率	スラッジ内容物	表面線量率
DT-6 下部スラッジ	600 mR/hr	イオン交換樹脂	0.8 mR/hr
		" "	15 mR/hr
		粉末 (I)	300 mR/hr
		" (II)	300 mR/hr
		" (III)	100 mR/hr
緊急重水 汲上回路 スラッジ	2 R/hr	粉末(塊)	1 R/hr
		磁性体金属粉末	100 mR/hr
		カーボン状黒色粉末	0.4 mR/hr
		金属片 (10×3×2mm)	4 mR/hr

4. 除染剤 L - 106 の性能実験

4.1 水に対する溶解性

除染剤 L - 106 は白色粉末であり、化学除染時に水に溶解して使用することから、水に対する溶解性を実験した。L - 106 粉末をシリカゲルデシケータ中で乾燥し、その適当量を上皿天秤で秤量する。次に 1 ℥ の水に入れて、マグネットスターラにより攪拌しながら 60°C に昇温した。溶液の加熱にはヒータ付フラスコを使用した。水に対する溶解性を Table 2 に示す。この結果、L - 106 は 60°C で水 1 ℥ に対し 5 g が溶解する。この溶液が室温まで温度が低下しても L - 106 が析出しないことから、0.5 %までの溶液の調製が可能であることを確認した。この濃度は実際の化学除染に使用する 0.1 %濃度の 5 倍である。溶液の pH は 2.11~2.71 で酸性を示した。

Table 2 L-106 solubility to water (1 ℥)

L-106	濃度	温度	溶 解 性	pH
1 g	0.1%	室温	攪拌して溶解せず	-
1 g	0.1%	60°C	攪拌して、約 20 分後完全に溶解 溶液室温に温度低下しても L-106 析出せず	2.71
5 g	0.5%	60°C	" "	2.77
10 g	1.0%	60°C	攪拌して、約 30 分後完全に溶解 溶液室温に温度低下すると L-106 析出する。	2.11

Table 1 Surface dose rate from sludge in JRR-3 primary system.

スラッジ	表面線量率	スラッジ内容物	表面線量率
DT-6 下部スラッジ	600 mR/hr	イオン交換樹脂	0.8 mR/hr
		" "	15 mR/hr
		粉末 (I)	300 mR/hr
		" (II)	300 mR/hr
		" (III)	100 mR/hr
緊急重水 汲上回路 スラッジ	2 R/hr	粉末(塊)	1 R/hr
		磁性体金属粉末	100 mR/hr
		カーボン状黒色粉末	0.4 mR/hr
		金属片 (10×3×2 mm)	4 mR/hr

4. 除染剤 L - 106 の性能実験

4.1 水に対する溶解性

除染剤 L - 106 は白色粉末であり、化学除染時に水に溶解して使用することから、水に対する溶解性を実験した。L - 106 粉末をシリカゲルデシケータ中で乾燥し、その適当量を上皿天秤で秤量する。次に 1 ℥ の水に入れて、マグネットスターラにより攪拌しながら 60°C に昇温した。溶液の加熱にはヒータ付フラスコを使用した。水に対する溶解性を Table 2 に示す。この結果、L - 106 は 60°C で水 1 ℥ に対し 5 g が溶解する。この溶液が室温まで温度が低下しても L - 106 が析出しないことから、0.5 %までの溶液の調製が可能であることを確認した。この濃度は実際の化学除染に使用する 0.1 %濃度の 5 倍である。溶液の pH は 2.11~2.71 で酸性を示した。

Table 2 L-106 solubility to water (1 ℥)

L-106	濃度	温度	溶 解 性	pH
1 g	0.1%	室温	攪拌して溶解せず	-
1 g	0.1%	60°C	攪拌して、約 20 分後完全に溶解 溶液室温に温度低下しても L-106 析出せず	2.71
5 g	0.5%	60°C	" "	2.77
10 g	1.0%	60°C	攪拌して、約 30 分後完全に溶解 溶液室温に温度低下すると L-106 析出する。	2.11

4.2 L-106 溶液に対する原子炉構造材の溶解実験 (I)

原子炉構造材の主なものはステンレススチール 304, アルミニウム 1200(2S), 5052 (52S), ネオブレンである。それらについてL-106 溶液による溶解腐食実験を行った。これらのテストピースの重量を精秤し, L-106 溶液にナイロン製釣糸で吊し, 60°Cに加熱しながら195時間攪拌して連続実験した結果をTable 3, Fig. 10 に示す。L-106 溶液中のアルミニウム濃度は原子吸光分析法により分析した。ステンレススチール 304 の溶解腐食は無視できるほど小さいので問題ないが、アルミニウム 1200, 5052 はともに0.1%のL-106 溶液にアルミニウムが溶出した。アルミニウムの溶出量は50~100時間で約150ppmで飽和し、その値は実験終了後に測定したアルミニウム 1200, 5052 のテストピースの重量減少の合計値と良く一致していた。ステンレススチール 304, アルミニウム 1200, 5052 の組成をTable 4 に示す。ネオブレンテストピースは1.5%程度重量増加して感覚的に固くなつたようであるが、材質的に大きな変化はなかった。なおL-106 溶液のpHは実験前後でそれぞれ2.71, 2.72で変化がなかった。

Table 3. Reactor material solubility to L-106 solution

材質	試験前重量	試験後重量変化	アセトン洗浄後重量変化	試験前pH	試験後pH
stainless steel 304	78.38373g	+2.46mg	+0.24mg		
Aluminium 1200	26.46974g	-51.91mg	-64.56mg		
Aluminium 5052	26.39800g	-7.364mg	-91.85mg		
Neoprene	10.85763g	+179.12mg	+145.75mg	2.71	2.72

Table 4. Chemical composition(%)of test piece

材料名	Mn	Cr	Fe	Si	Mg	Zn	Ti	Cu	Al
Aluminium 5052	0.10	0.15~0.35	0.45	22~2.8	0.10	—	0.10	0.10	残部
Aluminium 1200	0.05	—	1.0	—	0.10	—	0.05	99.00以上	

材料名	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe
Stainless steel 304	<0.08	<1.00	<2.00	<0.04	<0.03	8~11	18~20	残部

4.3 L-106 溶液に対する原子炉構造材, ステライト粉末の溶解実験 (II)

L-106 溶液に対するステライトの溶解性を確認するためステライト粉末を調製した。三菱金属(株)製ステライトM6溶接棒を用意し、それをグラインダで細粉化し、その粉末をふるいで分別し、62μ以下の粒子を実験の試料とした。ステライトM6溶接棒の成分はC 64%,

Cr 28%, W 4%, C 1%, Fe 3% である。このステライト Mg_6 溶接棒は磁性を有しないが、細粉化した粉末は磁性を有していることが確認できた。

実験は次の2種類を4.2の実験と同様に、60°C、攪拌の条件で405時間連続して行った。

- 1) L-106 0.1% 溶液 1ℓ にステライト粉末 0.1g とステンレススチール 304、アルミニウム 1200, 5052 のテストピースを入れた。

- 2) L-106 0.1% 溶液 1ℓ にステライト粉末のみ 0.1g 入れた。

実験結果を Fig. 11~15 に示す。各金属元素の L-106 溶液中の濃度は原子吸光分析法により分析した。4.2 と同様、アルミニウムの溶出は約 100 時間で飽和し、その濃度は約 150 ppm である。一方、コバルトは 4.3~5.7 ppm で溶解しており、1) の実験の方が 2) の実験よりも約 30 % 多くコバルトが溶出する。溶液中のコバルト濃度からステライト粉末溶解放量を計算により求めると約 8 mg となる。クロムの濃度は 400 時間経過しても増加の傾向であるが、1.9~2.2 ppm であり、これも 1) の実験の方が 2) の実験よりも約 15 % 多い。ステンレススチール 304 の溶解量を無視して、溶液中クロム濃度からステライト粉末の溶解量を計算により求めると約 8 mg となり、コバルト濃度から求めた値と一致している。これらの溶液を 50°C 戸過し、さらに 0.45 μ ミリボアフィルタで減圧戸過して各金属元素の濃度を分析した結果、各金属元素の濃度は戸過の前後で変化がなかった。これは各金属元素が溶液中で完全溶解しており、化学除染実施の際問題となる粒子状では存在していないということを示している。なお、1) の実験の方が 2) の実験よりもコバルト、クロム、鉄の濃度が高くなつた原因は不明である。

4.4 L-106 のイオン交換樹脂に対する吸着特性

4.4.1 イオン交換樹脂のイオン交換容量変化

陽イオン交換樹脂(ダイヤイオン SK 1B) 5 ml と陰イオン交換樹脂(ダイヤイオン SA 10A) 5 ml をガラス製カラムに充填し、0.1% L-106 溶液 200 ml をそれぞれ SV^{*1)} 20 で通液し、そのイオン交換容量の変化を測定した。結果を Table 5 に示す。陽イオン交換樹脂で溶液中の L-106 を除去できないが、陰イオン交換樹脂では除去できる。陰イオン交換樹脂のイオン交換容量低下率は 43 % であり、その L-106 吸着能力は 0.09 g/ml であった。

Table 5 Capacity change of ion exchange resin after L-106 passed through.

イオン交換樹脂	通液量 (ml)	通液前イオン交換容量 (meq/ml)	通液後イオン交換容量 (meq/ml)
陽イオン交換樹脂	200	1.79	1.80
陰イオン交換樹脂	200	1.01	0.58

4.4.2 陰イオン交換樹脂の貫流点の測定

陰イオン交換樹脂 5 ml をガラス製カラムに充填し、0.1% L-106 溶液を SV 15~30 で通液して pH と電気伝導度を連続的に測定して貫流点 (Break through point) を求めた。結果を Fig. 16 に示す。陰イオン交換樹脂 5 ml に対して、500 ml の 0.1% L-106 溶液から L-106 を除去できることがわかった。通液後、陰イオン交換樹脂のイオン交換容量は 0 meq/ml^{*2)} であり、陰イオン交換樹脂のイオン交換能力は全部消費されていた。

4.5 L-106 溶液中溶解イオンのイオン交換樹脂による除去

4.3 で実験した戸過後の溶液 300 ml を陽イオン交換樹脂 5 ml IC SV 20 で通液し、流出した溶液全量を集め、pH、電気伝導度、Al, Fe, Co, Cr の濃度を測定して溶解イオンの除去実験を行った。さらにこの流出液の 200 ml を陰イオン交換樹脂に通液して同様の測定を行った。結果を Table 6 に示す。陽イオン交換樹脂通過液は酸性となり電気伝導度は上昇した。陰イオン交換樹脂通液後、溶液はアルカリ側に移行し、電気伝導度は約 4 μΩ/cm に低下した。

陽イオン交換樹脂による溶解金属イオンの除去率は、Al, Co 30.8%, Fe 4.2%, Cr 7.8% であった。すなわち、L-106 は陽イオン交換樹脂を通過することにより約 30% が再生される。陰イオン交換樹脂の通過液は L-106 と溶解金属イオンはともに完全除去されている。この結果、L-106 溶液は実際の化学除染過程で、陽イオン交換樹脂を通過させることにより約 30% 再生され、再生された L-106 は再び化学除染に使用できる。化学除染終了時には陰イオン交換樹脂により L-106 および溶解金属イオンはほとんど全部除去できる。

Table 6 Removal of soluted material in L-106 solution by ion exchange resin

溶 液	pH	電気伝導度 (μΩ/cm)	Al 濃度 (ppm)	Fe 濃度 (ppm)	Co 濃度 (ppm)	Cr 濃度 (ppm)
イオン交換樹脂通液前	5.72	204	78	1.90	5.20	206
陽イオン交換樹脂通液後	3.29	247	54 [30.8]	1.82 [4.2]	3.60 [30.8]	1.90 [7.8]
陰イオン交換樹脂通液後	8.21	4.27	<0.5 [~100]	<0.05 [~100]	<0.05 [~100]	<0.06 [~100]

[] 内は除去率 %

*1) SV; Space Velocity の略で $SV = \frac{1\text{時間に流れた溶液の量}}{\text{樹脂容積}}$

*2) meq/ml; イオン交換樹脂 1 mlあたりの交換容量で 1 meq は 1/1000 グラム当量

4.6 L-106の放射線分解

4.6.1 ^{60}Co , γ 線照射による放射線分解

4.3で実験した沪過後の溶液 $30\text{m}\ell$ を試験管にとり、 ^{60}Co γ 線を $10^4 \sim 10^8$ レントゲン照射し、照射後溶液を 0.45μ ミリポアフィルタで減圧沪過し、沪液のAl, Fe, Co, Crの濃度を原子吸光分析により求めた。L-106溶液に溶解しているAl, Fe, Co, Cr等はEDTA錯塩となっているものと推定され、そのEDTA錯塩が γ 線照射により放射線分解するとAl, Fe, Co, Cr等が沈殿析出し、溶液内の金属元素濃度は低下する。放射線分解量を定量することはできないが、放射線分解を起こす照射線量のしきい値は知ることができる。実験結果をFig. 17に示す。L-106溶液は 10^6 レントゲン以上の γ 線照射で放射線分解を起こすことが判った。

また、L-106粉末 0.1g を硬質ガラス製ブレイカブルアンプルに入れ、 10^{-2}mmHg IC減圧溶封して同様に γ 線照射して、放射線分解により発生するガス量を測定した。結果をTable 7に示す。この場合も定量はできないが、放射線分解が生ずる γ 線照射線量のしきい値は求めることができた。L-106粉末は約 10^8 レントゲンの γ 線照射で放射線分解することが判った。L-106の溶液と粉末の放射線分解する γ 線照射線量のしきい値は、粉末の方が約100倍高くなっている。

Table 7 Decomposition of L-106 by γ -ray irradiation

試料番号	照射線量 (R/hr)	発生ガス量 (mℓ N.T.P.)
1	未照射	0.1
2	4.8×10^4	0.1
3	1.15×10^5	0.1
4	1.2×10^6	0.1
5	1.0×10^7	0.1
6	1.2×10^8	1.1

L-106粉末 0.1g を γ 線照射

4.6.2 停止中炉心内照射による放射線分解

4.3で実験した沪過後の溶液 $10\text{m}\ell$ を $30\text{m}\ell$ の石英ガラスアンプルに入れ、原子炉運転停止中のJRR-3, VR-1照射孔で300時間照射した。同時に照射した金箔モニタの測定により、照射位置の熱中性子束は約 $6 \times 10^7 \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ であることが判った。この時の γ 線量率は推定で $3 \times 10^4 \text{ R/hr}$ である。照射後、溶液を 0.45μ ミリポアフィルタで減圧沪過して、L-106溶液に溶解している金属元素を分析して、その濃度の低下率を求めた。結果をTable 8に示す。また、L-106粉末 0.1g を石英ガラス製ブレイカブルアンプルに入れ、 10^{-2}mmHg IC減圧溶封して、L-106溶液と同様に炉心内照射した。照射後、放

射線分解ガス量を測定した。

実験の結果、L-106 溶液中の Al, Co の濃度は約 30% 低下しており、300時間照射では L-106 は放射線分解している。これは γ 線照射線量だけでも約 10^7 レントゲンであり、これに熱中性子の照射が加わるためであろうと思われる。L-106 粉末照射では、放射線分解によるガスの発生がなく、放射線分解していない。なお、この照射実験において、照射後の試料の表面線量率は試料全数が B.G. 以下であり、炉心内照射による試料の放射化はなかった。

Table 8. Concentration decrease of metal element in L-106 by residual activity in JRR-3.

	Al 濃度 (ppm)	Fe 濃度 (ppm)	Co 濃度 (ppm)	Cr 濃度 (ppm)
炉心照射前	157	2.05	5.8	2.38
炉心照射後*	105	1.50	6.0	2.29
濃度低下率	33.1%	26.8%	—	3.8%

* 照射条件：熱中性子束 6×10^7 n/cm² · sec

γ 線量率 3×10^4 R/hr

300時間連続照射

4.7 一次系スラッジの溶解除染実験

4.7.1 一次系スラッジの溶解実験

緊急重水汲上回路からサンプリングしたスラッジを乾燥し、その粉末の1部（Table 1）をとり、L-106 溶液による溶解除染実験を行った。

試料の表面線量率、gross γ activity を測定後、0.1% L-106 溶液 1 ℥に入れ、60°C で 100 時間、マグネットクスターで攪拌しながら連続溶解させた。実験終了後溶液を μ 5 C 壴紙で済過し、さらに 0.45μ ミリポアフィルタで減圧済過した。済液、 μ 5 C 壴紙、ミリポアフィルタ、マグネット攪拌子の表面線量率と gross γ activity を測定した。結果を Table 9 に示す。スラッジ内の放射能の約 80% はマグネット攪拌子に付着した。この磁性を有するスラッジはステライトの摩耗粒子である。済液に溶解したスラッジ成分の gross γ activity は NaI(Tl) ウェルタイプシンチレーションデテクタからの距離 50 cm で 1.1×10^5 cpm であり、このデータからスラッジの L-106 IC 溶解した割合、すなわち DF を求めると 1.6 である。

また、実験中 25 時間ごとに溶液から 5 ml サンプリングして gross γ activity を測定した。結果を Fig. 18 に示す。スラッジの溶解は 50~100 時間で飽和に達することがわかった。

Table 9 Decantination experiment of sludge by L-106 solution.

試 料	試 験 条 件	試 験 前		試 験 後	
		表面線量率	gross γ activity	表面線量率	gross γ activity
スラッジ 約0.2 g	0.1% L-106 液 1 ℥に入れて, 60°C で100時間攪拌し, 連続溶解試験, 試験 後溶液を戻過。	戻液 1 ℥	2.5 mR/hr	1.1 × 10 ⁵ cpm	
(緊急重水汲上 回路よりサン プリング)		戻液 5 C 戻 紙		6.6 × 10 ⁴ cpm	
		0.45 μ ミリポアフィルタ		1.5 × 10 ³ cpm	
		マグネット 搅拌子	800mR/hr	1.0 × 10 ⁵ cpm	
		計		2.8 × 10 ⁵ cpm	
		D F		1.6	
ストレーナ (一次系重水サ ンプリング回 路より撤去)	0.1% L-106 液 1 ℥に釣糸で吊して 浸し, 60°Cで, 100時間攪拌し, 連 続除染試験, 試験 後溶液を戻過。	戻液 1 ℥ * 1.4 × 10 ⁵ cpm	ストレーナ 3 mR/hr	6 mR/hr 3 mR/hr	1.0 × 10 ⁵ cpm 6.2 × 10 ⁴ cpm
		戻液 5 C 戻 紙	B.G	B.G	B.G
		0.45 μ ミリポアフィルタ	B.G	B.G	B.G
		D F	1.0	1.4	

* 試験前, 試験後ともにウェルシンチレーションデテクタよりの距離 50cm

** " 5 cm

4.7.2 ストレーナの除染実験

一次系重水サンプリング系のストレーナの除染実験をするため、ストレーナが系内にあるときの表面線量率を測定した。ストレーナを Fig. 19 に示す。表面線量率は 40 mR/hr であった。このストレーナを系外に取出し、その表面線量率、gross γ activity を測定した。結果を Table 9 に示す。ストレーナ取出しの際にスラッジは重水とともにストレーナよりも低減されてしまい、ストレーナの表面線量率は 6 mR/hr に低下した。

このストレーナを $0.1\% \text{ L-106}$ 溶液 1ℓ にナイロン製釣糸で吊し、 60°C 、攪拌の状態で 100 時間連続除染実験した。実験中のサンプリング、測定は 4.7.1 と同様である。実験の結果、gross γ activity は 4.7.1 と同様に 50~100 時間で飽和した。溶解した activity の量から DF は 1.4 であった。

5. スラッジ内ウラン、プルトニウムの定量と L-106 による除染実験

緊急重水汲上回路からサンプリングしたスラッジを乾燥し、その粉末 142.01 mg をとり、 $0.1\% \text{ L-106}$ 溶液 1ℓ に入れ、 60°C 、攪拌の状態で 50 時間連続溶解させた。その後溶液を室温まで冷却し、 0.45μ ミリポア沪紙で減圧沪過した。沪液 500 ml を正確に分取し、赤外線ランプで静かに加熱し約 2 ml まで濃縮した。その濃縮液に過塩素酸 1 ml を加え、有機物を分解し、赤外線ランプで静かに加熱し、蒸発乾固した。次に 9 N 硝酸 5 ml を加えて溶解し、イオン交換樹脂によるウラン、プルトニウムの分離試料とした。分析ダイヤグラムを Fig. 20 に示す。イオン交換樹脂により分離されたウランはオキシン抽出分離—アルセナゾ III 光度法¹¹⁾ によって定量し、プルトニウムは 2π ガスフローカウンタによって定量した。また Si デテクタによってプルトニウムの α スペクトルも測定した。結果を Fig. 21 に示す。

この分析の結果、ウランは 2.2 mg 、プルトニウムは $3.84 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ ($6.1 \times 10^{-3} \mu\text{g}$) 検出された。

また、L-106 溶液の DF を求めるために、前記 $0.1\% \text{ L-106}$ 溶液減圧沪過後の残査に含まれるウラン、プルトニウムの定量を行った。残査をミリポア沪紙とともに 9 N 硝酸 30 ml に溶解し、赤外線ランプで静かに 1 時間加熱した。次に 65°C 沪紙で沪過し、沪液を赤外線ランプで蒸発乾固した。蒸発乾固後、 9 N 硝酸 5 ml 加えて、イオン交換樹脂によるウラン、プルトニウム分離試料とした。イオン交換樹脂による分離、ウランの定量、プルトニウムの定量は L-106 溶液沪液における操作と同じである。分析の結果、ウランは 0.11 mg 、プルトニウムは $2.22 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ ($3.6 \times 10^{-3} \mu\text{g}$) 検出された。

$0.1\% \text{ L-106}$ 溶液によるウランの DF は 21、プルトニウムの DF は 2.7 であった。また、スラッジ内のウラン量は 16.3 mg/g 、プルトニウムは $4.27 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/g}$ ($6.82 \times 10^{-2} \mu\text{g/g}$) であった。

4.7.2 ストレーナの除染実験

一次系重水サンプリング系のストレーナの除染実験をするため、ストレーナが系内にあるときの表面線量率を測定した。ストレーナを Fig. 19 に示す。表面線量率は 40 mR/hr であった。このストレーナを系外に取出し、その表面線量率、gross γ activity を測定した。結果を Table 9 に示す。ストレーナ取出しの際にスラッジは重水とともにストレーナよりドレンされてしまい、ストレーナの表面線量率は 6 mR/hr に低下した。

このストレーナを $0.1\% \text{ L-106}$ 溶液 1ℓ にナイロン製釣糸で吊し、 60°C 、攪拌の状態で 100 時間連続除染実験した。実験中のサンプリング、測定は 4.7.1 と同様である。実験の結果、gross γ activity は 4.7.1 と同様に 50~100 時間で飽和した。溶解した activity の量から DF は 1.4 であった。

5. スラッジ内ウラン、プルトニウムの定量と L-106 による除染実験

緊急重水汲上回路からサンプリングしたスラッジを乾燥し、その粉末 142.01 mg をとり、 $0.1\% \text{ L-106}$ 溶液 1ℓ に入れ、 60°C 、攪拌の状態で 50 時間連続溶解させた。その後溶液を室温まで冷却し、 $0.45 \mu\text{m}$ ミリポア沪紙で減圧沪過した。沪液 500 ml を正確に分取し、赤外線ランプで静かに加熱し約 2 ml まで濃縮した。その濃縮液に過塩素酸 1 ml を加え、有機物を分解し、赤外線ランプで静かに加熱し、蒸発乾固した。次に 9 N 硝酸 5 ml を加えて溶解し、イオン交換樹脂によるウラン、プルトニウムの分離試料とした。分析ダイヤグラムを Fig. 20 に示す。イオン交換樹脂により分離されたウランはオキシン抽出分離ーアルセナゾ III 光度法¹¹⁾によって定量し、プルトニウムは 2π ガスフローカウンタによって定量した。また Si テテクタによってプルトニウムの α スペクトルも測定した。結果を Fig. 21 に示す。

この分析の結果、ウランは 2.2 mg 、プルトニウムは $3.84 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ ($6.1 \times 10^{-3} \mu\text{g}$) 検出された。

また、L-106 溶液の DF を求めるために、前記 $0.1\% \text{ L-106}$ 溶液減圧沪過後の残査に含まれるウラン、プルトニウムの定量を行った。残査をミリポア沪紙とともに 9 N 硝酸 30 ml に溶解し、赤外線ランプで静かに 1 時間加熱した。次に 0.5 C 沪紙で沪過し、沪液を赤外線ランプで蒸発乾固した。蒸発乾固後、 9 N 硝酸 5 ml 加えて、イオン交換樹脂によるウラン、プルトニウム分離試料とした。イオン交換樹脂による分離、ウランの定量、プルトニウムの定量は L-106 溶液沪液における操作と同じである。分析の結果、ウランは 0.11 mg 、プルトニウムは $2.22 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ ($3.6 \times 10^{-3} \mu\text{g}$) 検出された。

$0.1\% \text{ L-106}$ 溶液によるウランの DF は 21、プルトニウムの DF は 27 であった。また、スラッジ内のウラン量は 16.3 mg/g 、プルトニウムは $4.27 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/g}$ ($6.82 \times 10^{-2} \mu\text{g/g}$) であった。

6. 結 果 と 考 察

除染剤L-106に関する性能実験の結果、次の点が確認できた。

- 1) 水に対する溶解は0.5%が限界である。化学除染に使用する濃度の約5倍の濃度であり、JRR-3に適用する場合、バッチ法により重水にL-106を溶解させるには、L-106 27kgを約5m³の重水に溶解させなければならない。この操作は相当困難になると予想されるが、連続溶解法を採用すればこの問題は解決されよう。
- 2) L-106を重水に溶解させても0.1%程度の濃度では重水の濃度低下は無視できる。¹²⁾
- 3) L-106の中にはEDTAが含まれている。
- 4) 重水中のL-106は金属イオンを溶解するが、陽イオン交換樹脂層を通過させることにより約30%再生されて、その再生されたL-106は再び系内除染に作用する。陽イオン交換樹脂による再生率が約30%であるのは次の理由によるものと思われる。

溶解している金属がpH2~3のとき、



のようにEDTAと反応して、金属は陰イオンのキレート化合物を作る。したがって、陽イオン交換樹脂では除去できないものと考えられる。しかし、L-106の組成の中でEDTAの他の混合物と考えられているシュウ酸、クエン酸等が、金属と反応して金属陽イオンを作るものと思われる。これらの金属陽イオンが陽イオン交換樹脂によって除去されるため、再生率が約30%であることが実験により確認できたものと思われる。

- 5) 重水中のL-106および溶解除染されたイオンは、陰イオン交換樹脂により完全に除去できる。したがって、放射性廃液が生じることなく、固体廃棄物のみを生じる。
- 6) 原子炉構造材に対する腐食は無視できるほど小さく、その中でも一番問題視されるアルミニウムの溶解は約150ppmで飽和する。JRR-3一次系全重水がこの濃度で飽和すると、溶解するアルミニウムの量は約4kgである。重水中のL-106を陽イオン交換樹脂で再生しながら100時間化学除染を実施した場合でも全体で約10kgのアルミニウムの溶出となる。このアルミニウムが炉心を含めたアルミニウム構造材全体の表面より一様に溶出するものとすると、その腐食量は5.5~13.4μであり無視できる程度である。
- 7) 耐放射線性がある。炉心を含む一次系全体を化学除染しようとすると、運転停止中炉心内の放射線(熱中性子束, $6 \times 10^7 n/cm^2 \cdot sec$, γ 線量率 $3 \times 10^4 R/hr$ 推定)に対するL-106の放射線分解が問題となるが、実験の結果、化学除染時間が100時間以下ならL-106溶液の放射線分解なしに適用できる。
- 8) ステライト金属摩耗粒子をL-106溶液は溶解させることができず、したがってDFも小さい。AECIで実施したCAN DECON法によるとDFは2~4となっているが、これはCAN DU系の炭素鋼についての結果で、炭素鋼表面の CaO , Fe_3O_4 等の酸化物の溶解に効果があった。JRR-3一次系内スラッジの放射性物質のほとんどがステライト摩

耗による金属粒子であり酸化物にはなっていない。L-106 溶液ではそれらを溶解除染することは困難である。

9) ウラン、プルトニウムに対するDFは大きく、JRR-3のようにウラン、プルトニウムのような α 核種によって汚染されている一次系について適用できうる。ウランについてのDFは約21、プルトニウムについては約3であった。

実験の結果をもとに、L-106 を除染剤とするCAN DECON法をJRR-3一次系化学除染に適用した場合の有効性について検討した。

炉心内アルミニウム構造材表面のバイヤライト層($Al_2O_3 \cdot 3H_2O$)に存在するウラン、プルトニウム等の α 核種およびF.P.はバイヤライトがL-106 に溶解すると同時にL-106 に溶解され、除染されるものと判断できる。一次系スラッジによる除染実験では、ウランについてDF約20、プルトニウムについてDF約3という結果を得ており、それらの除染には効果を発揮する。

JRR-3一次系にL-106 27kg を重水に溶解可能な装置をとりつけ、60°Cの一次系重水に溶解させる。重水の温度上昇は主重水ポンプの発熱を利用するとともに、熱交換器の二次側にスチームを通すことにより行われる。重水に溶解したL-106 は一次系に循環して化学除染を行う。化学除染できる時間はL-106 の耐放射線性から100時間程度、L-106 の除染能力から50~60 時間程度が限界であろうと思われる。除染工程で陽イオン交換樹脂でL-106 溶液を通して、L-106 溶液を再生する操作を加えることにより、L-106 の除染能力を約100時間まで延長することが可能であろう。いずれにしてもL-106 の耐放射線性から除染時間は100時間以内に限定されるが、 α 核種およびF.P.の除染には充分であろうと思われる。

化学除染工程中に陽イオン交換樹脂でL-106 を再生する操作を加えるとすれば、陽イオン交換樹脂約370ℓ を必要とし、JRR-3一次系重水精製イオン交換樹脂塔約5基分に相当する。

化学除染終了後、重水中のL-106 およびL-106 に溶解した放射性物質やアルミニウム等は、陰イオン交換樹脂に吸着除去されて、重水中の不純物はなくなる。この時陰イオン交換樹脂を約800ℓ 必要とし、それはイオン交換樹脂塔10基分に相当する。

7. まとめ

本調査、実験の結果次のようなことがわかった。

ステライト合金の摩耗粒子は化学的に安定で除染剤L-106 は溶解できないため、ポンプルーム内の空間線量率を低下させるのには、物理的な除染方法を採用する必要がある。

除染剤L-106 を使用するCAN DECON 法は、JRR-3のような重水減速、重水冷却型で炉心構造材がアルミニウムである原子炉には最適な化学除染方法であり、とくに

耗による金属粒子であり酸化物にはなっていない。L-106 溶液ではそれらを溶解除染することは困難である。

9) ウラン、プルトニウムに対するDFは大きく、JRR-3のようにウラン、プルトニウムのような α 核種によって汚染されている一次系について適用できうる。ウランについてのDFは約21、プルトニウムについては約3であった。

実験の結果をもとに、L-106 を除染剤とするCAN DECON法をJRR-3一次系化学除染に適用した場合の有効性について検討した。

炉心内アルミニウム構造材表面のバイヤライト層($Al_2O_3 \cdot 3H_2O$)に存在するウラン、プルトニウム等の α 核種およびF.P.はバイヤライトがL-106 に溶解すると同時にL-106 に溶解され、除染されるものと判断できる。一次系スラッジによる除染実験では、ウランについてDF約20、プルトニウムについてDF約3という結果を得ており、それらの除染には効果を發揮する。

JRR-3一次系にL-106 27kg を重水に溶解可能な装置をとりつけ、60°Cの一次系重水に溶解させる。重水の温度上昇は主重水ポンプの発熱を利用するとともに、熱交換器の二次側にスチームを通すことにより行われる。重水に溶解したL-106 は一次系に循環して化学除染を行う。化学除染できる時間はL-106 の耐放射線性から100時間程度、L-106 の除染能力から50~60 時間程度が限界であろうと思われる。除染工程で陽イオン交換樹脂にL-106 溶液を通して、L-106 溶液を再生する操作を加えることにより、L-106 の除染能力を約100時間まで延長することが可能であろう。いずれにしてもL-106 の耐放射線性から除染時間は100時間以内に限定されるが、 α 核種およびF.P.の除染には充分であろうと思われる。

化学除染工程中に陽イオン交換樹脂でL-106 を再生する操作を加えるとすれば、陽イオン交換樹脂約370ℓ を必要とし、JRR-3一次系重水精製イオン交換樹脂塔約5基分に相当する。

化学除染終了後、重水中のL-106 およびL-106 に溶解した放射性物質やアルミニウム等は、陰イオン交換樹脂に吸着除去されて、重水中の不純物はなくなる。この時陰イオン交換樹脂を約800ℓ 必要とし、それはイオン交換樹脂塔10基分に相当する。

7. まとめ

本調査、実験の結果次のようなことがわかった。

ステライト合金の摩耗粒子は化学的に安定で除染剤L-106 は溶解できないため、ポンプルーム内の空間線量率を低下させるのには、物理的な除染方法を採用する必要がある。

除染剤L-106 を使用するCAN DECON 法は、JRR-3のような重水減速、重水冷却型で炉心構造材がアルミニウムである原子炉には最適な化学除染方法であり、とくに

JRR-3の場合、 α 核種やF.P.の除染に効果的である。JRR-3一次系機器保守作業における α 核種による被曝防止と、JRR-3改造に伴う原子炉解体時の α 汚染廃棄物を最小量にするため、除染剤L-106による化学除染に着手する計画である。

謝 詞

本実験を実施するにあたり種々御指導いただいた桜井JRR-3管理課長、宮坂JRR-2管理課長代理およびウラン、プルトニウムのイオン交換樹脂による分離の御指導とプルトニウムの定量測定をしていただいた燃焼率測定開発室、梅沢弘一氏、市川進一氏に感謝の意を表します。また試料のサンプリング他で金成JRR-3管理課第三係長、試料の照射で研究炉利用課の皆様に御協力いただいたことに深謝いたします。

参考文献

- (1) W.E. Sande et al., Decontamination and Decommissioning of Nuclear Facilities - A Literature Search, BNWL-1917, May 1975.
- (2) J.A. Ayres, Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, 1970.
- (3) F.C. Brandt et al., Brennelementendefekt und Dekontamination des Reaktor DIORIT, EIR-Bericht Nr. 150, Sep. 1969.
- (4) J.A. Ayres et al., Decontamination of the Plutonium Recycle Test Reactor, HW-75557, May 1963.
- (5) Ronald D. Weed, Decontamination of the Plutonium Recycle Test Reactor, BNWL-711, March 1968.
- (6) 特許公報, 昭45-37360。
- (7) J.A. Ayres et al., Decontamination of a PWR, Nucleonics 25, #4, 58, 1967.
- (8) P.J. Pettit, Decontamination of CANDU Primary Coolant System, Activity Transport in CANDUS, AECL-5113, Nov. 18, 1974.
- (9) B. Montford, Decontamination of the Douglas Point Generating Station by Cycling Techniques, AECL-4435, Oct. 1973.
- (10) Ebara-Infilco Co. Ltd, Dresden 1, Chemical Cleaning Licensing Submittal, Dec. 16, 1974.
- (11) 本島健次, 山本忠史, 加藤義春, オキシン抽出分離—アルセナゾⅢ光度法による微量ウランの定量, 分析化学 vol 18, #2, 208, 1969.
- (12) 研究炉管理部, 研究炉・ホットラボの運転と技術管理, JAERI-M 6776, 1976.

JRR-3の場合、 α 核種やF.P.の除染に効果的である。JRR-3一次系機器保守作業における α 核種による被曝防止と、JRR-3改造に伴う原子炉解体時の α 汚染廃棄物を最小量にするため、除染剤L-106による化学除染に着手する計画である。

謝 詞

本実験を実施するにあたり種々御指導いただいた桜井JRR-3管理課長、宮坂JRR-2管理課長代理およびウラン、プルトニウムのイオン交換樹脂による分離の御指導とプルトニウムの定量測定をしていただいた燃焼率測定開発室、梅沢弘一氏、市川進一氏に感謝の意を表します。また試料のサンプリング他で金成JRR-3管理課第三係長、試料の照射で研究炉利用課の皆様に御協力いただいたことに深謝いたします。

参考文献

- (1) W.E. Sande et al., Decontamination and Decommissioning of Nuclear Facilities - A Literature Search, BNWL-1917, May 1975.
- (2) J.A. Ayres, Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, 1970.
- (3) F.C. Brandt et al., Brennelementendefekt und Dekontamination des Reaktor DIORIT, EIR-Bericht Nr. 150, Sep. 1969.
- (4) J.A. Ayres et al., Decontamination of the Plutonium Recycle Test Reactor, HW-75557, May 1963.
- (5) Ronald D. Weed, Decontamination of the Plutonium Recycle Test Reactor, BNWL-711, March 1968.
- (6) 特許公報, 昭45-37360。
- (7) J.A. Ayres et al., Decontamination of a PWR, Nucleonics 25, #4, 58, 1967.
- (8) P.J. Pettit, Decontamination of CANDU Primary Coolant System, Activity Transport in CANDUS, AECL-5113, Nov. 18, 1974.
- (9) B. Montford, Decontamination of the Douglas Point Generating Station by Cycling Techniques, AECL-4435, Oct. 1973.
- (10) Ebara-Infilco Co. Ltd, Dresden 1, Chemical Cleaning Licensing Submittal, Dec. 16, 1974.
- (11) 本島健次, 山本忠史, 加藤義春, オキシン抽出分離—アルセナゾ比光度法による微量ウランの定量, 分析化学 vol 18, #2, 208, 1969.
- (12) 研究炉管理部, 研究炉・ホットラボの運転と技術管理, JAERI-M 6776, 1976.

JRR-3の場合、 α 核種やF.P.の除染に効果的である。JRR-3一次系機器保守作業における α 核種による被曝防止と、JRR-3改造に伴なう原子炉解体時の α 汚染廃棄物を最小量にするため、除染剤L-106による化学除染に着手する計画である。

謝 評

本実験を実施するにあたり種々御指導いただいた桜井JRR-3管理課長、宮坂JRR-2管理課長代理およびウラン、プルトニウムのイオン交換樹脂による分離の御指導とプルトニウムの定量測定をしていただいた燃焼率測定開発室、梅沢弘一氏、市川進一氏に感謝の意を表します。また試料のサンプリング他で金成JRR-3管理課第三係長、試料の照射で研究炉利用課の皆様に御協力いただいたことに深謝いたします。

参考文献

- (1) W.E. Sande et al., Decontamination and Decommissioning of Nuclear Facilities - A Literature Search, BNWL-1917, May 1975.
- (2) J.A. Ayres, Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment, 1970.
- (3) F.C. Brandt et al., Brennelementendefekt und Dekontamination des Reaktor DIORIT, EIR-Bericht Nr. 150, Sep. 1969.
- (4) J.A. Ayres et al., Decontamination of the Plutonium Recycle Test Reactor, HW-75557, May 1963.
- (5) Ronald D. Weed, Decontamination of the Plutonium Recycle Test Reactor, BNWL-711, March 1968.
- (6) 特許公報, 昭45-37360。
- (7) J.A. Ayres et al., Decontamination of a PWR, Nucleonics 25, №4, 58, 1967.
- (8) P.J. Pettit, Decontamination of CANDU Primary Coolant System, Activity Transport in CANDUS, AECL-5113, Nov. 18, 1974.
- (9) B. Montford, Decontamination of the Douglas Point Generating Station by Cycling Techniques, AECL-4435, Oct. 1973.
- (10) Ebara-Infilco Co. Ltd, Dresden 1, Chemical Cleaning Licensing Submittal, Dec. 16, 1974.
- (11) 本島健次, 山本忠史, 加藤義春, オキシン抽出分離—アルセナゾⅢ光度法による微量ウランの定量, 分析化学 vol 18, №2, 208, 1969.
- (12) 研究炉管理部, 研究炉・ホットラボの運転と技術管理, JAERI-M 6776, 1976.

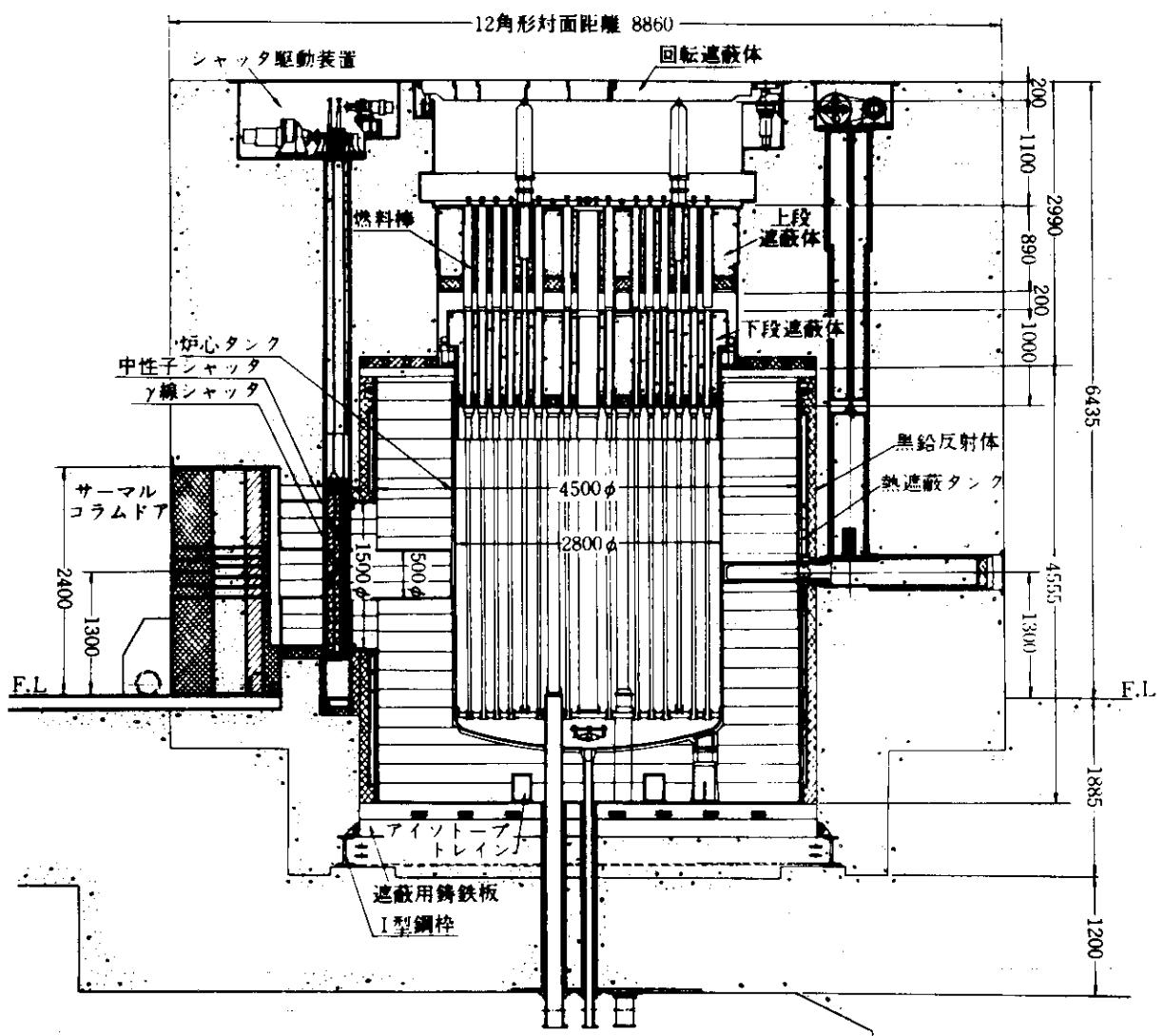


Fig. 1 JRR-3 vertical cross section

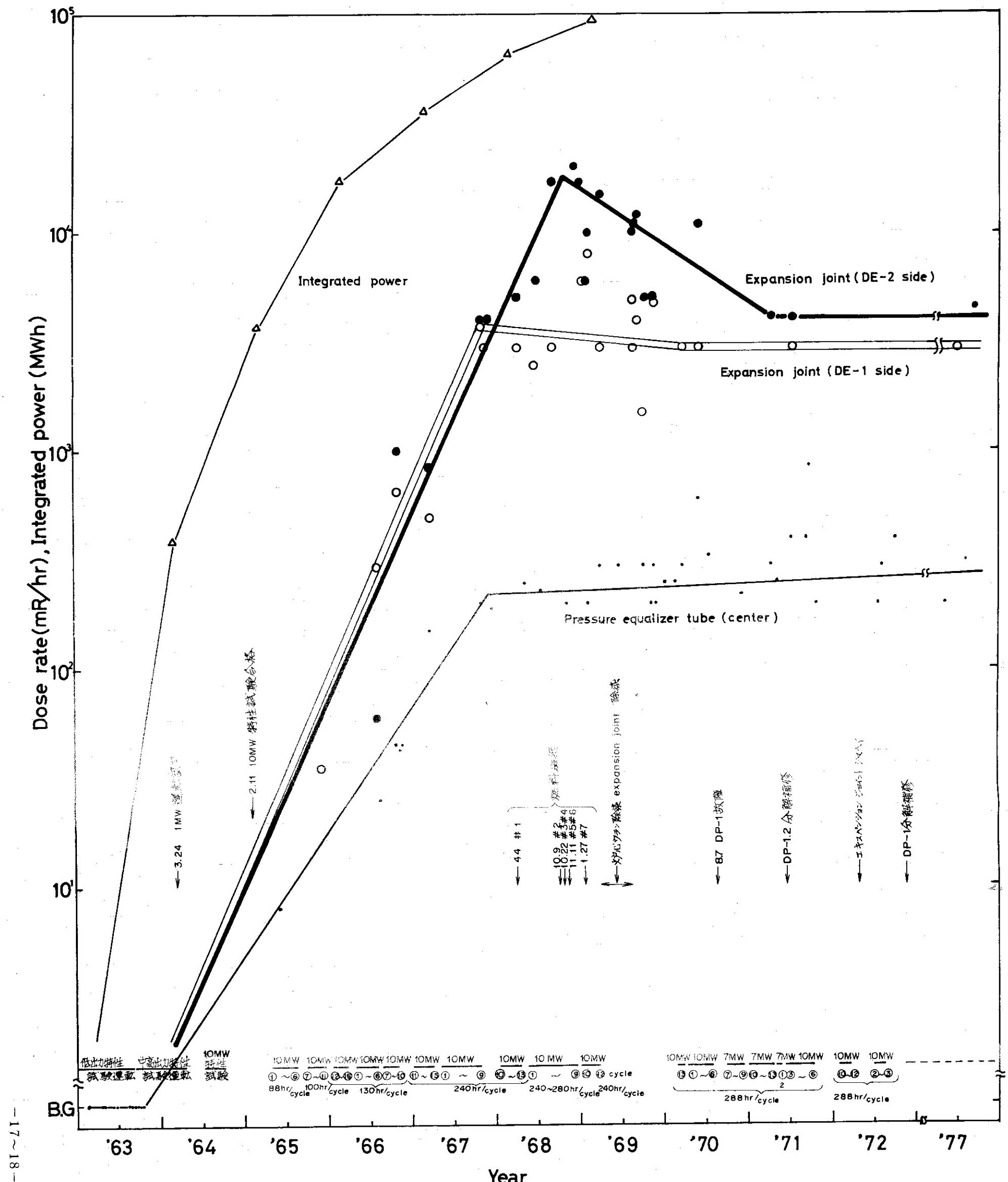


Fig. 2 Dose rates at expansion joint and pressure equalizer tube in JRR-3 primary system.

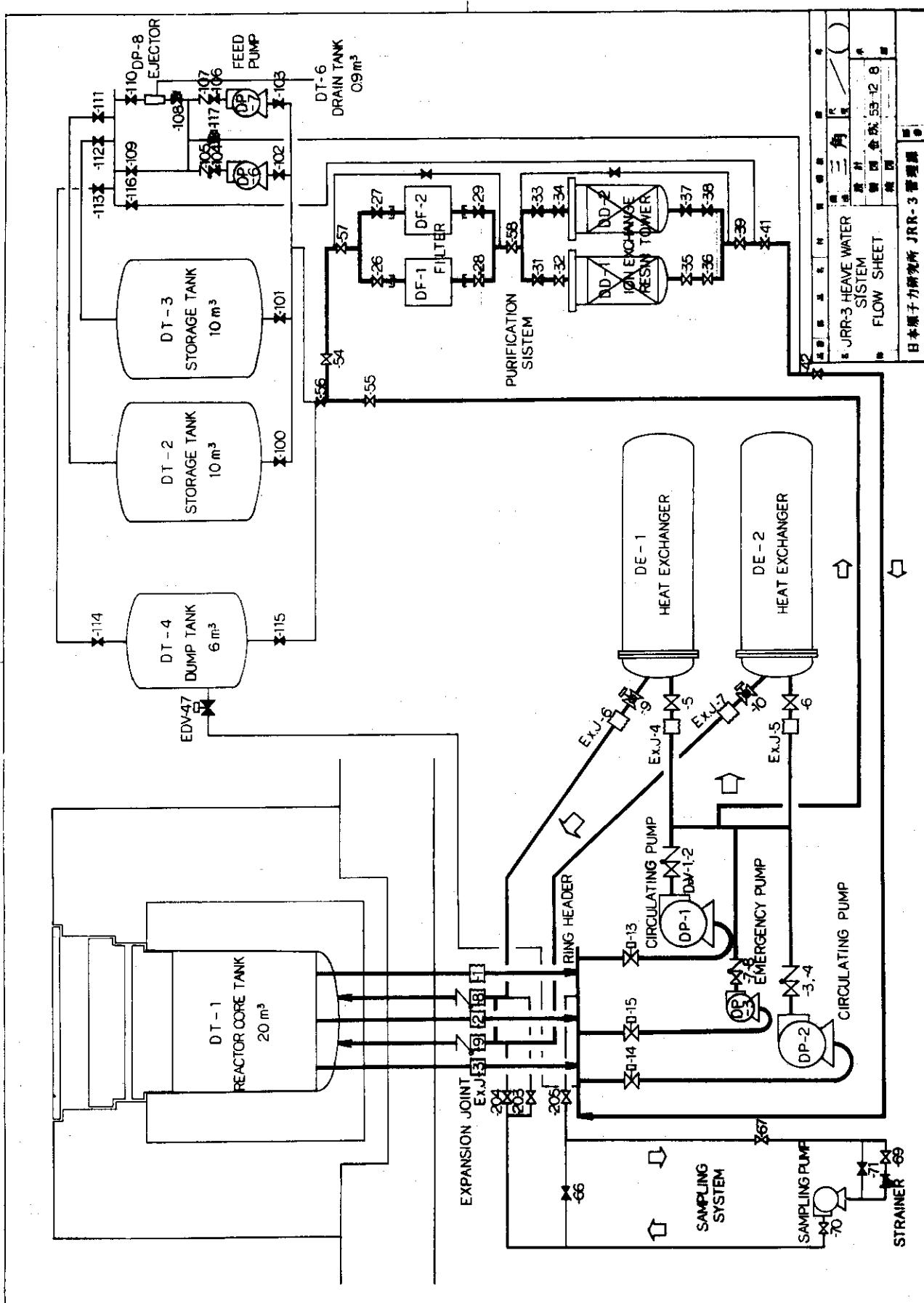


Fig. 3 JRR-3 heavy water system

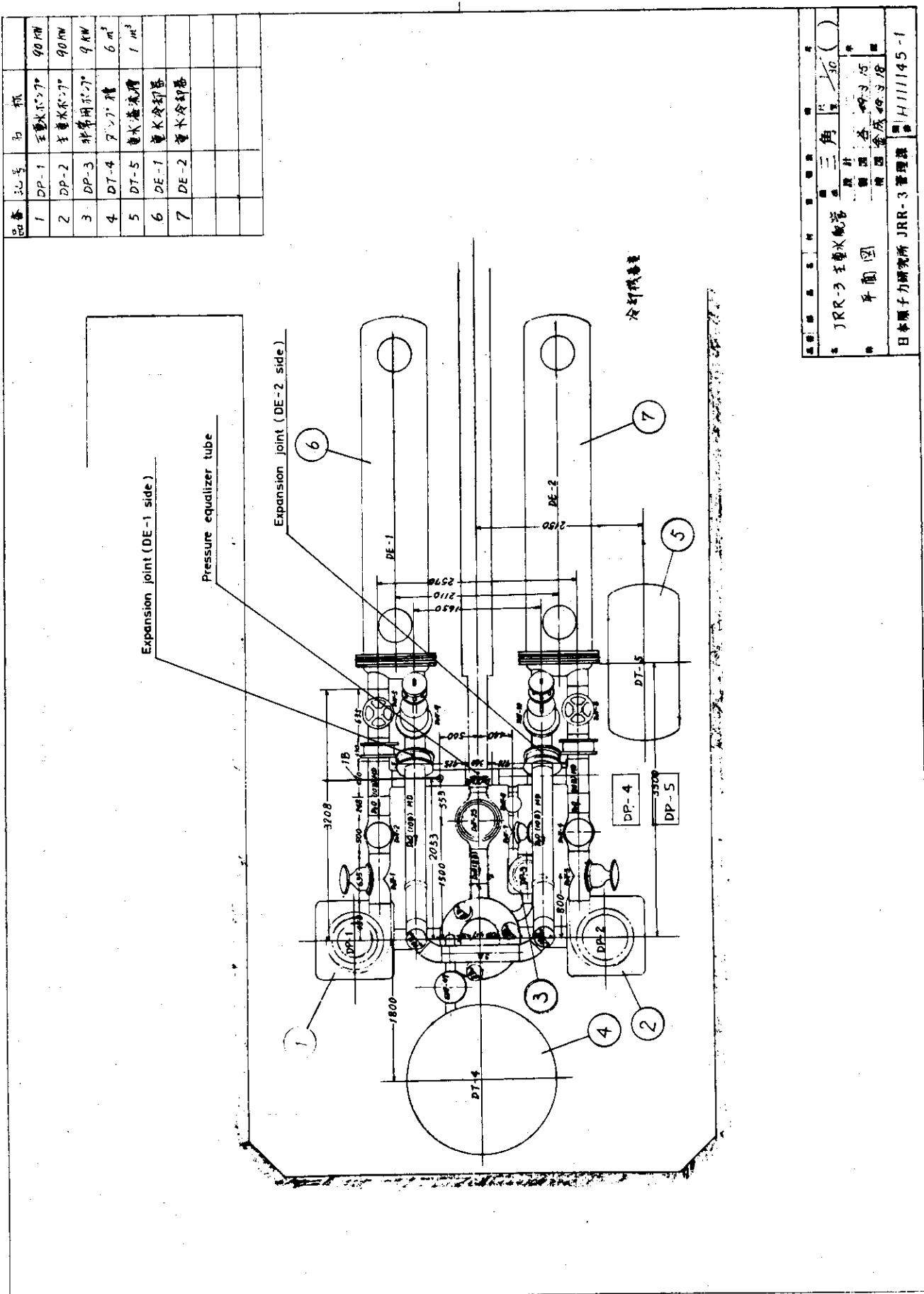
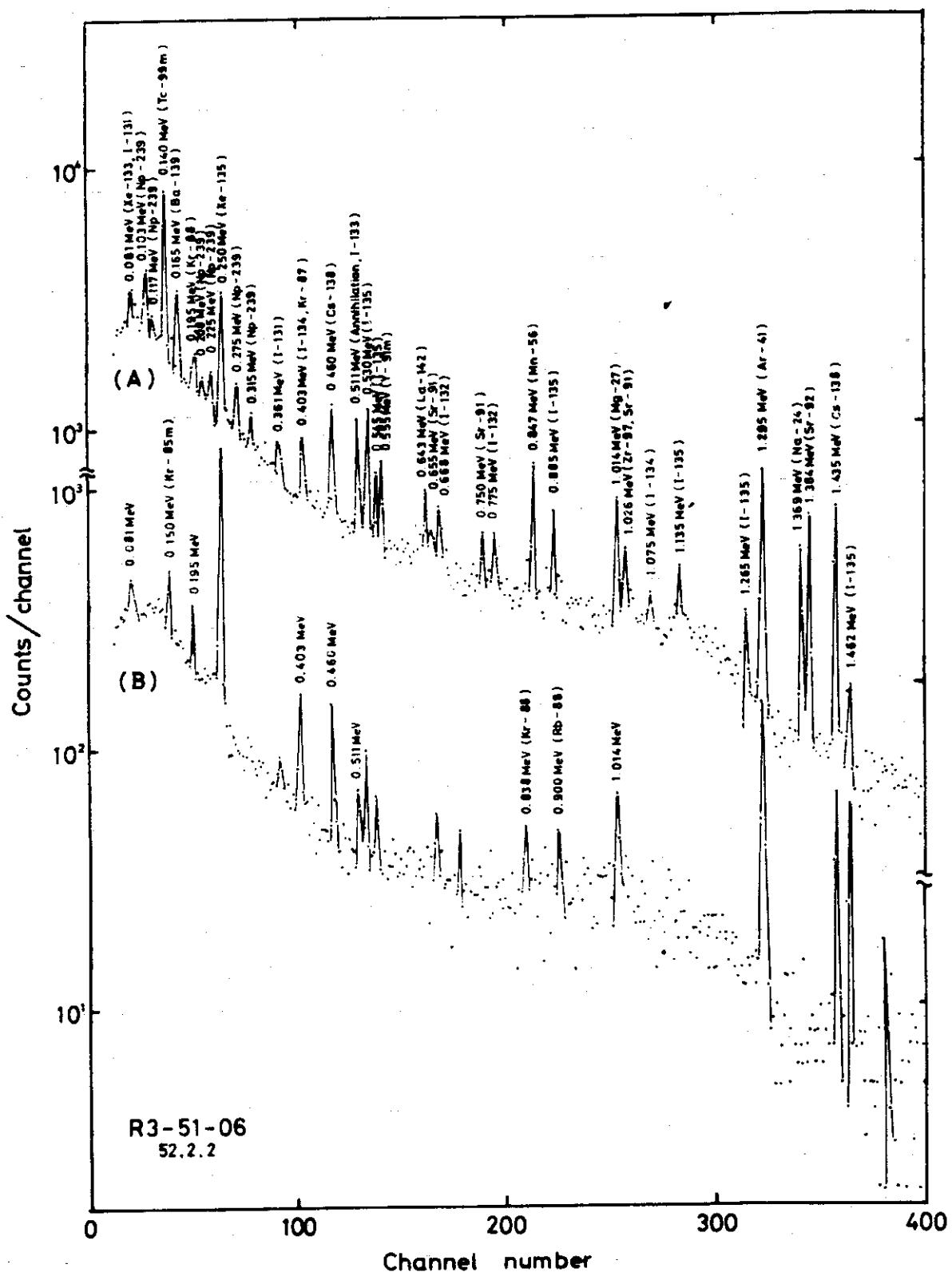
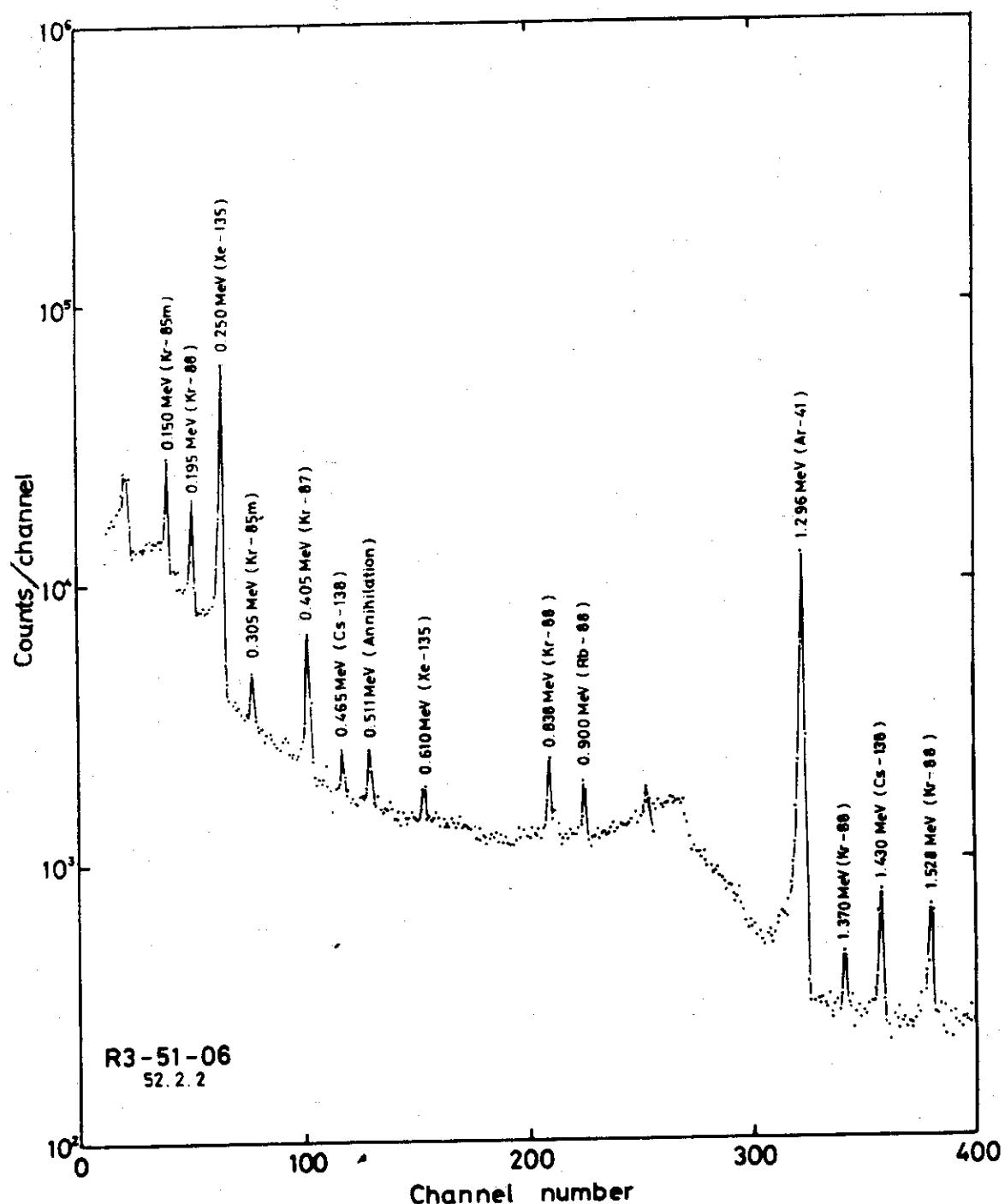


Fig. 4 JRR-3 pump room horizontal layout.



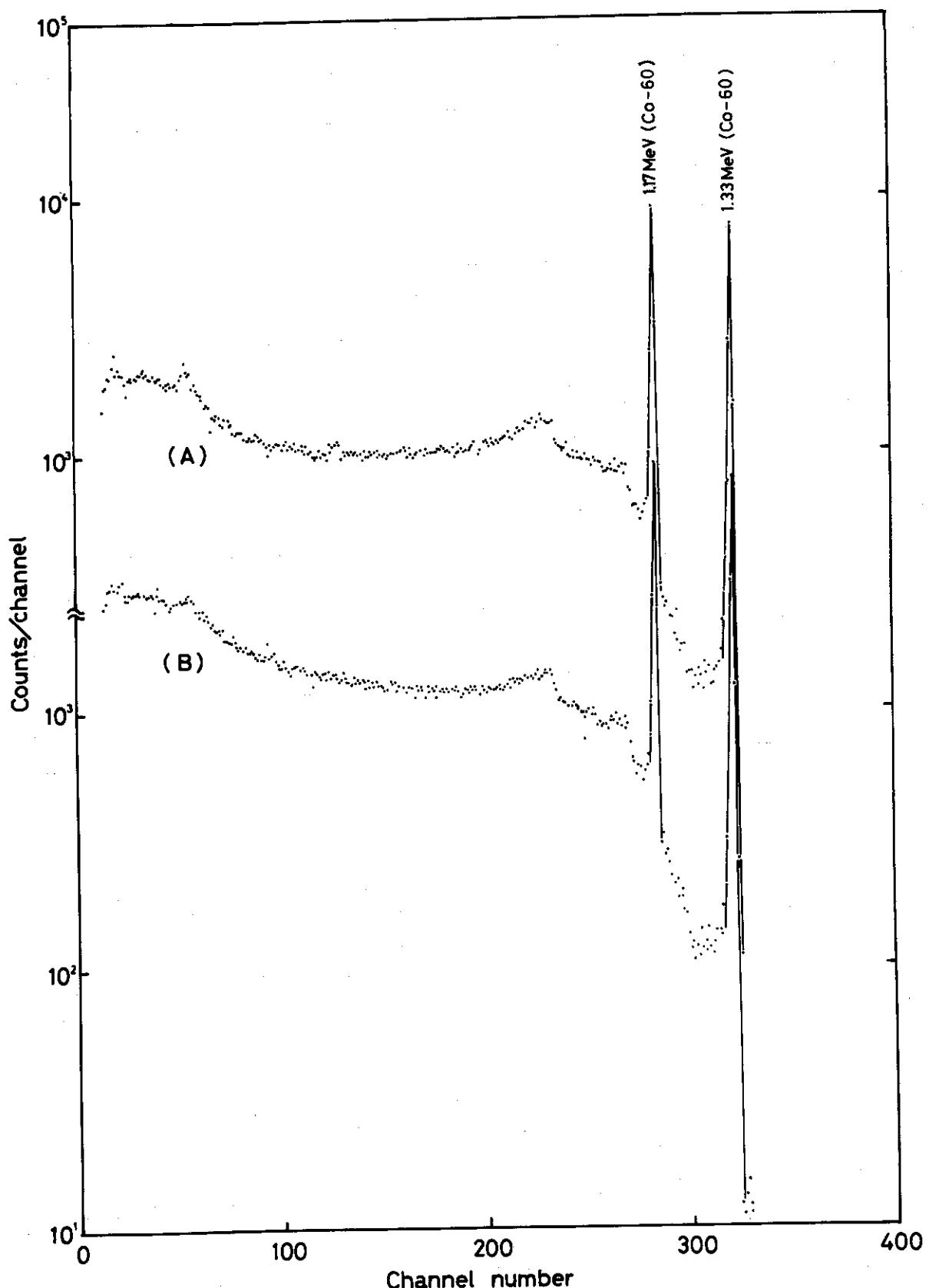
Sample	Samp.time	Meas.time	L.T.(sec)	Samp.vol(ml)
(A) Main D ₂ O	13:35	14:30	600	5
(B) Puri. D ₂ O	13:40	14:40	600	5

Fig. 5 γ -ray spectra of JRR-3 heavy water at 10MW



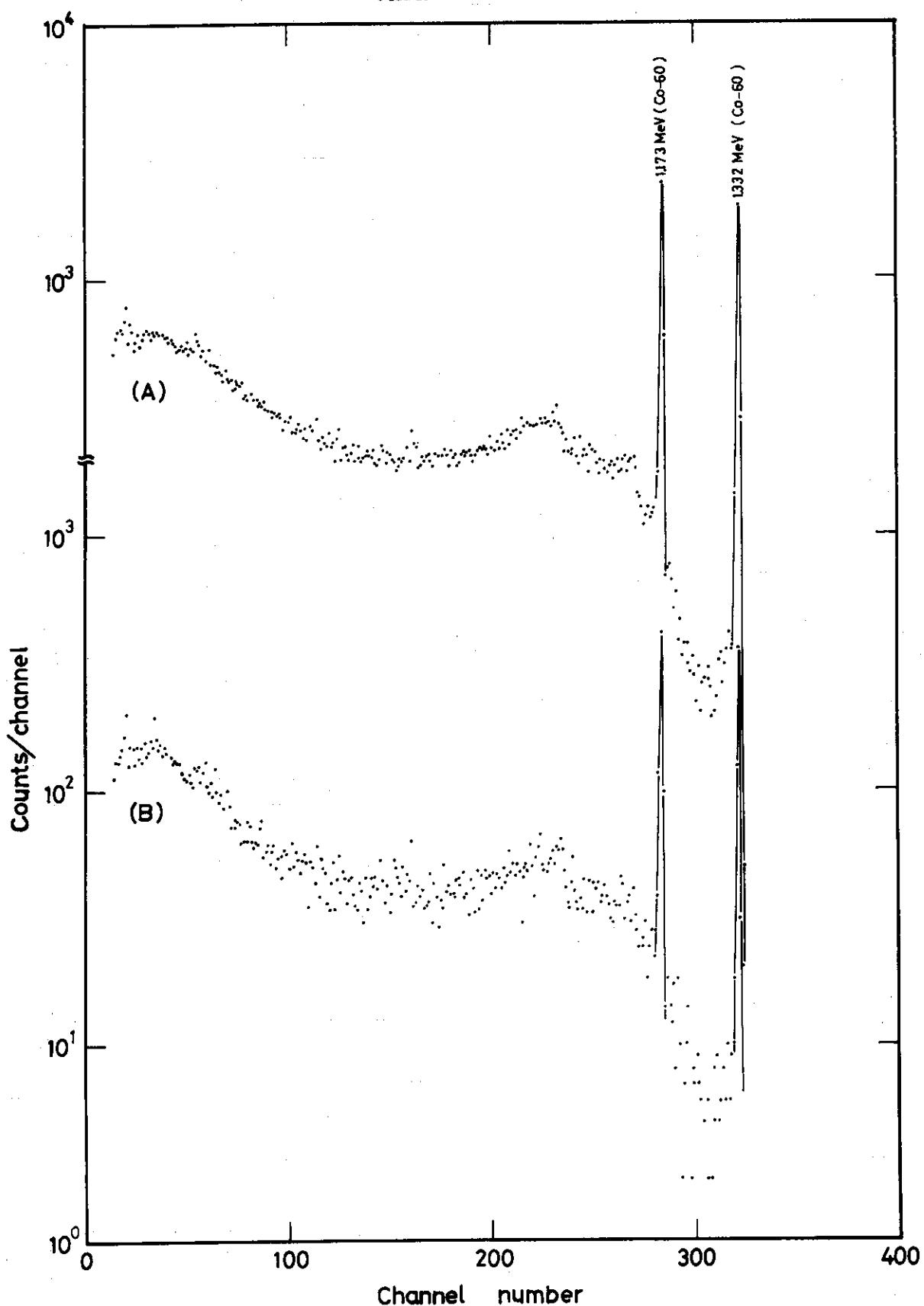
Sample	Samp.time	Meas.time	L.T.(sec)	Samp.vol.(ml)
He gas	13:45	14:15	300	100

Fig. 6 γ -ray spectrum of JRR-3 helium gas at 10MW



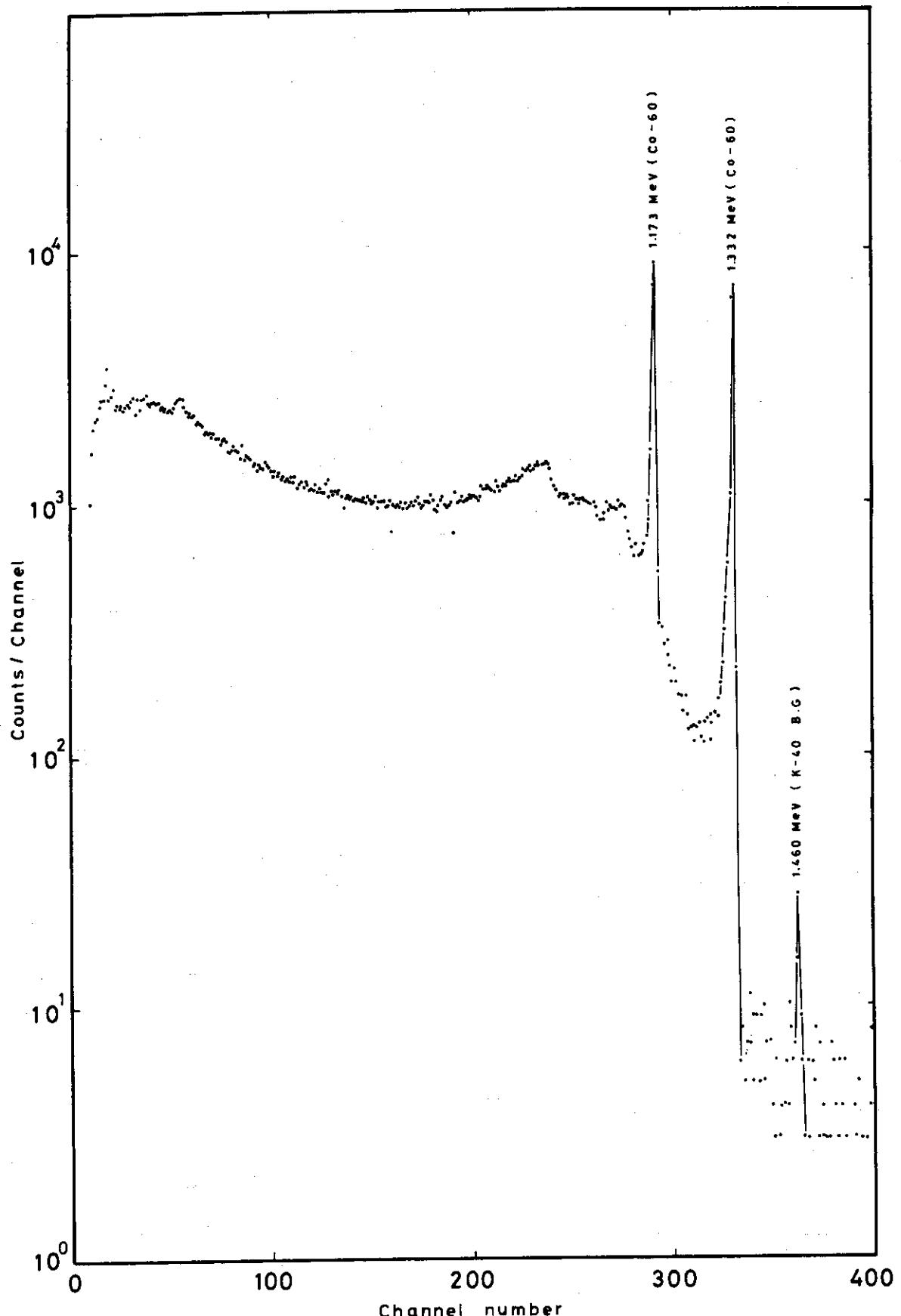
	Sample	distance from detector	L.T.	dose rate
(A)	powder (white)	1500 cm	300 sec	1 R/hr
(B)	stelite powder (magnetized)	45 cm	300 sec	100 mR/hr

Fig. 7 γ -ray spectra of sludge in JRR-3 primary system.



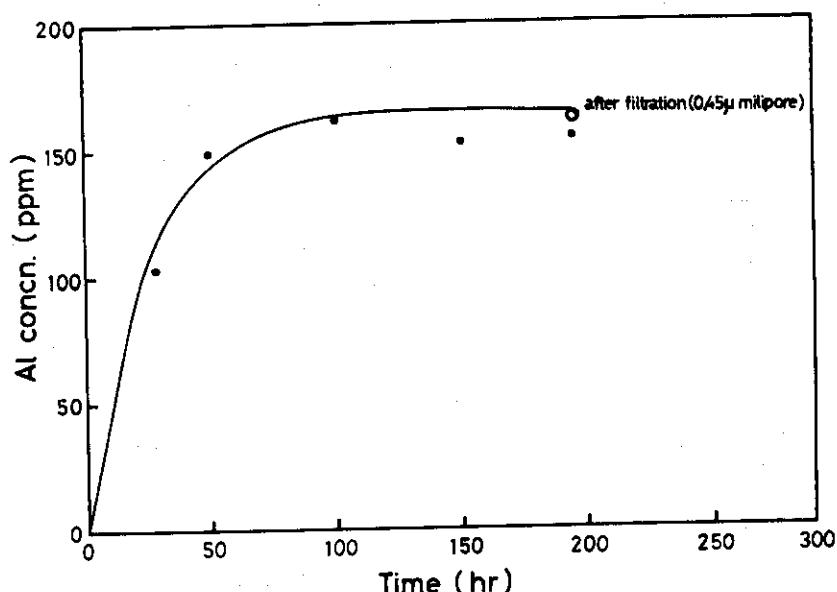
	Sample	distance from detector	L.T.	dose rate
(A)	metal plate ($10 \times 3 \times 2$ mm)	5 cm	300 sec	4 mR/hr
(B)	powder (Black)	0 cm	300 sec	0.4 mR/hr

Fig. 8 γ -ray spectra of sludge in JRR-3 primary system.



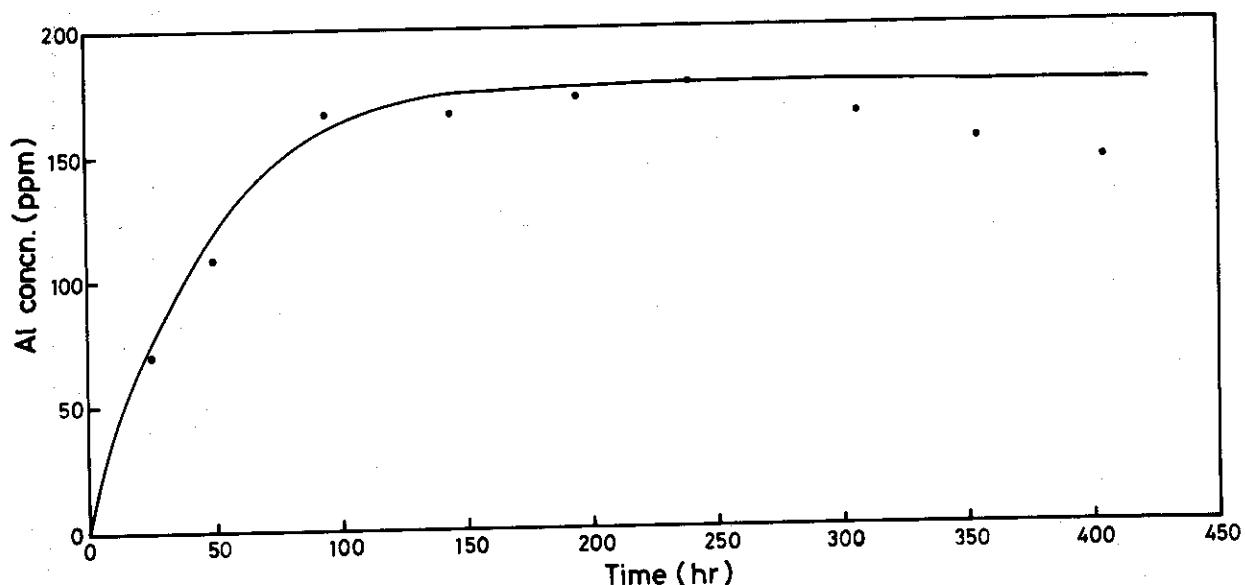
Sample distance from detector. L.T. dose rate
 ion exchange resin 10 cm 300 sec 15mR/hr

Fig. 9 γ - ray spectrum of sludge in JRR-3 primary system.



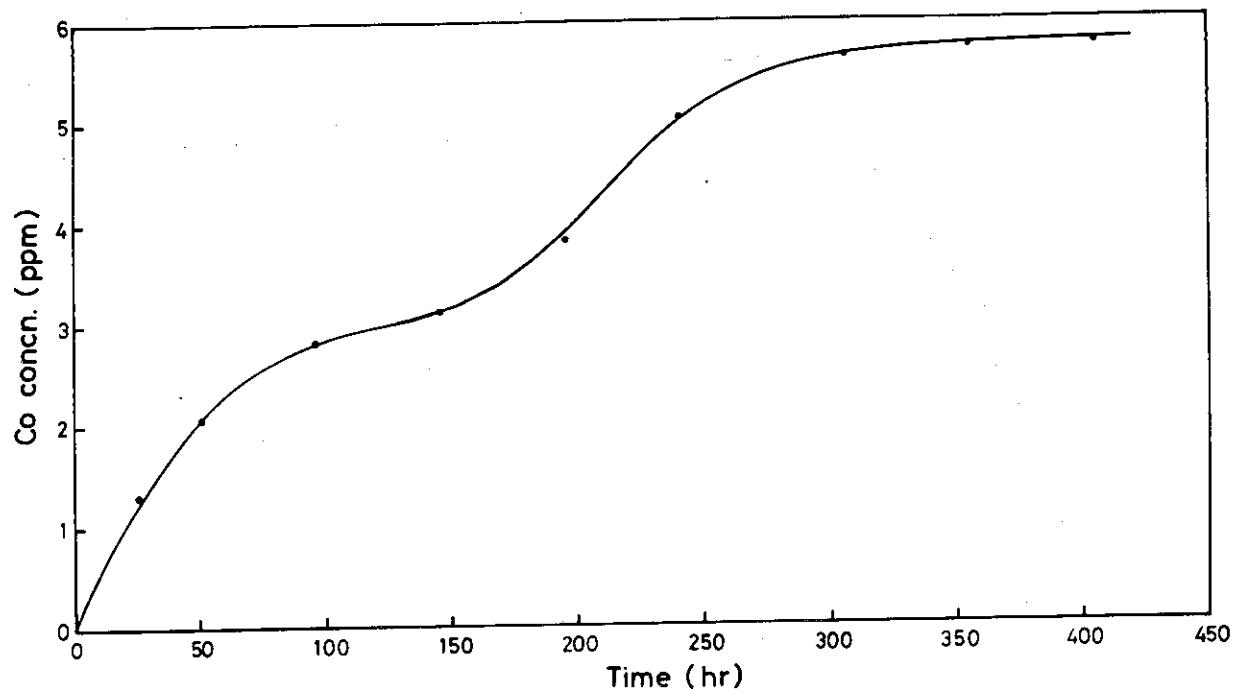
L-106 solution : concen. 0.1%, volume 1ℓ, temp. 60°C, stirred up.
test piece : SUS 304 plate, Al 5052 plate, Neoprene plate.

Fig. 10 Concentration of aluminium in L-106 solution.



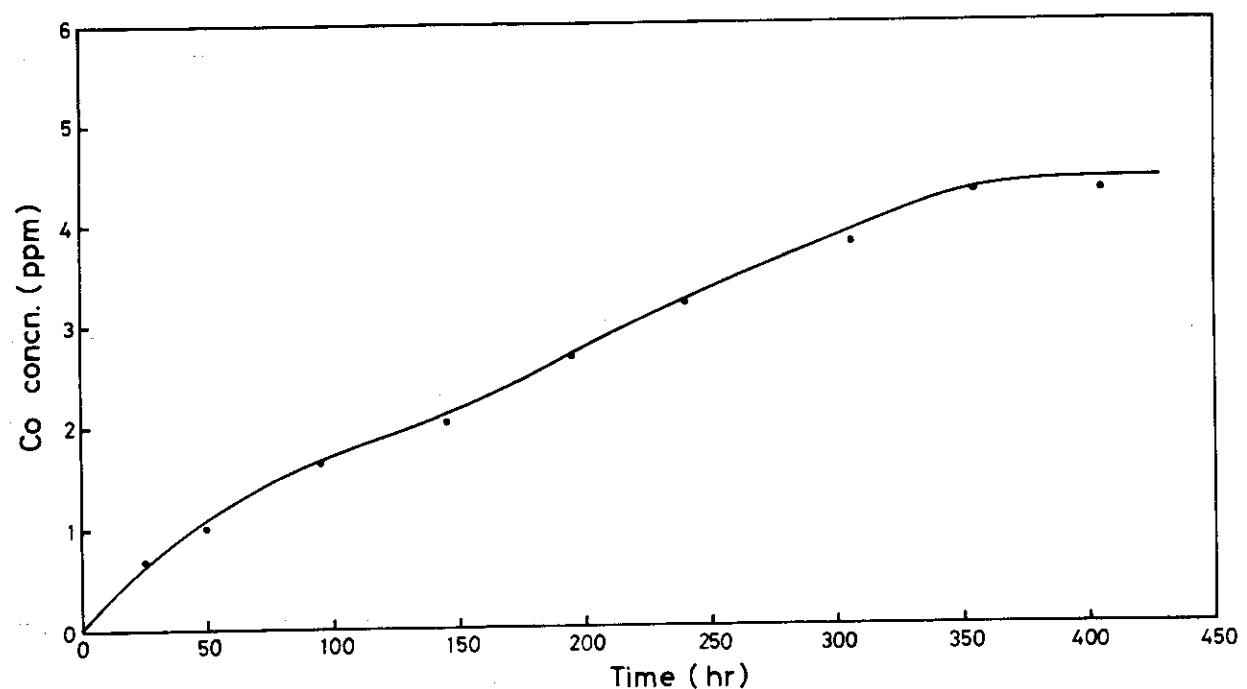
L-106 solution : concen. 0.1%, volume 1ℓ, temp. 60°C, stirred up.
test piece : SUS 304 plate, Al 5052 plate, stellite powder
(less 62μ) 0.1g.

Fig. 11 Concentration of aluminium in L-106 solution.



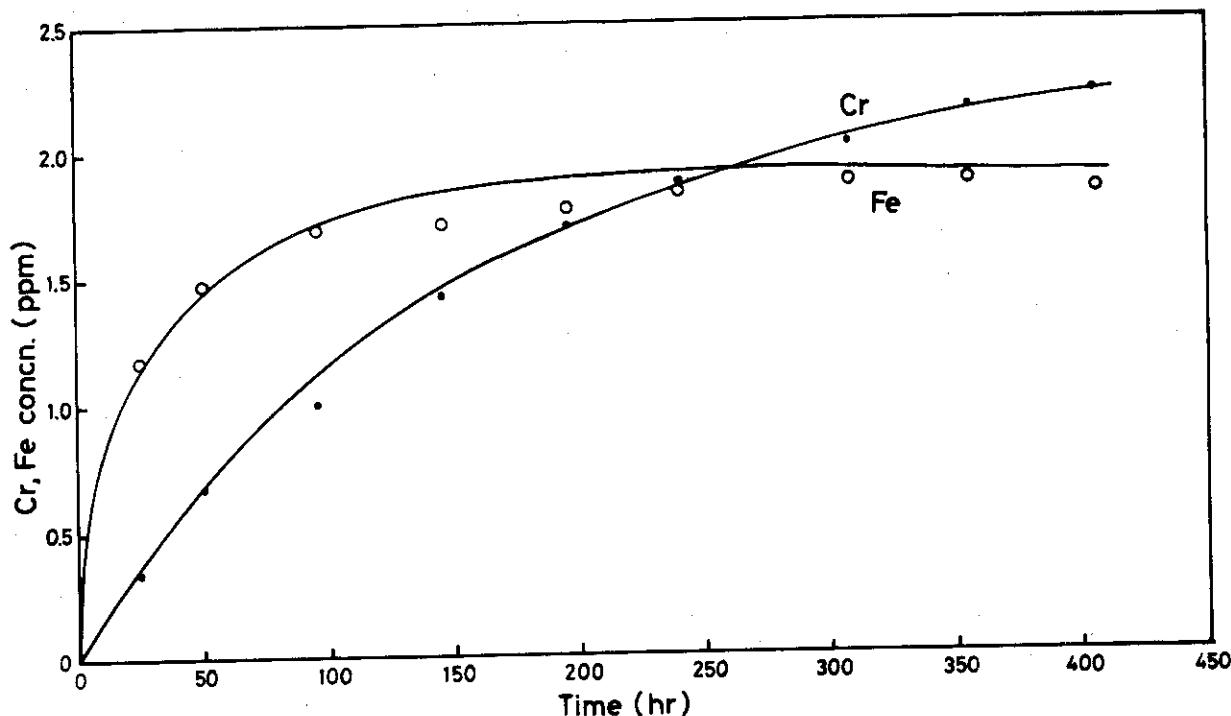
L-106 solution: concen. 0.1%, volume 1ℓ, temp. 60°C, stirred up.
test piece: SUS 304 plate, Al 5052 plate, stellite powder
(less 62μ) 0.1g.

Fig. 12 Concentration of cobalt in L-106 solution.



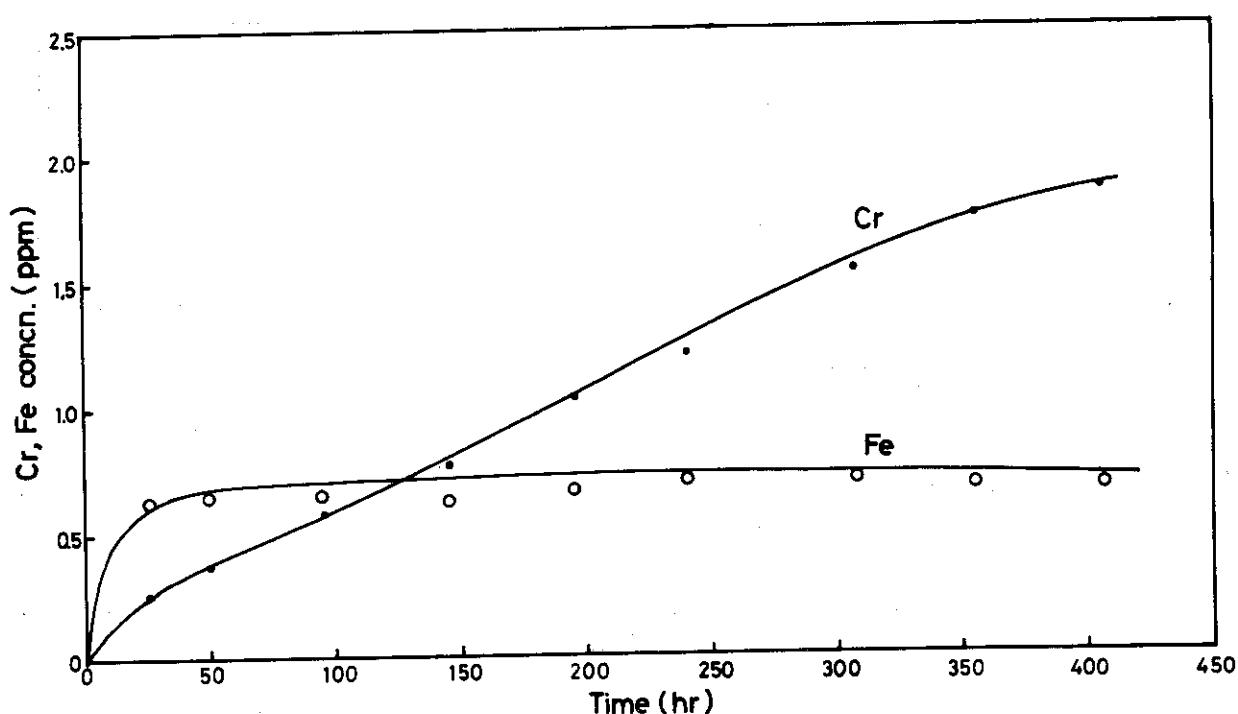
L-106 solution: concen. 0.1%, volume 1ℓ, temp. 60°C, stirred up.
test piece: stellite powder (less 62μ) 0.1g.

Fig. 13 Concentration of cobalt in L-106 solution.



L-106 solution: concn. 0.1%, volume 1ℓ, temp. 60°C, stirred up.
test piece: SUS 304 plate, Al 5052 plate, stellite powder
(less 62μ) 0.1 g.

Fig. 14 Concentration of chromium and iron in L-106 solution.



L-106 solution: concn. 0.1%, volume 1ℓ, temp 60°C, stirred up.
test piece: stellite powder (less 62μ) 0.1 g.

Fig. 15 Concentration of chromium and iron in L-106 solution.

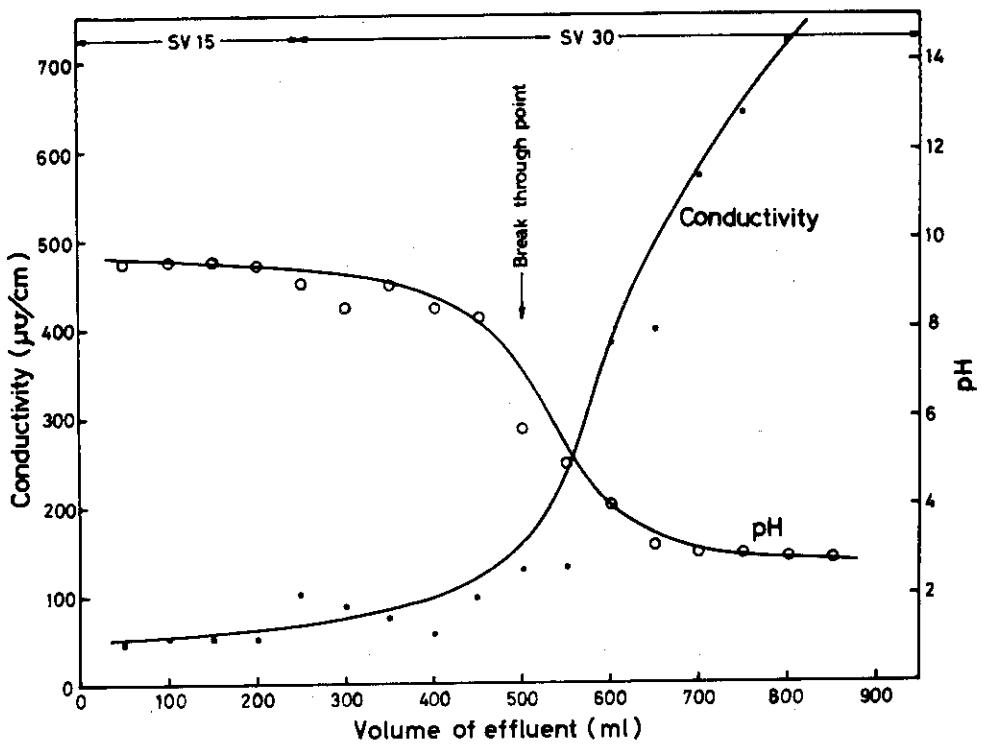


Fig. 16 pH and conductivity of L-106 solution passed through anion exchange resin.

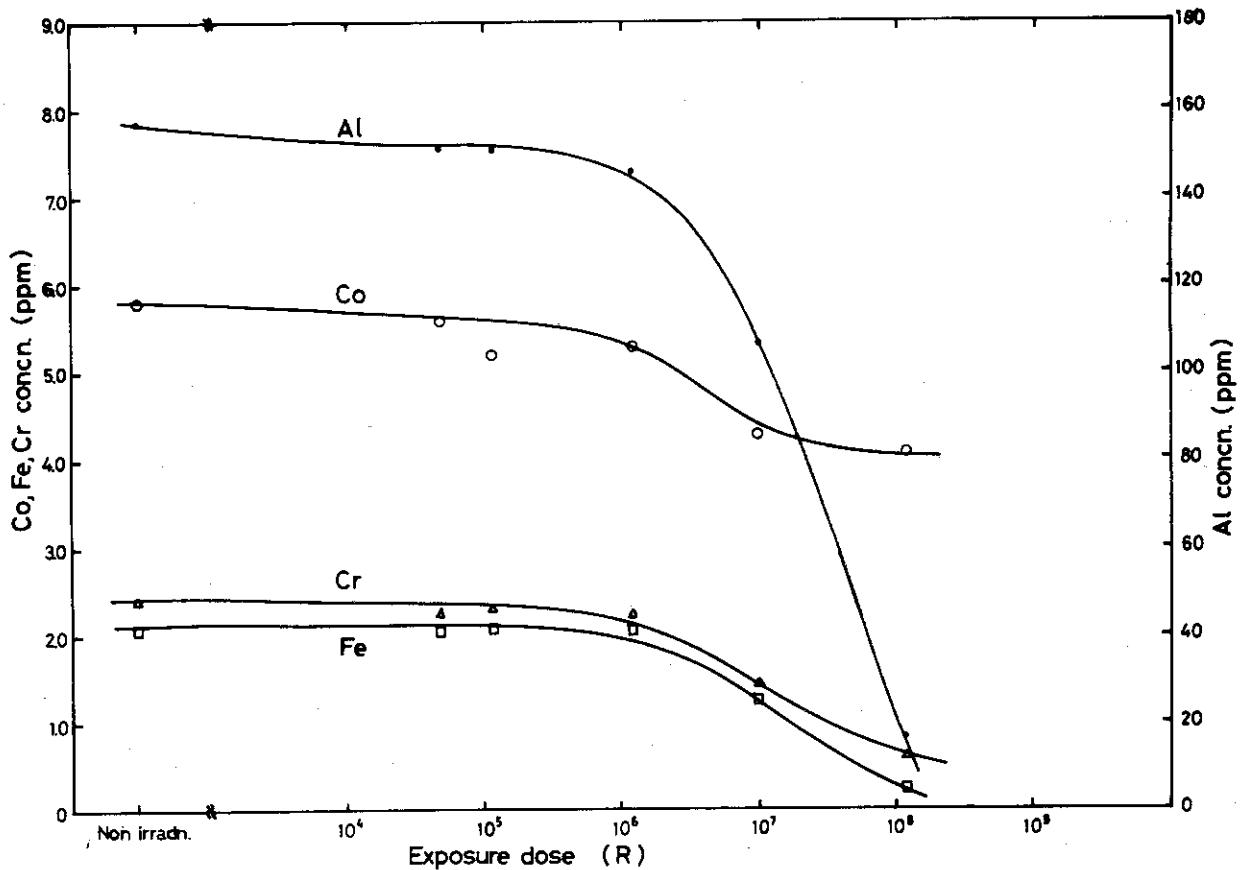
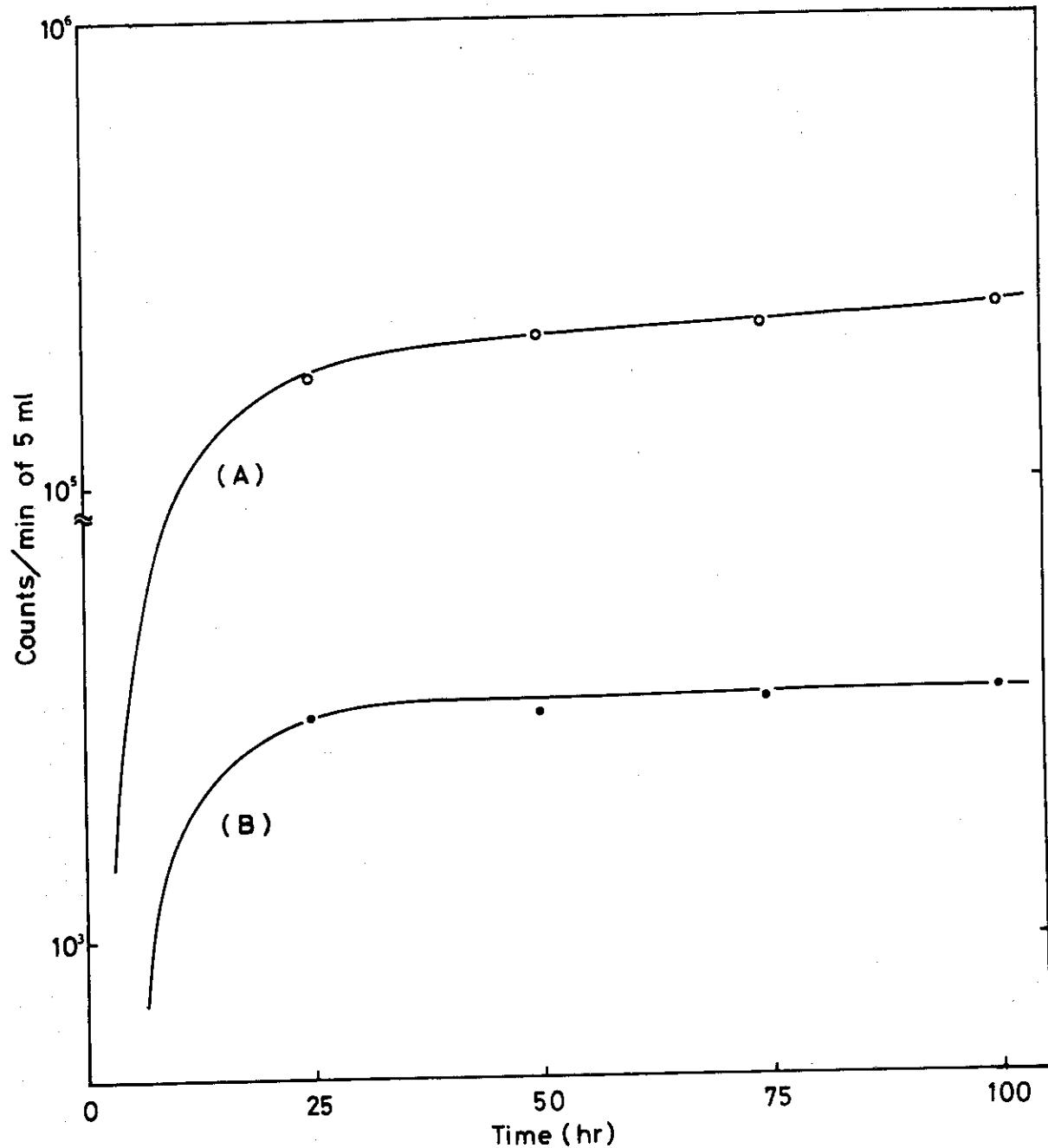


Fig. 17 Concentration of element in L-106 solution after γ -ray irradiation.



L-106 solution: concn. 0.1%, volume 1ℓ, temp 60°C, stirred up.
 (A) sludge, (B) strainer

Fig. 18 Gross γ -ray activity of L-106 solution in decontamination experiment.

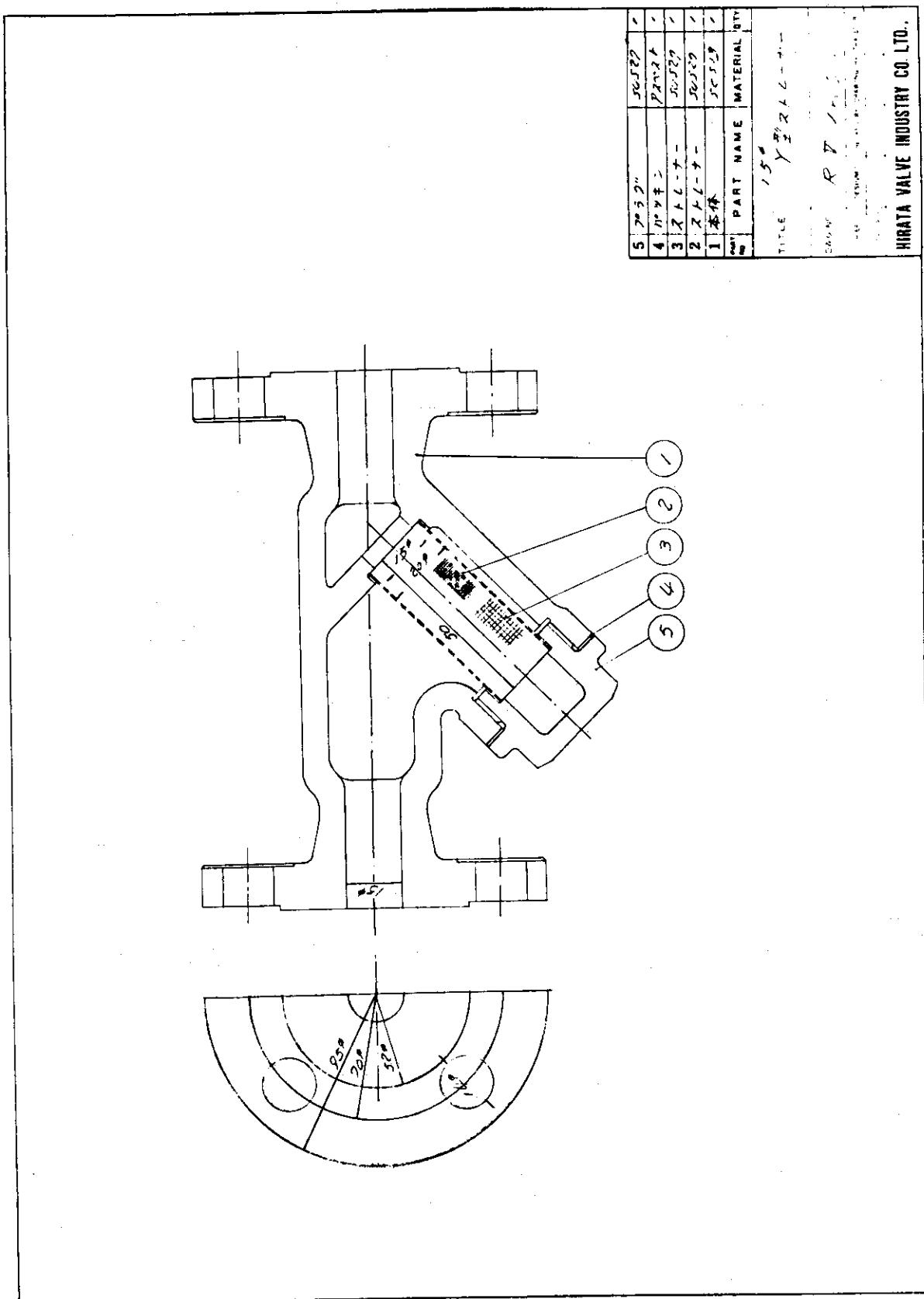


Fig. 19 Y type strainer

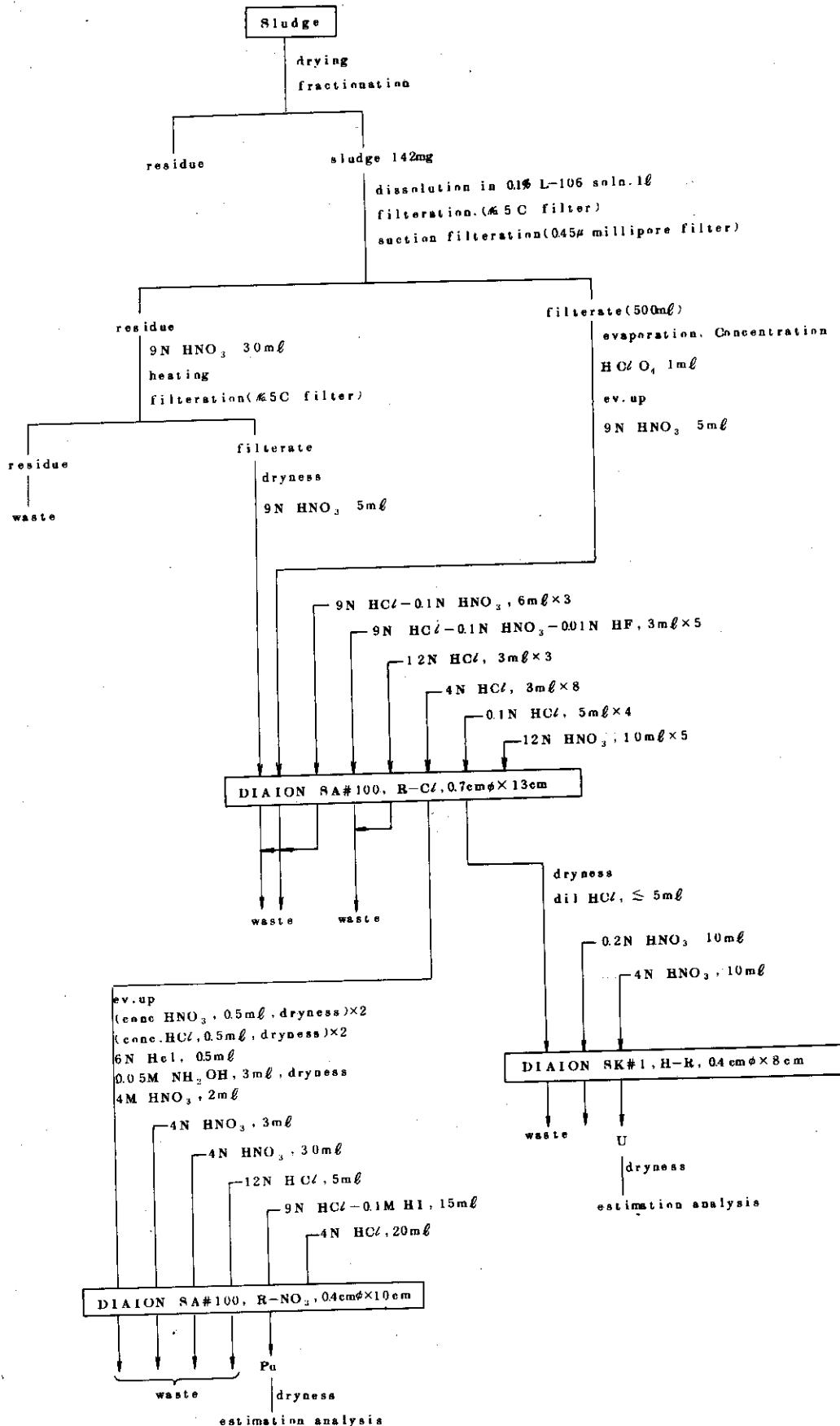


Fig. 20 Analysis diagram of uranium and plutonium.

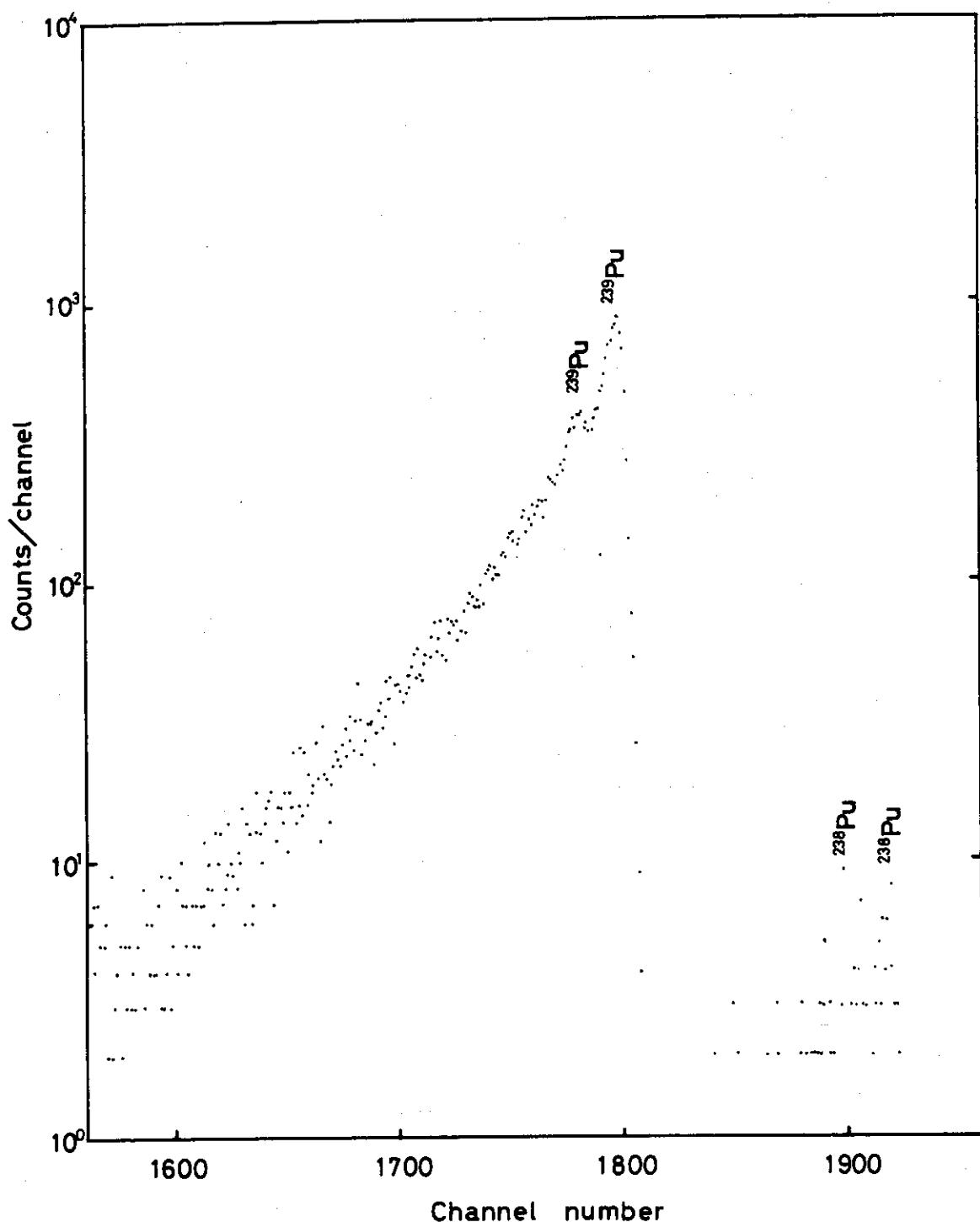


Fig. 21 α -ray spectrum of plutonium separated from sludge.