

JAERI-M

85-039

JRR-3 一次冷却重水系の化学除染の
検討・その2

(CAN-DECON法による化学除染)

1985年3月

近藤 忠美・吉島 哲夫・重本 雅光
田中 純利・飯田 省三・山本 章

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行	日本原子力研究所
印刷	日立高速印刷株式会社

JRR-3 一次冷却重水系の化学除染の検討・その2
(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・吉島 哲夫・重本 雅光・田中 純利
飯田 省三・山本 章

(1985年2月18日受理)

前報では、JRR-3 一次冷却重水系の汚染状況の把握と実験室規模でのCAN-DECON法の有効性について検討した。

本報告書では、軽水を使用したループテストによるCAN-DECON法の実験結果について検討した。実験の目的は次の通りとした。

- (1) 除染液によるアルミニウム材炉心タンクの溶解に関する安全評価
- (2) 一次冷却重水系から切断したステンレス配管の除染評価
- (3) イオン交換樹脂による除染剤の除去に関する有効性の評価

除染液によるアルミニウムの溶解は約 $120\mu\text{g}/\text{mL}$ である(60°Cでの飽和濃度)。これは、溶解したアルミニウムをアルミニウム材の厚さで表わすと平均約 $10\mu\text{m}$ である。ステンレス鋼の溶解は無視できた。これらの結果、アルミニウムとステンレス鋼の溶解に問題のないことがわかった。

汚染されたステンレス鋼の平均除染係数は、ウランが約10、プルトニウムが約5であった。残留除染剤と溶出イオンは陰イオン交換樹脂と混床イオン交換樹脂でほぼ完全に除去された。溶液の水質は除染剤注入前の状態に回復した。また、除染液での照射済アルミニウムの溶解性についても検討した。

CAN-DECON法は、汚染されたステンレス配管から、ウラン、プルトニウムおよび核分裂生成物の除去に効果的であることがわかった。

Study of Chemical Decontamination of JRR-3 Primary Coolant
Heavy Water System Part 2
(Chemical Decontamination by CAN-DECON Process)

Tadami KONDO, Tetsuo YOSHIJIMA, Masamitsu SIGEMOTO, Sumitoshi TANAKA,
Shozo IIDA and Akira YAMAMOTO

Department of Research Reactor Operation
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 18, 1985)

In the first report part 1, we discussed the contamination condition of JRR-3 primary heavy water coolant system and the effectiveness of chemical decontamination by CAN-DECON process in laboratory tests using light water.

The present report describes the experimental results of the CAN-DECON process in loop test using light water.

These experiments were performed for the following purposes :

- (1) Evaluation of corrosion to reactor core tank (aluminium) by decontaminating solution.
- (2) Decontamination evaluation on stainless steel pipe, which was taken out from primary coolant heavy water system.
- (3) Effectiveness evaluation on removal of decontaminating reagents, radioactive ions and metal ions in the solution using ion exchange resin.

The concentration of aluminium in decontaminating solution is about 120 $\mu\text{g/ml}$ which corresponds to about 10 μm of average thickness of dissolved aluminium.

Corrosion of stainless steel is negligible.

As a result it is concluded that there are no problems on the corrosion of aluminium and stainless steel. Average decontamination factor to the contaminated stainless steel pipe is about 10 for uranium and about 5 for plutonium.

Residual reagents, radioactive ions and metal ions in the decontaminating solution are almost completely removed through anion-exchange resin and mixed-bed exchanger. Quality of the solution in the loop test was recovered by the same quality before charge of decontaminating reagents.

Further, the corrosion of irradiated aluminium in decontaminating solution is discussed.

It is found that the CAN-DECON process is effective for the removal of uranium, plutonium and fission products from contaminated stainless steel pipe.

Keywords: Chemical Decontamination, Research Reactor, JRR-3, Primary Coolant System, Heavy Water, CAN-DECON Process, Fission Products, Uranium, Plutonium

目 次

1. まえがき	1
2. 実験方法と実験結果	1
2.1 使用済燃料冷却管の溶解実験	1
(1) 実験方法	1
(2) 実験結果	2
2.2 重水サンプリング系配管試料の除染実験	2
(1) 実験方法	2
(2) 実験結果	2
2.3 テストループによる除染実験	2
(1) 実験方法	3
1) 除染剤の除去実験方法	3
2) 配管除染実験方法	3
3) 垂直実験孔シンプルの除染実験方法	3
(2) 実験結果	4
1) 除染剤の除去実験結果	4
2) 配管除染実験結果	4
3) 垂直実験孔シンプルの除染実験結果	5
3. 考 察	5
3.1 照射済アルミニウムの除染液による溶解について	5
3.2 配管の除染係数について	6
1) γ 線放出核種の除染係数	6
2) ウランおよびプルトニウムの除染係数	6
3.3 垂直実験孔シンプルの除染係数について	7
4. ま と め	7
謝 辞	7
参考文献	8
APPENDIX	26

CONTENTS

1.	Introduction	1
2.	Experimental methods and results	1
2.1	Solubility test of spent fuel cooling tube in decontaminating solution	1
2.2	Decontamination test of heavy water sampling pipe specimens	2
2.3	Dynamic decontamination experiments by test loop	2
(1)	Experimental methods	3
1)	Methods of removal test of decontamination reagent	3
2)	Methods of decontamination test of heavy water sampling pipe	3
3)	Methods of decontamination test of vertical thimble	3
(2)	Experimental results	4
1)	Result of removal test of decontamination reagent	4
2)	Result of decontamination test of heavy water sampling pipe	4
3)	Result of decontamination test of vertical thimble	5
3.	Discussions	5
3.1	Irradiated Aluminium solubility in decontaminating solution	5
3.2	Decontamination factor for heavy water sampling pipe	6
3.3	decontamination factor for vertical thimble	7
4.	Conclusions	7
	Acknowledgements	7
	Reference	8
	Appendix	26

List of Tables

No.	
1	Decontamination experiment of heavy water sampling system in the JRR-3
2	Decontamination experiment of heavy water sampling system in the JRR-3
3	Decontamination factor of Uranium and plutonium

List of Figures

No.	
1	Variation of Aluminium concentration in the decontamination solution
2	Variation of Co-60 activity in the decontamination solution
3	α -ray spectra of plutonium separated from heavy water sampling tube
4	Flow diagram of chemical decontamination test equipment
5	heavy water sampling tube used for decontamination experiment
6	Schematic cross section of vertical thimble and cleaning tank for decontamination experiment by test loop
7	Results of removal test for decontamination reagent
8	Results of decontamination experiment of heavy water sampling tube by test loop
9	Variation of radionuclides in the decontamination solution (1)
10	Variation of radionuclides in the decontamination solution (2)
11	Variation of radionuclides in the decontamination solution (3)
12	Variation of pH and conductivity in the decontamination solution of decontamination experiment for vertical thimble
13	variation of gross γ activity and Co-60 in the decontamination solution of decontamination experiment for vertical thimble
14	Concentration of dissolved metals in the decontamination solution of decontamination experiment for vertical thimble
15	Resolution curve of Aluminium

1. ま え が き

我々は、原子炉の炉心を含む一次冷却系の化学除染法について、調査、検討し、前報¹⁾に報告した。その中で、JRR-3の一次冷却重水系の汚染状態を述べるとともに、ウラン等の汚染除去を行うには、CAN-DECON法による化学除染が最適であるとの結果を報告した。

本報告書では、更に、次の実験を行い、その有効性を確認したので結果を報告する。

- 1) 照射アルミニウムの溶解性試験として、使用済燃料冷却管（アルミニウム製）の溶解実験
- 2) 重水サンプリング配管切断試料の除染実験
- 3) テストループによる配管（ステンレス鋼製）、使用済実験孔シンプル（アルミニウム製）の除染工程および浄化工程の模擬実験

2. 実験方法と実験結果

2.1 使用済燃料冷却管の溶解実験

JRR-3の炉心は、アルミニウムA5052を主要構造材としており、そのアルミニウム表面は長期間の原子炉運転により、バイヤライト層 ($Al_2O_3 \cdot 3H_2O$) が形成されている。

前報¹⁾のアルミニウム溶解実験は、未照射アルミニウムのクロム酸での表面処理済のテストピースによるコールド実験であった。バイヤライト層が形成されている照射アルミニウムの溶解特性を知るため、使用済燃料冷却管（アルミニウムA5052）を試料として溶解実験を行った。

(1) 実験方法

JRR-3炉心に約10年間装荷の後に使用済燃料ループ内に取り出され約5年間貯蔵保管されていた使用済燃料冷却管（O.D: 44mm ϕ , I.D: 40mm ϕ ）を約40mmの長さに切断して試料とした。この試料の表面線量は約10mR/hであった。この試料を水洗後、0.1%除染液（LND-101A）1000ml（比液量10ml/cm²）に浸し、60°C、攪拌の状態ですら175時間溶解実験を行った。その際、攪拌の大きさによる影響を調べるため、マグネチックスターラの回転速度を大、中、小に変化させた。溶液中のアルミニウム濃度は原子吸光分析法で、⁶⁰Coは溶液5mlを棒状ポリエチレン瓶にサンプリングし、その γ 線スペクトルを測定して定量した。⁶⁰Coはアルミニウム中の不純物であるコバルトが炉心で照射され生成したものである。

1. ま え が き

我々は、原子炉の炉心を含む一次冷却系の化学除染法について、調査、検討し、前報¹⁾に報告した。その中で、JRR-3の一次冷却重水系の汚染状態を述べるとともに、ウラン等の汚染除去を行うには、CAN-DECON法による化学除染が最適であるとの結果を報告した。

本報告書では、更に、次の実験を行い、その有効性を確認したので結果を報告する。

- 1) 照射アルミニウムの溶解性試験として、使用済燃料冷却管（アルミニウム製）の溶解実験
- 2) 重水サンプリング配管切断試料の除染実験
- 3) テストループによる配管（ステンレス鋼製）、使用済実験孔シンプル（アルミニウム製）の除染工程および浄化工程の模擬実験

2 実験方法と実験結果

2.1 使用済燃料冷却管の溶解実験

JRR-3の炉心は、アルミニウムA5052を主要構造材としており、そのアルミニウム表面は長期間の原子炉運転により、バイヤライト層 ($Al_2O_3 \cdot 3H_2O$) が形成されている。

前報¹⁾のアルミニウム溶解実験は、未照射アルミニウムのクロム酸での表面処理済のテストピースによるコールド実験であった。バイヤライト層が形成されている照射アルミニウムの溶解特性を知るため、使用済燃料冷却管（アルミニウムA5052）を試料として溶解実験を行った。

(1) 実験方法

JRR-3炉心に約10年間装荷の後に使用済燃料ループ内に取り出され約5年間貯蔵保管されていた使用済燃料冷却管（O.D: 44mm ϕ , I.D: 40mm ϕ ）を約40mmの長さに切断して試料とした。この試料の表面線量は約10mR/hであった。この試料を水洗後、0.1%除染液（LND-101A）1000ml（比液量10ml/cm²）に浸し、60°C、攪拌の状態ですら175時間溶解実験を行った。その際、攪拌の大きさによる影響を調べるため、マグネチックスターラの回転速度を大、中、小に変化させた。溶液中のアルミニウム濃度は原子吸光分析法で、⁶⁰Coは溶液5mlを棒状ポリエチレン瓶にサンプリングし、その γ 線スペクトルを測定して定量した。⁶⁰Coはアルミニウム中の不純物であるコバルトが炉心で照射され生成したものである。

(2) 実験結果

除染液中アルミニウムの濃度は、除染時間100時間で50~100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ 、175時間で100~130 $\mu\text{g}/\text{mL}$ であった。また、除染液の γ 線スペクトル測定によって ^{60}Co 濃度を定量し、除染液のアルミニウム濃度と比較した。アルミニウムの溶解曲線と ^{60}Co の溶解曲線はほぼ同じ傾向を示した。アルミニウムの溶解曲線をFig. 1に、 ^{60}Co の溶解曲線をFig. 2に示す。

2.2 重水サンプリング系配管試料の除染実験

JRR-3 一次冷却重水系内に付着しているウラン、プルトニウムの除染係数を求めるために、一次冷却重水系の配管（ステンレス鋼製）の一部であるサンプリング系配管を切断して採取し、ビーカによる除染実験を行った。

(1) 実験方法

試料は、この重水サンプリング配管の入口側、出口側2ヶ所を切断し、その切断部より長さ50mmずつ、3個、合計6個採取した。

試料の γ 線スペクトルを測定し、放射性核種の定量分析を行い、除染前の汚染率を求めた。

ウラン、プルトニウムの汚染率を求めるために、重水入口側試料の1個を、0.1%除染液（LND-101A）1000mLに浸し、60°C攪拌の状態で100時間除染した。除染終了後、除染液全量を濃縮して、その中に含まれるウラン、プルトニウムを定量した。次に（1+1）硝酸1000mLに浸し、24時間攪拌し、溶解させ、この硝酸溶液中のウラン、プルトニウムを定量した。

ウラン、プルトニウムの定量は、両元素とも、イオン交換樹脂で分離後、ウランについては、固体蛍光光度法、プルトニウムについては、 α 線スペクトル測定後、2 π ガスフローカウンタで前報¹⁾と同様の方法で行った。

(2) 実験結果

除染前短管の γ 線スペクトル測定によって、 ^{141}Ce 、 ^{144}Ce 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Ru - ^{106}Rh 、 ^{95}Zr - ^{95}Nb 、 ^{60}Co が検出され、定量できた。結果をTable 1の除染前汚染率として示す。

除染液と硝酸溶液中のウラン、プルトニウムの定量分析の結果、除染液による除去量はウラン8.9 ng/cm^2 、プルトニウム $3.85 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ 、硝酸による除去量はウラン0.11 ng/cm^2 、プルトニウム $8.68 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ であった。硝酸処理によって、ウラン、プルトニウムが100%除染されることからこの短管試料の除染係数（DF）はウランが80、プルトニウムが45である。プルトニウムの α 線スペクトルをFig. 3に示す。

2.3 テストループによる除染実験

プラントの化学除染は、ビーカ実験と異なり、一次冷却水の昇温、除染剤の溶解、循環、除

染剤の除去（イオン交換樹脂による浄化）などの一連の工程が連続して行われる。これらの全工程の模擬実験を行うために、Fig. 4 に示すようなテストループを製作した。

テストループはポンプ、ヒータ付薬液溶解槽、フィルタ、イオン交換樹脂塔、流量計、電導度計等を備え、主要な機器の接続に両路閉鎖型カプラを使用して脱着が容易に行えるようにした。また、テストループの大きさを1.2 m × 1.2 m × 1.6 mとコンパクトにし、下部にキャストを付けて容易に移動できる構造にした。

このテストループを使用して、除染剤の除去実験、配管および垂直実験孔シンプルの除染実験を行った。

(1) 実験方法

1) 除染剤の除去実験方法

テストループに純水約80ℓを注入し、次にテストループ全体を60℃に昇温後、その温度に維持した。

テストループ内に除染剤粉末（LND-101A）80gを投入し、循環して除染剤を溶解した。約4.5時間循環後、陽イオン交換樹脂塔、陰イオン交換樹脂塔および混床イオン交換樹脂塔に順次溶液を通過させた。除染剤の除去効果は、各樹脂塔の出入口の電導度を連続記録するとともに、溶液を採取してpHを測定して確認した。

2) 配管除染実験方法

通常の実験用重水は、主重水系から分岐したサンプリング配管から採取している。今回の配管除染実験はこのサンプリング配管の更新に際して切断採取した配管を試料とした。使用した配管をFig. 5 に示す。この配管の入口側、出口側の切断部に両路閉鎖型カプラを溶接し、ステンレス鋼製のフレキシブルホースでテストループに接続して実験した。除染実験は、除染工程と浄化工程を連続して行った。除染工程はテストループに0.1%除染液（LND-101A）80ℓを注入し、温度60℃、流量10~20ℓ/minで125時間とした。浄化工程は除染工程に引き続き、陽イオン交換樹脂塔、陰イオン交換樹脂塔および混床イオン交換樹脂塔に約24時間通液した。

この実験では、配管試料の各部とフィルタの表面線量率を測定し、さらに5~25時間毎に除染液を採取し、pH、電導度、全γ放射能およびγ線スペクトルを測定した。また、除染工程終了時の除染液5ℓを分取し、除染液中のγ線放出核種、ウランおよびプルトニウムの定量分析を行った。

除染実験終了後、この配管試料の入口側、出口側から、長さ50mmの短管をそれぞれ3個づつ採取した。この試料のγ線スペクトル測定によって、γ線放出核種の定量分析を行った。

また、入口側から採取した1個を（1+1）硝酸溶液に浸し、残留しているウラン、プルトニウムを溶離し、その中に含まれているウラン、プルトニウムの定量分析を行った。

3) 垂直実験孔シンプルの除染実験方法

JRR-3 炉心で使用されていた垂直実験孔（アルミニウムA5052製）シンブルを試料として除染実験を行った。この垂直実験孔シンブルはFig. 6 に示すように洗浄槽に入れ、テストループに接続した。除染工程は、0.1%除染液400ℓ、温度60℃、流量16ℓ/min、圧力

1.2 kg/cm² で92時間とした。浄化工程は、温度約26°C、浄化流量2ℓ/min (SV=16) で陰イオン交換樹脂塔と混床イオン交換樹脂塔に約24時間通液した。

実験中5～25時間毎に除染液を採取し、電導度、pH、全γ放射能、⁶⁰Co濃度および金属元素 (Al, Fe, Cr, Ni, Na など) を測定した。また、除染液中のウランとプルトニウムの定量分析を行った。

(2) 実験結果

1) 除染剤除去実験結果

除染剤溶解前の純水の電導度は約1μS/cm、pHは約6であったが、除染剤溶解後の電導度は約1000μS/cmまで上昇し、pHは約3の弱酸性となった。この溶液を陽イオン交換樹脂塔に通液させても、電導度とpHは変化しなかった。陰イオン交換樹脂塔に通液させると、電導度は約3時間で1000μS/cmから10μS/cmまで急速に低下し、pHも約6程度に回復した。次に混床イオン交換樹脂塔に通液させると、約10時間で電導度は10μS/cmから1μS/cmに低下し、pHはほとんど変化しなかった。これらの結果をFig. 7に示す。

2) 配管除染実験結果

除染工程と浄化工程のフィルタの表面線量率、除染液の全γ放射能、電導度、pHおよびγ線放出核種などの測定結果をFig. 8～11に示す。除染工程開始から約5時間でフィルタの表面線量率、電導度およびpHは一定となった。また、除染液のγ線スペクトルの測定で検出されたγ線放出核種は¹⁴¹Ce、¹⁴⁴Ce、⁵¹Cr、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb、¹³⁷Cs、¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rhおよび⁶⁰Coであった。これらのγ線放出核種の中で、⁶⁰Coを除く核種は除染工程開始5時間で一定となった。⁶⁰Co濃度は除染工程開始5時間までは急速に上昇し、その後は徐々に上昇した。

浄化工程では、γ線核種のうち、¹⁴¹Ce、¹⁴⁴Ceは陽イオン交換樹脂で全部除去され、⁵¹Crおよび¹⁰³Ruは約40%、⁶⁰Coは約98%が吸着除去された。⁹⁵Nb、¹³⁷Csは吸着除去されなかった。陽イオン交換樹脂によるγ線放出核種の吸着除去の進行とともに、除染液の全γ放射能も低下した。

陰イオン交換樹脂と混床イオン交換樹脂による浄化では、⁵¹Crを除くすべての核種が吸着除去された。

陰イオン交換樹脂と混床イオン交換樹脂による浄化によって、除染液の電導度は低下し、pHも約6になった。

Fig. 6で電導度が急上昇し、pHが5から3に低下しているのは、陽イオン交換樹脂に通液した時で、この樹脂の再生処理における洗浄不良によるものと思われる。

この除染実験における配管のγ線放出核種の除染前後の汚染量と除染係数をTable 1に示す。γ線放出核種の汚染量は、γ線スペクトルの測定によって求めた。その結果、¹⁴⁴Ce、¹⁴¹Ce、⁵¹Crについては、除染係数100以上を得たが、その他の核種については1.2～3.6であった。

ウランおよびプルトニウムの除染前後の汚染量と除染係数をTable 2に示す。ウランおよびプルトニウムの除染前後の汚染量は、試料である配管を硝酸処理等により、ウランおよびプ

プルトニウムを溶解し、イオン交換樹脂で分離、精製して測定した。したがって、除染係数は除染前後の試料を処理して、汚染量を求め、それが実験に使用した配管に一樣に付着しているものと仮定して計算した。計算の結果、ウランの除染係数は、2、プルトニウムの除染係数は5であった。

一方、除染工程終了時に除染液5ℓを分取して、その中のウラン、プルトニウムを定量分析した。配管からのウランの除染量は $200\text{ng}/\text{cm}^2$ であり、プルトニウムの除染量は $1.6 \times 10^{-6}\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ であった。配管の硝酸処理で得られた除染後付着量と比較して除染係数を求めると、ウランで45、プルトニウムで3であった。

3) 垂直実験孔シンプルの除染実験結果

除染工程開始直後の除染液の電導度は約 $1300\mu\text{S}/\text{cm}$ 、pHは約3であった。92時間経過後（除染工程終了時）は、電導度が $240\mu\text{S}/\text{cm}$ 、pHが5.7になった。結果をFig. 12に示す。また、全 γ 放射能と ^{60}Co 濃度の変化をFig. 13に、金属元素の濃度変化をFig. 14に示す。 ^{60}Co 濃度はアルミニウム濃度に比例して増加した。除染工程終了時の除染液中のアルミニウム、ウランおよびプルトニウムの濃度はそれぞれ、 $120\mu\text{g}/\text{mℓ}$ 、 $4\text{ng}/\text{mℓ}$ および $6.75 \times 10^{-7}\mu\text{Ci}/\text{mℓ}$ であった。この結果、垂直実験孔全体からのウラン、プルトニウムの除去量はそれぞれ、 $1.6 \times 10^{-3}\text{g}$ 、 $2.7 \times 10^{-1}\mu\text{Ci}$ であり、単位面積あたりそれぞれ、 $128\text{ng}/\text{cm}^2$ 、 $2.16 \times 10^{-5}\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ であった。

浄化工程では、最初に陰イオン交換樹脂塔に通液したところ、陰イオン交換樹脂塔出口のpHは約11でアルカリ性になった。このため、陰イオン交換樹脂塔を通液させた後、混床イオン交換樹脂塔に通液し、pHを中性に調整した。SV約16で約24時間通液し、除染液の電導度は $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下に低下した。

3. 考 察

3.1 照射済アルミニウムの除染液による溶解について

使用済燃料冷却管は、約10年間炉心内に挿入されている間は、温度約 55°C の重水中で中性子および γ 線に照射されるが、この冷却管が燃料と共に使用済燃料ループ内に取出された後の約5年間は、軽水中に保管され、 γ 線照射されていた。一方、垂直実験孔シンプルは、冷却管と同様に炉心内で照射されたが、炉心外に取出し後、シンプル置場に約2年間空气中保管された。

この2つの試料の除染剤によるアルミニウムの溶解実験の結果を、前報¹⁾の未照射アルミニウムの結果と比較して、Fig. 15に示す。未照射アルミニウムは除染液に約 $150\mu\text{g}/\text{mℓ}$ まで溶解したが、照射アルミニウムである燃料冷却管は溶解に時間がかかり、175時間経過後でも、アルミニウム濃度は約 $120\mu\text{g}/\text{mℓ}$ であった。また、垂直実験孔シンプルは、未照射アルミニウムよりも早くアルミニウムが溶解し、その濃度は約 $120\mu\text{g}/\text{mℓ}$ で飽和した。照

プルトニウムを溶解し、イオン交換樹脂で分離、精製して測定した。したがって、除染係数は除染前後の試料を処理して、汚染量を求め、それが実験に使用した配管に一樣に付着しているものと仮定して計算した。計算の結果、ウランの除染係数は、2、プルトニウムの除染係数は5であった。

一方、除染工程終了時に除染液5ℓを分取して、その中のウラン、プルトニウムを定量分析した。配管からのウランの除染量は 200 ng/cm^2 であり、プルトニウムの除染量は $1.6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/cm}^2$ であった。配管の硝酸処理で得られた除染後付着量と比較して除染係数を求めると、ウランで45、プルトニウムで3であった。

3) 垂直実験孔シンプルの除染実験結果

除染工程開始直後の除染液の電導度は約 $1300 \mu\text{S/cm}$ 、pHは約3であった。92時間経過後（除染工程終了時）は、電導度が $240 \mu\text{S/cm}$ 、pHが5.7になった。結果をFig. 12に示す。また、全 γ 放射能と ^{60}Co 濃度の変化をFig. 13に、金属元素の濃度変化をFig. 14に示す。 ^{60}Co 濃度はアルミニウム濃度に比例して増加した。除染工程終了時の除染液中のアルミニウム、ウランおよびプルトニウムの濃度はそれぞれ、 $120 \mu\text{g/ml}$ 、 4 ng/ml および $6.75 \times 10^{-7} \mu\text{Ci/ml}$ であった。この結果、垂直実験孔全体からのウラン、プルトニウムの除去量はそれぞれ、 $1.6 \times 10^{-3} \text{ g}$ 、 $2.7 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}$ であり、単位面積あたりそれぞれ、 128 ng/cm^2 、 $2.16 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/cm}^2$ であった。

浄化工程では、最初に陰イオン交換樹脂塔に通液したところ、陰イオン交換樹脂塔出口のpHは約11でアルカリ性になった。このため、陰イオン交換樹脂塔を通液させた後、混床イオン交換樹脂塔に通液し、pHを中性に調整した。SV約16で約24時間通液し、除染液の電導度は $1 \mu\text{S/cm}$ 以下に低下した。

3. 考 察

3.1 照射済アルミニウムの除染液による溶解について

使用済燃料冷却管は、約10年間炉心内に挿入されている間は、温度約 55°C の重水中で中性子および γ 線に照射されるが、この冷却管が燃料と共に使用済燃料ループ内に取出された後の約5年間は、軽水中に保管され、 γ 線照射されていた。一方、垂直実験孔シンプルは、冷却管と同様に炉心内で照射されたが、炉心外に取出し後、シンプル置場に約2年間空气中保管された。

この2つの試料の除染剤によるアルミニウムの溶解実験の結果を、前報¹⁾の未照射アルミニウムの結果と比較して、Fig. 15に示す。未照射アルミニウムは除染液に約 $150 \mu\text{g/ml}$ まで溶解したが、照射アルミニウムである燃料冷却管は溶解に時間がかかり、175時間経過後でも、アルミニウム濃度は約 $120 \mu\text{g/ml}$ であった。また、垂直実験孔シンプルは、未照射アルミニウムよりも早くアルミニウムが溶解し、その濃度は約 $120 \mu\text{g/ml}$ で飽和した。照

射アルミニウムの除染剤による溶解は、未照射アルミニウムのそれよりも、約20%少ない。また、燃料冷却管と垂直実験孔シンプルのアルミニウムの溶解速度の違いは、水中および空気中保管の違いによる表面状態の変化によるものと思われる。すなわち、両者とも、炉心ではその表面にバイヤライト層が同様に形成されるが、炉心から取出し後、水中に保管されていた燃料冷却管のバイヤライト層はそのままの形で維持されていた。垂直実験孔シンプルは、空気中保管であったため、バイヤライト層は乾燥するとともに、その表面には新たに酸化アルミニウムが生成されたものと考えられる。

いずれにしても、未照射アルミニウムと照射アルミニウムとの溶解性に大差はなく、除染時における炉心タンク部アルミニウム材の溶解厚さは無視できる程小さく、安全上の問題は無いものと思われる。

この照射アルミニウムの溶解実験で、アルミニウムの溶出とともに、 ^{60}Co が溶出している。 ^{60}Co の溶出がアルミニウムの溶解と同様な溶解曲線を示したことは、この溶出したコバルトが、アルミニウム中の不純物であるコバルトであると考えられる。

3.2 配管の除染係数について

1) γ 線放出核種の除染係数

実験で得られたFPの除染係数は放射性核種によって相違が見られた。 ^{141}Ce 、 ^{144}Ce は100以上で、その他の γ 線放出核種は1.2～3.7であった。

実験に使用した除染剤LND-101Aの主成分は、キレート剤のEDTA（エチレンジアミン四酢酸）および有機酸のシュウ酸とクエン酸である。シュウ酸とクエン酸もキレート錯体を形成するが、EDTAとの錯体が最も安定である。原子価の多い金属イオンは錯体を形成しやすい傾向を有している。特に、FPのセリウムは、比較的安定なCe(IV)として存在する²⁾。このため、CeはEDTAと陽イオンの錯体を形成していたことは陽イオン交換樹脂で吸着除去されたことによって明らかである。このために除染係数が高くなったものと考えられる。

2) ウランおよびプルトニウムの除染係数

ビーカ実験によって求めた除染係数は、除染液に溶出したウラン、プルトニウムの量と、除染後硝酸洗浄を行って求めた残留ウラン、プルトニウムの量によって求めた値であり、最も確からしい値と考えられる。

テストループ実験によって求めた除染係数は、実験に使用した配管を硝酸洗浄することが困難であったため、配管内汚染が一様であるとの仮定に基づいて求めたものである。即ち、除染後の残留汚染量は、実験に使用した配管の一部を切断してビーカ実験と同様に硝酸洗浄を行って求めた値である。除染前の初期汚染量は、①ビーカ実験によって得た値を用いた場合と、②テストループ実験によって除染液に溶出したウラン、プルトニウムの分析値を用いた場合の2つの方法によって求めてみた。結果をTable 3に示す。

プルトニウムに関するDFは、3～5とほぼ同じ値になっているが、ウランに関するDFは、2および4.5と大きな違いを示している。これは次に述べるように、汚染状況の違いによるも

のと考えられる。

ウランによる配管汚染は、前報でも述べたように、 $UO_2 \cdot 0.8D_2O$ の針状あるいはウニ状の酸化物であり、粒子状で重水中を運ばれてきたため、配管の溶接部等の隙間等凹みのある場所に付着し易いと考えられ、配管内汚染が一様であるとの仮定は成立し難い^{註)}。プルトニウムによる配管内汚染は、炉心近傍の付着ウランから核反応によって生成し、イオン状で重水中を運ばれて配管に付着したものであり、配管内汚染が一様であるとの仮定はかなり現実に近いものと考えられる。

3.3 垂直実験孔シンプルの除染係数について

垂直実験孔シンプルは、その表面線量率が最大 $3R/hr$ であり、除染後の汚染率を測定するための、小片試料採取が不可能であった。それ故、除染前、除染後のウラン、プルトニウムの付着量測定ができなかったので、除染係数を求めることはできなかった。

4 ま と め

われわれは、前報¹⁾の結果をもとに、JRR-3 一次冷却重水系に CAN-DECON 法を適用する際の問題点を把握するために、テストループを製作し、一次冷却重水系から採取したステンレス製配管と炉心部から取出されたアルミニウム製垂直実験孔シンプルについての化学除染を試みた。

実験の結果、JRR-3 一次冷却重水系に付着しているウラン、プルトニウムおよび核分裂生成物は、除染係数が約 5~50 の範囲で化学除染が可能であることが判明した。

バイヤライト層が表面に形成されている照射済アルミニウムは未照射アルミニウムに比較して、やや溶解し難い傾向が見られた。

JRR-3 一次冷却重水系の化学除染に際して、除染液に接液するアルミニウム製炉心タンクの溶解に対する安全性は全く問題ないと考えられる。

また、アルミニウムを溶解している除染液の場合は、陰イオン交換樹脂の通液によって、pH が高くなるので、この pH 調整のために混床イオン交換樹脂に通液する必要があることがわかった。

謝 辞

本実験の実施にあたり、御協力いただいた JRR-3 管理課の皆様には感謝の意を表します。

註) APPENDIX 参照

のと考えられる。

ウランによる配管汚染は、前報でも述べたように、 $UO_2 \cdot 0.8D_2O$ の針状あるいはウニ状の酸化物であり、粒子状で重水中を運ばれてきたため、配管の溶接部等の隙間等凹みのある場所に付着し易いと考えられ、配管内汚染が一様であるとの仮定は成立し難い^{註)}。プルトニウムによる配管内汚染は、炉心近傍の付着ウランから核反応によって生成し、イオン状で重水中を運ばれて配管に付着したものであり、配管内汚染が一様であるとの仮定はかなり現実に近いものと考えられる。

3.3 垂直実験孔シンプルの除染係数について

垂直実験孔シンプルは、その表面線量率が最大 $3R/hr$ であり、除染後の汚染率を測定するための、小片試料採取が不可能であった。それ故、除染前、除染後のウラン、プルトニウムの付着量測定ができなかったので、除染係数を求めることはできなかった。

4 ま と め

われわれは、前報¹⁾の結果をもとに、JRR-3 一次冷却重水系に CAN-DECON 法を適用する際の問題点を把握するために、テストループを製作し、一次冷却重水系から採取したステンレス製配管と炉心部から取出されたアルミニウム製垂直実験孔シンプルについての化学除染を試みた。

実験の結果、JRR-3 一次冷却重水系に付着しているウラン、プルトニウムおよび核分裂生成物は、除染係数が約 5~50 の範囲で化学除染が可能であることが判明した。

バイヤライト層が表面に形成されている照射済アルミニウムは未照射アルミニウムに比較して、やや溶解し難い傾向が見られた。

JRR-3 一次冷却重水系の化学除染に際して、除染液に接液するアルミニウム製炉心タンクの溶解に対する安全性は全く問題ないと考えられる。

また、アルミニウムを溶解している除染液の場合は、陰イオン交換樹脂の通液によって、pH が高くなるので、この pH 調整のために混床イオン交換樹脂に通液する必要があることがわかった。

謝 辞

本実験の実施にあたり、御協力いただいた JRR-3 管理課の皆様には感謝の意を表します。

註) APPENDIX 参照

のと考えられる。

ウランによる配管汚染は、前報でも述べたように、 $UO_2 \cdot 0.8D_2O$ の針状あるいはウニ状の酸化物であり、粒子状で重水中を運ばれてきたため、配管の溶接部等の隙間等凹みのある場所に付着し易いと考えられ、配管内汚染が一様であるとの仮定は成立し難い^{註)}。プルトニウムによる配管内汚染は、炉心近傍の付着ウランから核反応によって生成し、イオン状で重水中を運ばれて配管に付着したものであり、配管内汚染が一様であるとの仮定はかなり現実に近いものと考えられる。

3.3 垂直実験孔シンプルの除染係数について

垂直実験孔シンプルは、その表面線量率が最大 $3R/hr$ であり、除染後の汚染率を測定するための、小片試料採取が不可能であった。それ故、除染前、除染後のウラン、プルトニウムの付着量測定ができなかったので、除染係数を求めることはできなかった。

4 ま と め

われわれは、前報¹⁾の結果をもとに、JRR-3 一次冷却重水系に CAN-DECON 法を適用する際の問題点を把握するために、テストループを製作し、一次冷却重水系から採取したステンレス製配管と炉心部から取出されたアルミニウム製垂直実験孔シンプルについての化学除染を試みた。

実験の結果、JRR-3 一次冷却重水系に付着しているウラン、プルトニウムおよび核分裂生成物は、除染係数が約 5~50 の範囲で化学除染が可能であることが判明した。

バイヤライト層が表面に形成されている照射済アルミニウムは未照射アルミニウムに比較して、やや溶解し難い傾向が見られた。

JRR-3 一次冷却重水系の化学除染に際して、除染液に接液するアルミニウム製炉心タンクの溶解に対する安全性は全く問題ないと考えられる。

また、アルミニウムを溶解している除染液の場合は、陰イオン交換樹脂の通液によって、pH が高くなるので、この pH 調整のために混床イオン交換樹脂に通液する必要があることがわかった。

謝 辞

本実験の実施にあたり、御協力いただいた JRR-3 管理課の皆様には感謝の意を表します。

註) APPENDIX 参照

参 考 文 献

- 1) 近藤忠美他, 「JRR-3 一次冷却重水系の化学除染の検討, その1」 JAERI-M 8079, (1979)
- 2) 吾勝永子, 「核分裂生成物の化学」 JAERI-M 7873, (1978)

Table 1 Decontamination experiment of heavy water sampling system in the JRR-3

		Ce-144	Ce-141	Cr-51	Ru-103	Ru-Rh-106	Zr-95	Nb-95	Co-60
入口側	除染前	4.0×10^{-4}	2.3×10^{-4}	検出せず	3.8×10^{-4}	4.9×10^{-4}	5.9×10^{-4}	1.8×10^{-3}	1.1×10^{-3}
	除染後	検出せず	検出せず	検出せず	2.4×10^{-4}	3.9×10^{-4}	1.6×10^{-4}	5.0×10^{-4}	6.1×10^{-4}
	DF	>100	>100	—	1.6	1.3	3.7	3.6	1.8
出口側	除染前	6.2×10^{-4}	3.4×10^{-4}	1.6×10^{-3}	4.8×10^{-4}	6.0×10^{-4}	6.9×10^{-4}	2.1×10^{-3}	4.5×10^{-4}
	除染後	検出せず	検出せず	検出せず	3.1×10^{-4}	4.7×10^{-4}	1.9×10^{-4}	6.1×10^{-4}	3.7×10^{-4}
	DF	>100	>100	>100	1.5	1.3	3.6	3.4	1.2

単位 $\mu\text{ci}/\text{cm}^2$

1) 重水入口側, 出口側から試料を3ヶずつとり, 測定, 測定値は平均値

2) 材質 SUS 304

3) 寸法 外径21.7φ 内径17.5φ 長さ50 mm

4) 表面積 $28 \text{ cm}^2/\text{個}$

5) 放射能は除染開始時刻に補正

Table 2 Decontamination experiment of heavy water sampling system in the JRR-3

		Pu-239	Nat. u
入口側	除染前	$3.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$	$8.9 \text{ ng}/\text{cm}^2$
	除染後	$7.9 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$	$4.5 \text{ ng}/\text{cm}^2$
	DF	4.9	2.0

Table 3 Decontamination factor of Uranium and Plutonium

核種	ビーカー実験 の除染係数	テストループの除染係数	
		① : C/R	② : $\frac{D/S+R}{R}$
ウラン	80	2	45
プルトニウム	45	5	4

C : 除染前の一部配管の汚染量 (U : $9.0 \text{ ng}/\text{cm}^2$, Pu : $3.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)

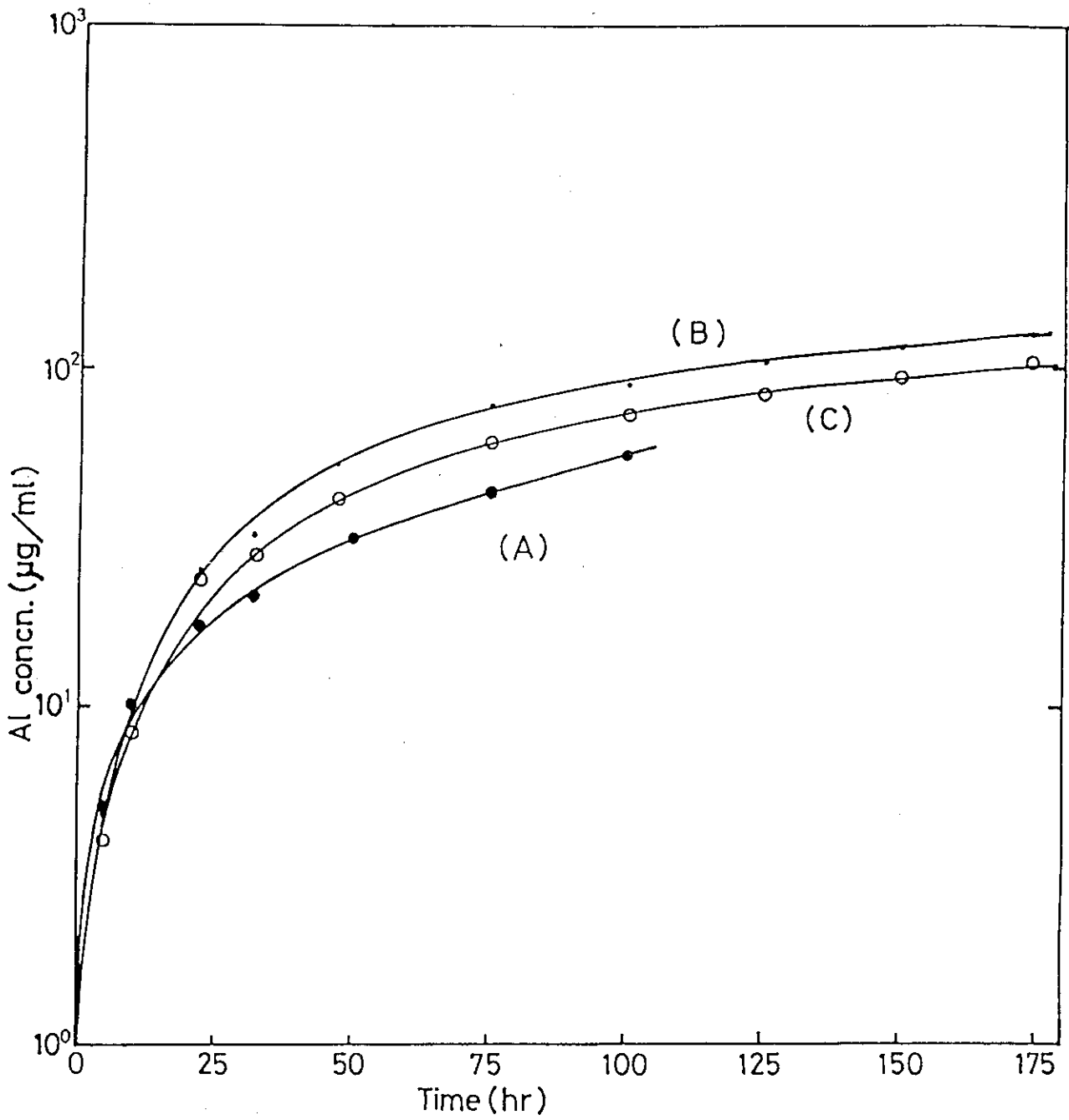
R : 除染後の一部配管の汚染量 (U : $4.5 \text{ ng}/\text{cm}^2$, Pu : $7.9 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)

D : 除染液に溶解したウラン、プルトニウムの量

(U : $700 \mu\text{g}$, Pu : $5.53 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$)

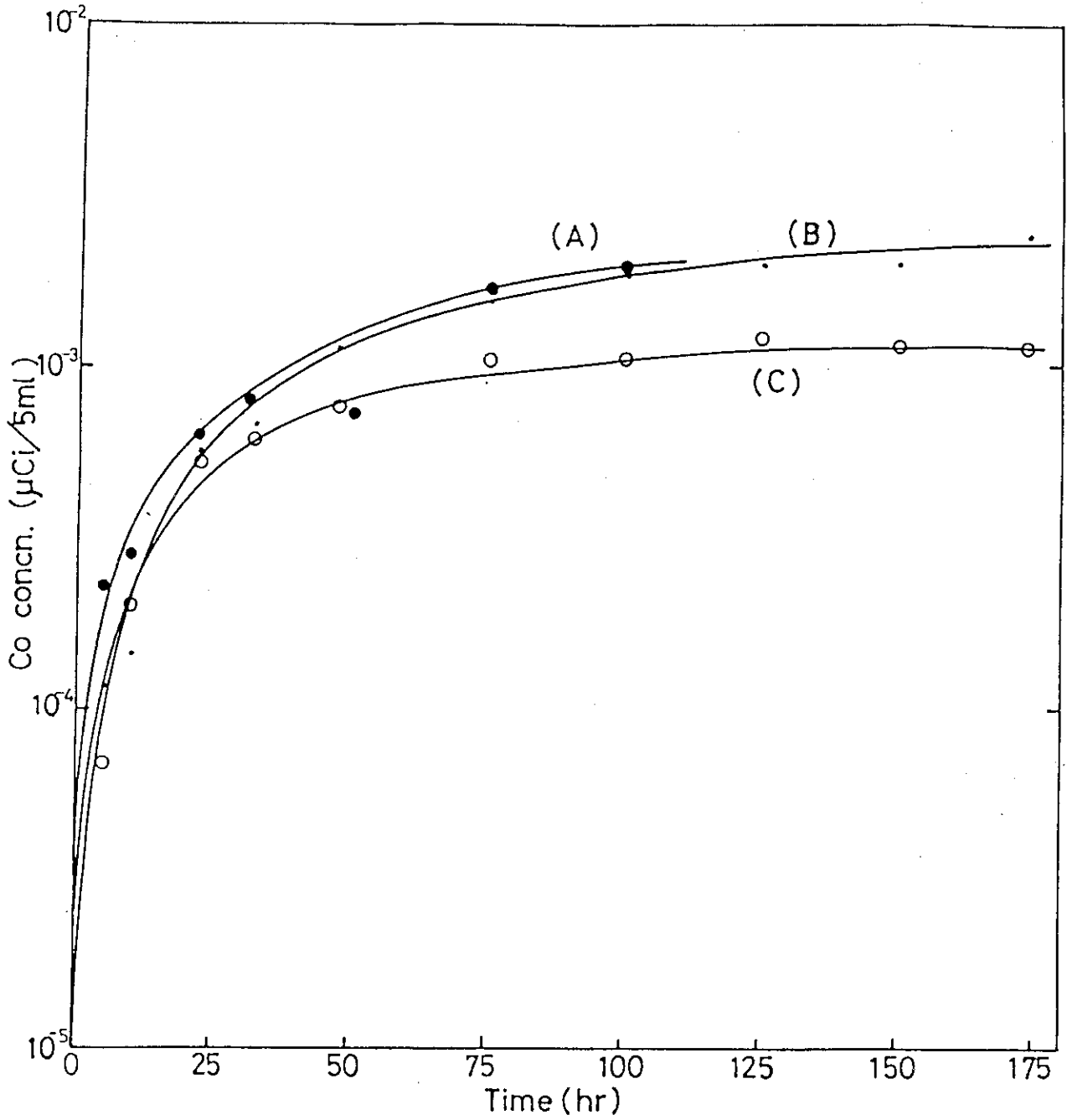
S : 配管の接液表面積

(3500 cm^2)



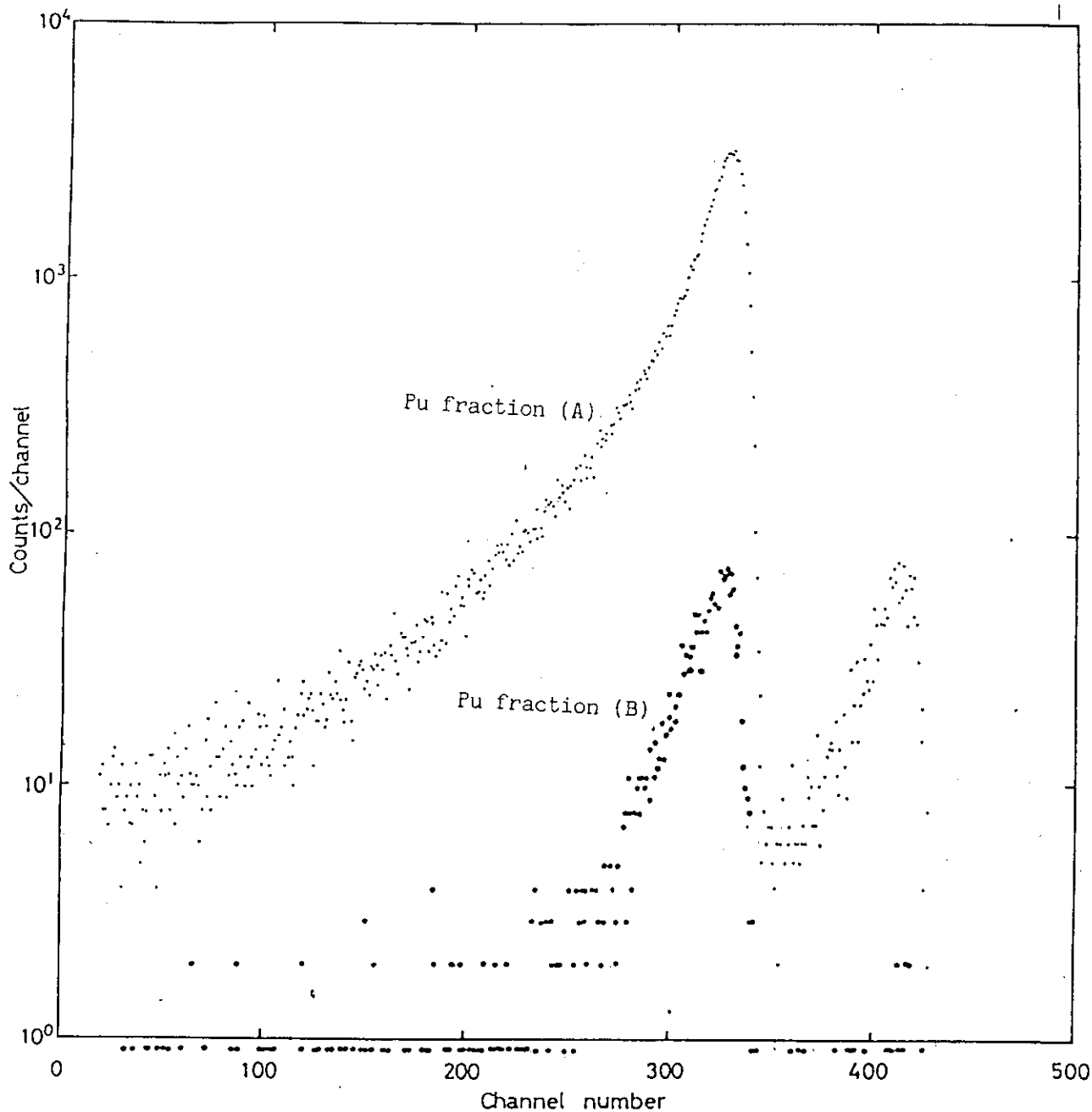
sample: Aluminium cooling tube of fuel (O.D. 44φ, I.D. 40φ, L. 40mm)
 (A): strong stirring (B): medium stirring (C): weak stirring

Fig.1 Variation of the Aluminium concentration in the decontamination solution



sample: Aluminium cooling tube of fuel (O.D. 44φ, I.D. 40φ, L. 40mm)
 (A): strong stirring (B): medium stirring (C): weak stirring

Fig.2 Variation of Co-60 activity in the decontamination solution



sample: SUS 304 1/2B pipe, inner surface: 78.2 cm²

sampling → 1st decontamination → 2nd decontamination

0.1% L-106 soln. 1000 ml
in beaker

60°C stirring 100 hr

↓
Pu fraction (A)

1+1 HNO₃ soln. 1000 ml
in beaker

60°C stirring 24 hr

↓
Pu fraction (B)

Fig. 3 α-ray spectra of plutonium separated from heavy water sampling tube

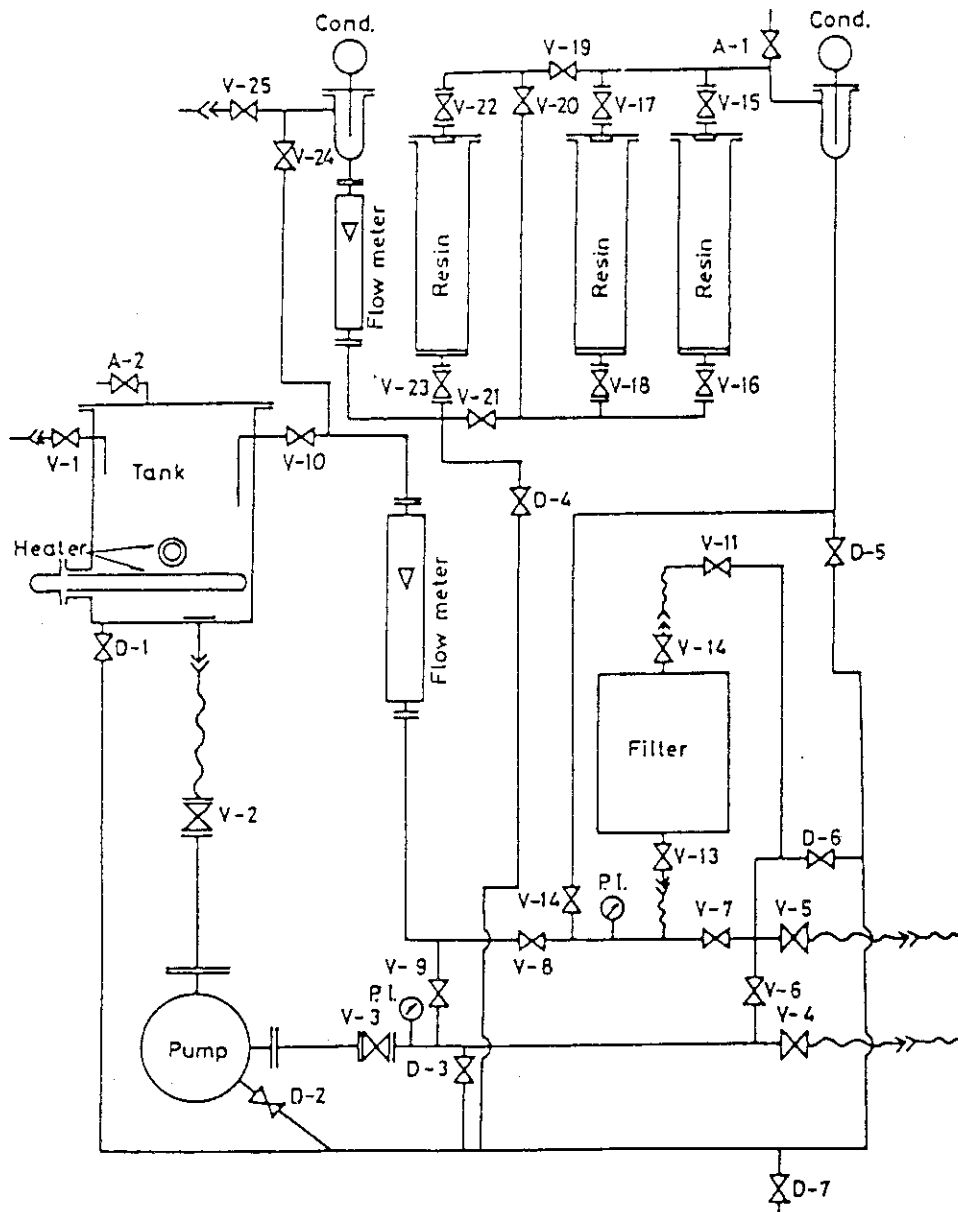
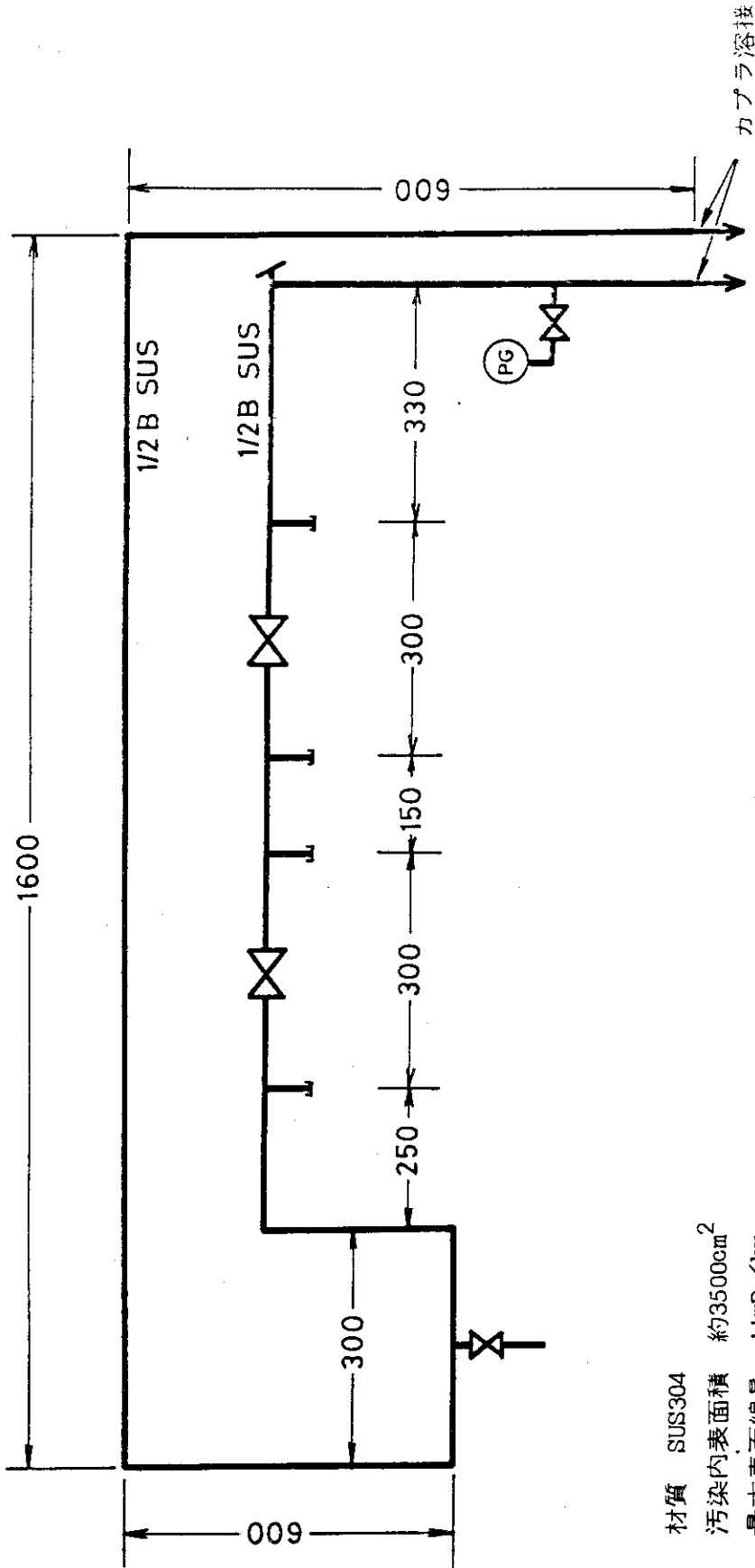


Fig.4 Flow diagram of chemical decontamination test equipment



材質 SUS304
 汚染内表面積 約3500cm²
 最大表面線量 11mR/hr

Fig.5 Heavy water sampling tube used for decontamination experiment

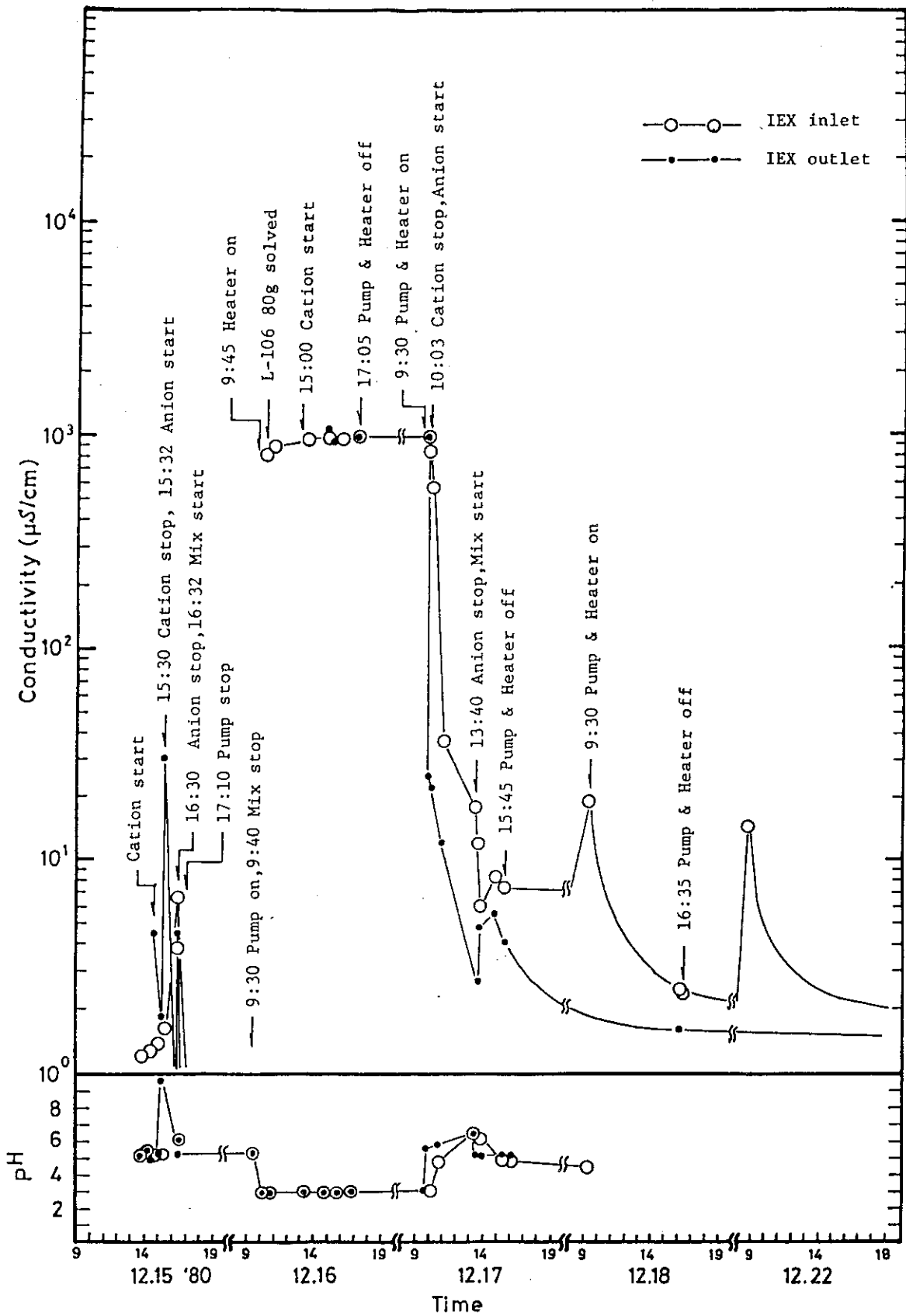


Fig.7 Results of removal test for decontamination reagent

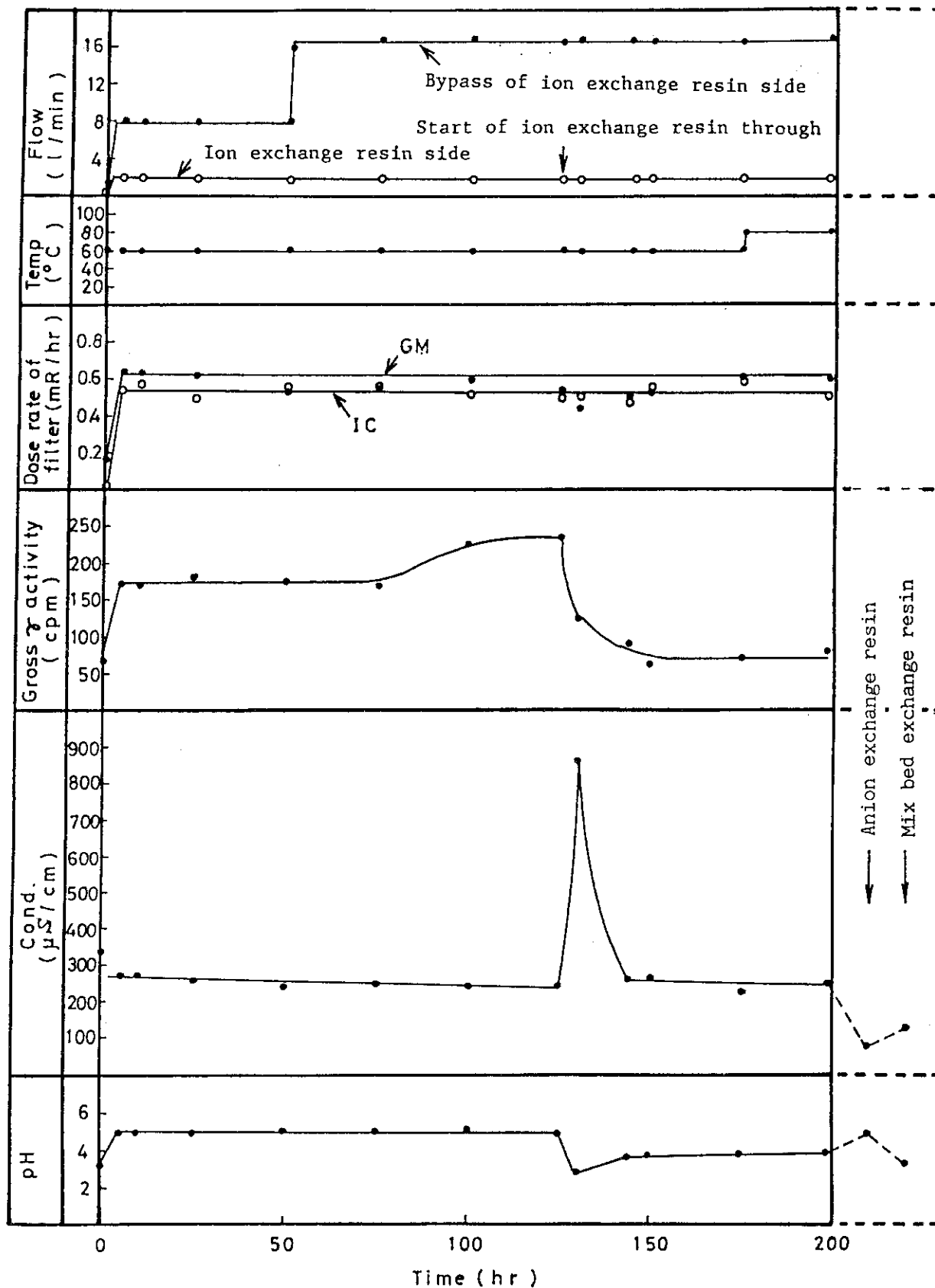


Fig.8 Results of decontamination experiment of heavy water sampling tube by test loop

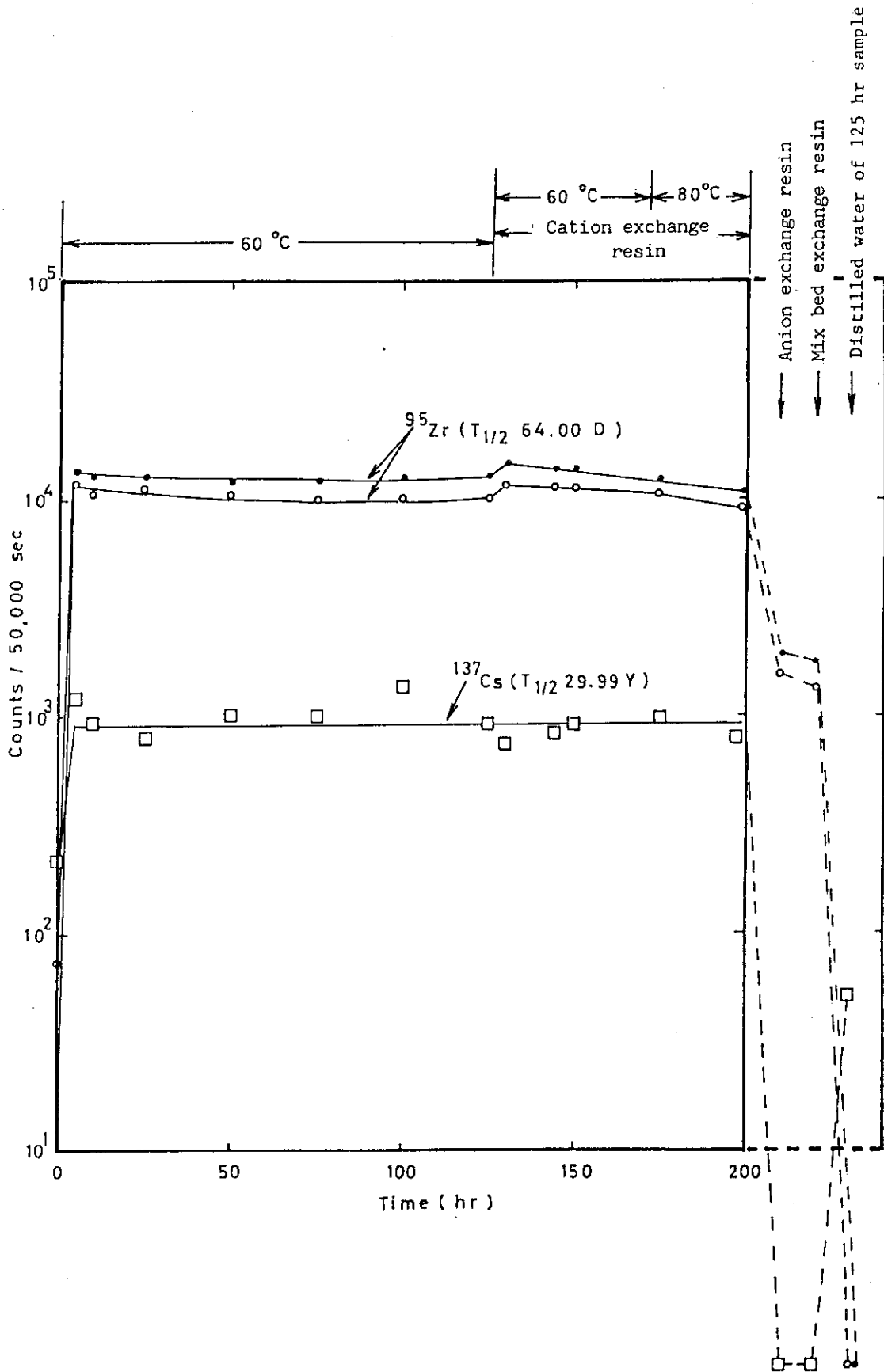


Fig. 9 Variation of radionuclides in the decontamination solution (1)

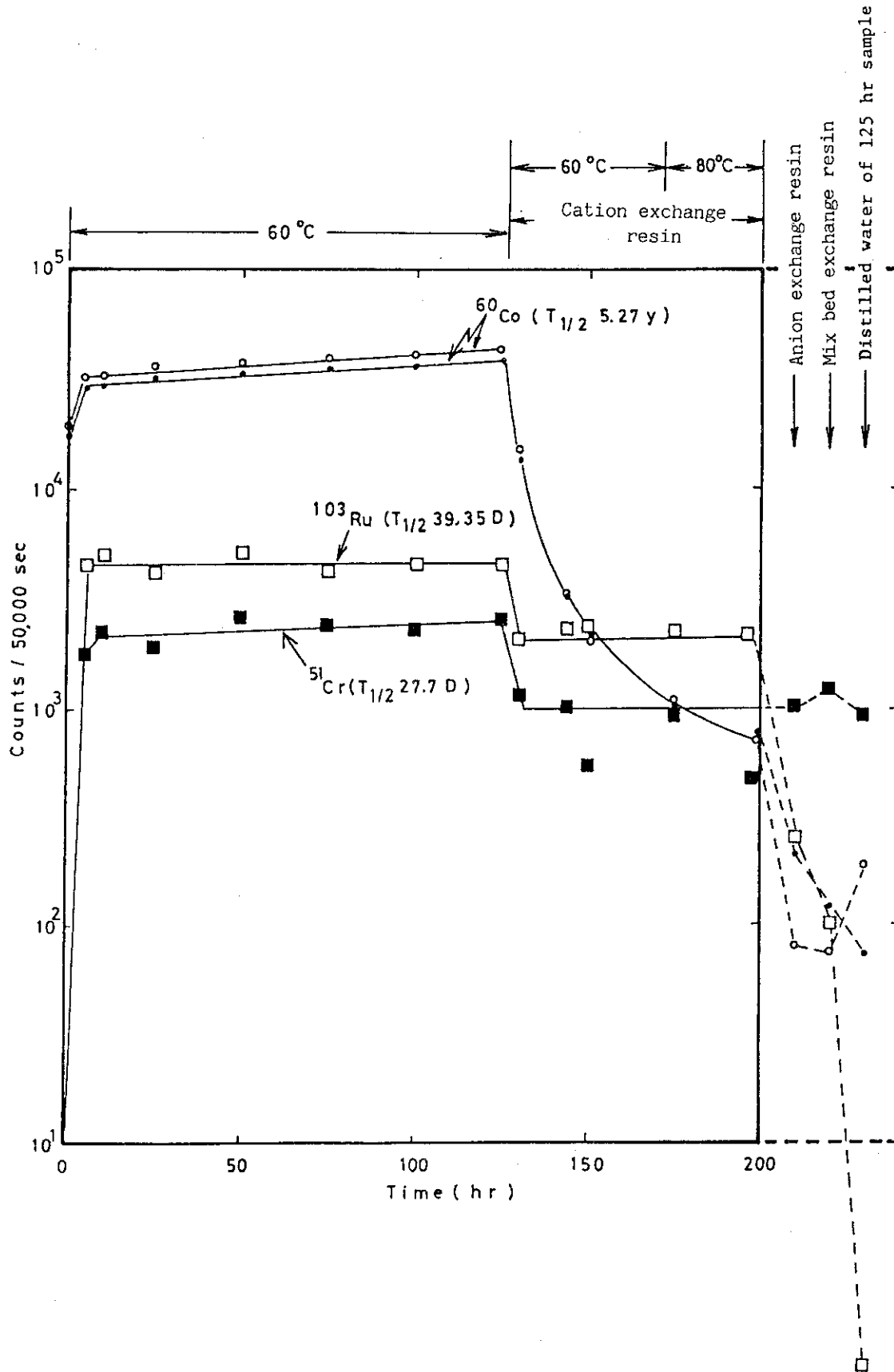


Fig. 10 variation of radionuclides in the decontamination solution (2)

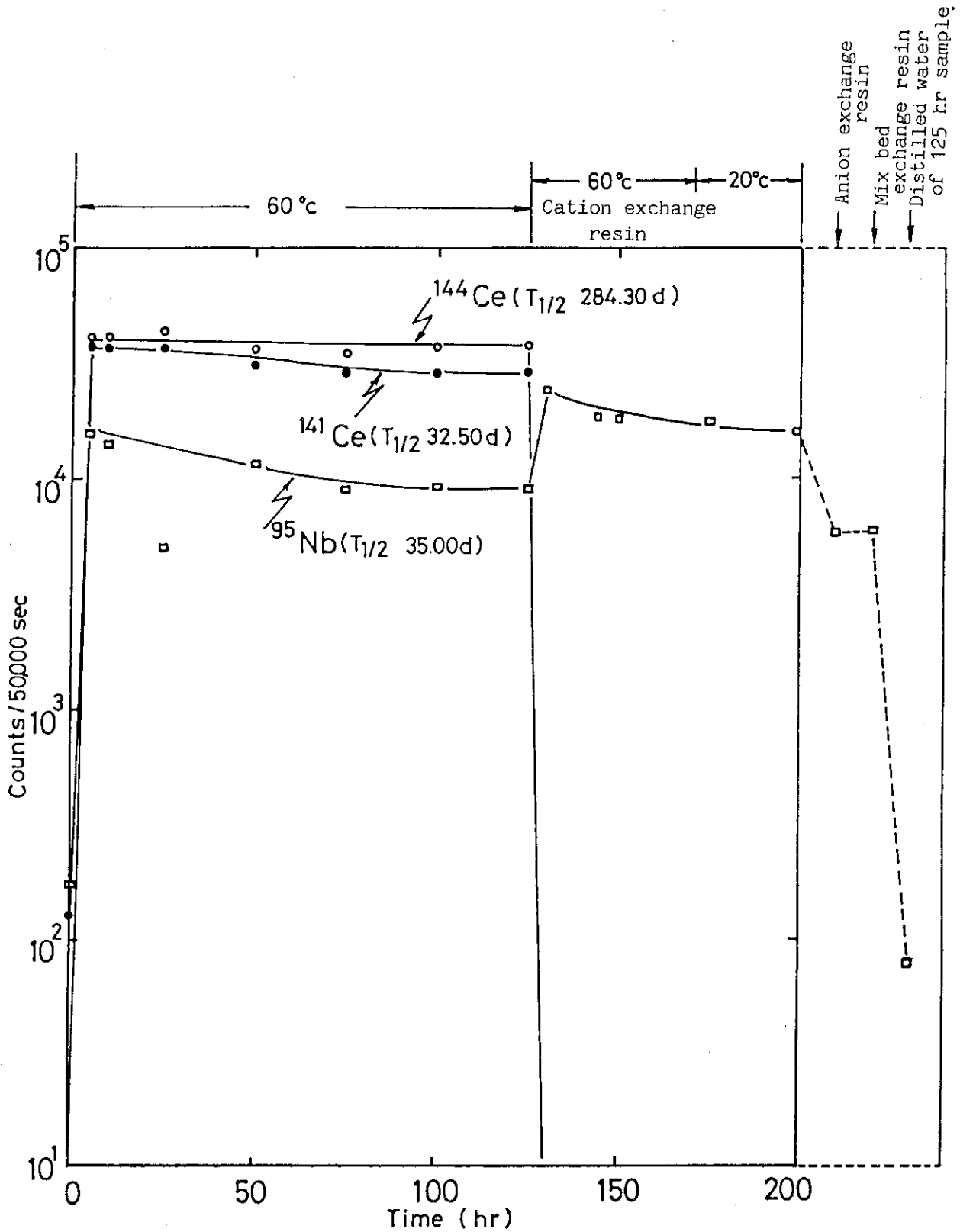


Fig. 11 Variation of radionuclides in the decontamination solution (3)

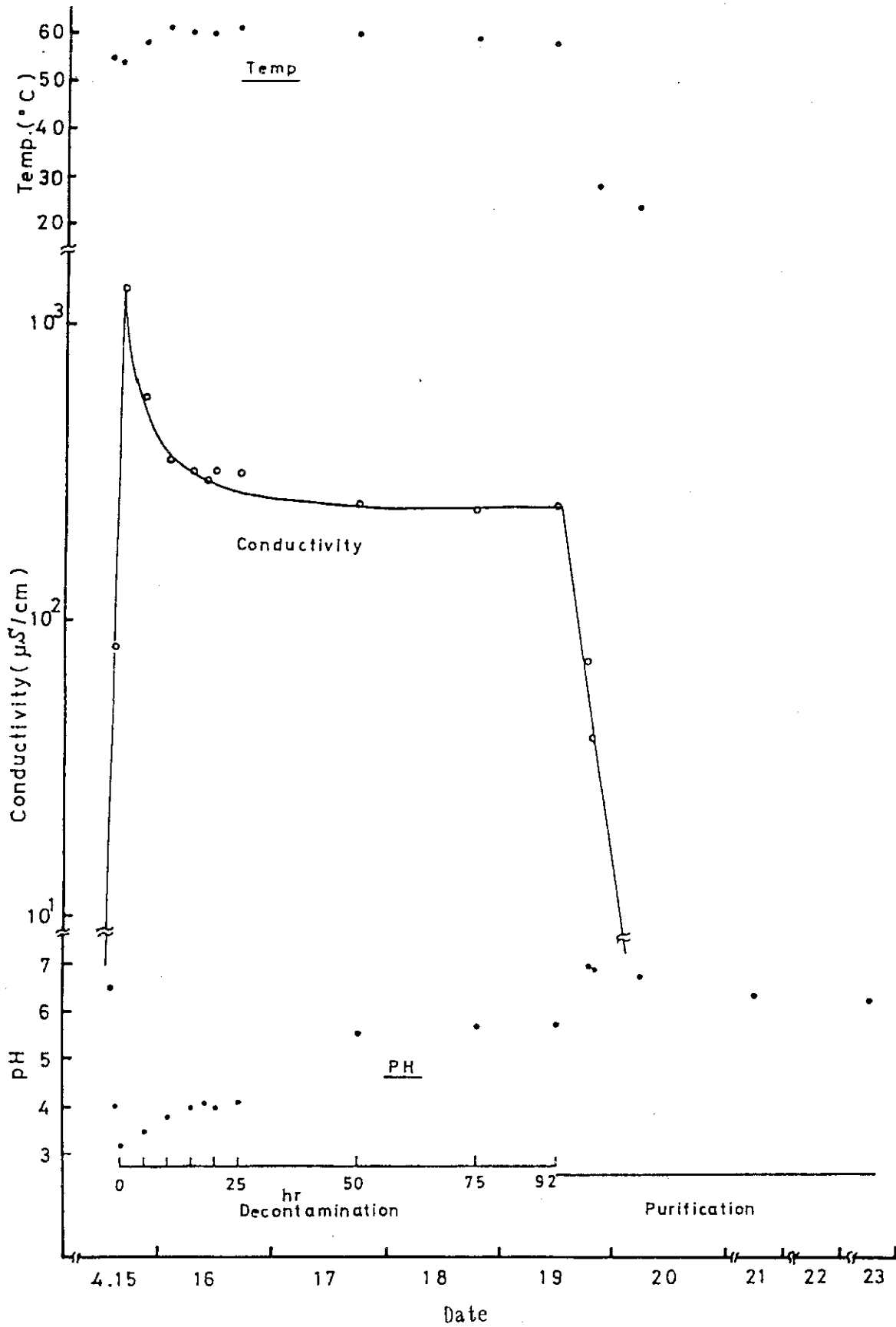


Fig. 12 variation of pH conductivity in the decontamination solution of decontamination experiment for vertical thimble

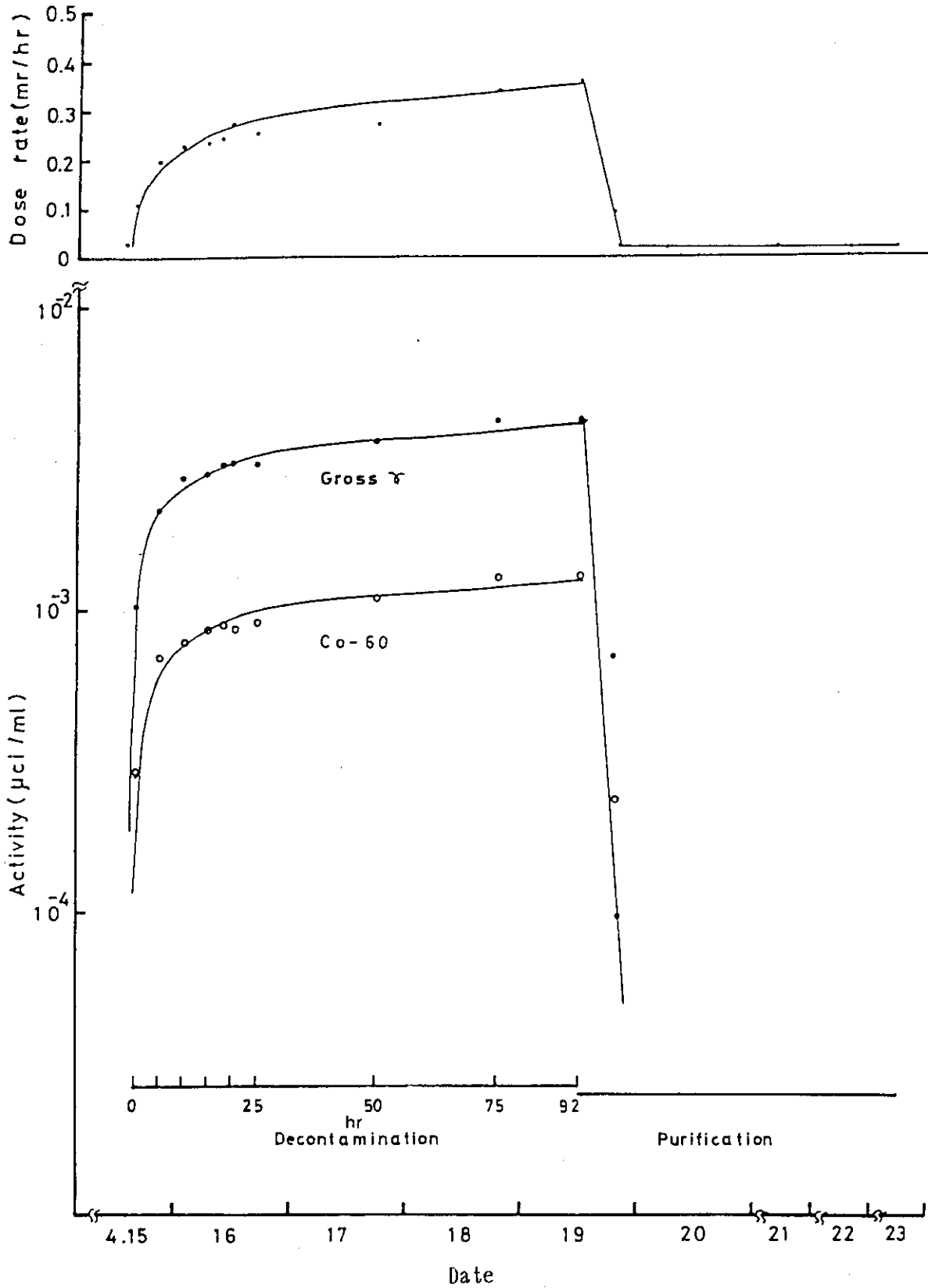


Fig.13 Variation of gross γ activity and ^{60}Co in the decontaminaton solution of decontamination experiment for vertical thimble

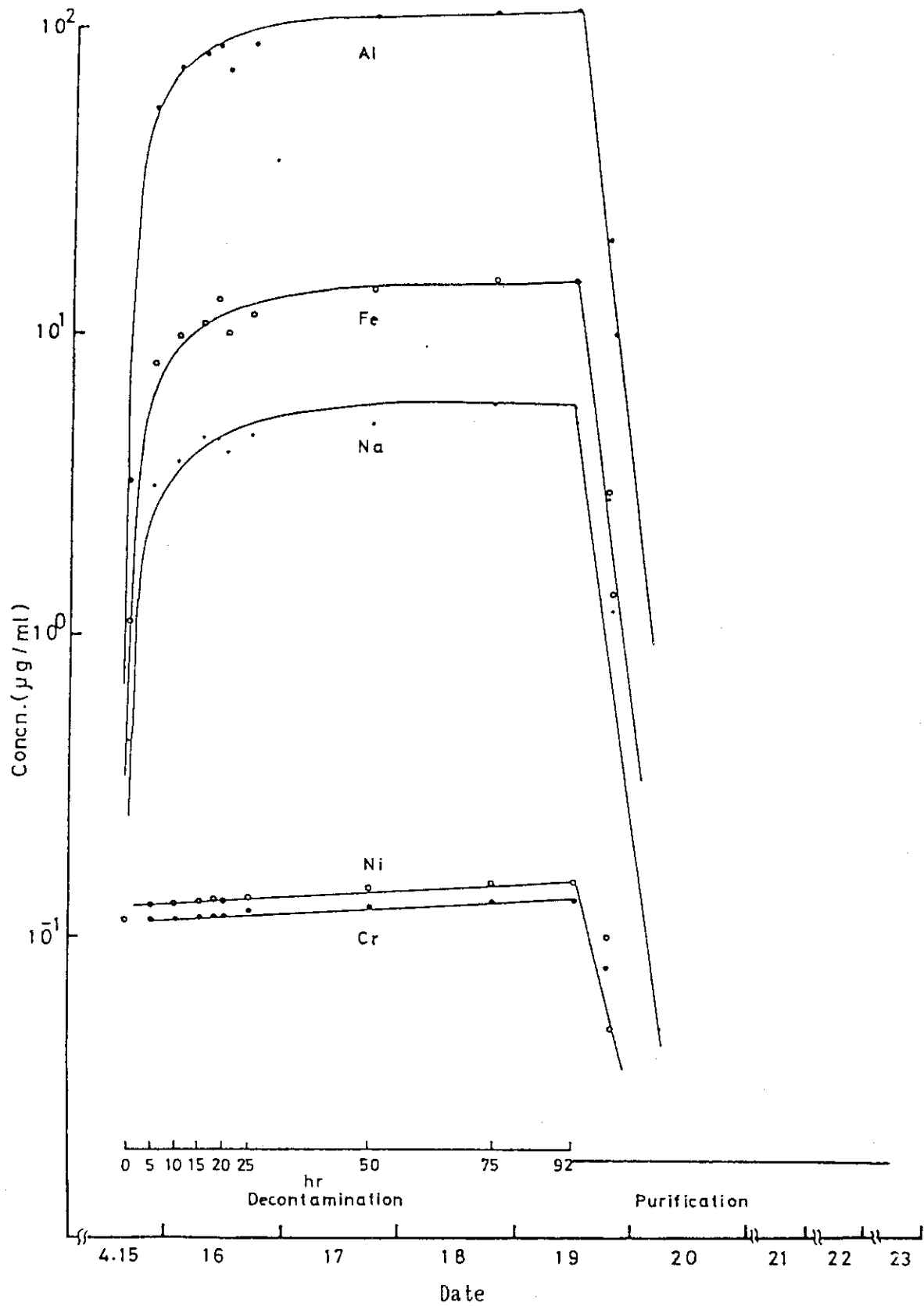


Fig.14 Concentration of dissolved metals in the decontaminant solution of decontamination experiment for vertical thimble

実験条件

溶液：除染剂0.1%溶液

液温：60 °C

比液量：① 10 ml/cm²

② 10 ml/cm²

③ 16 ml/cm²

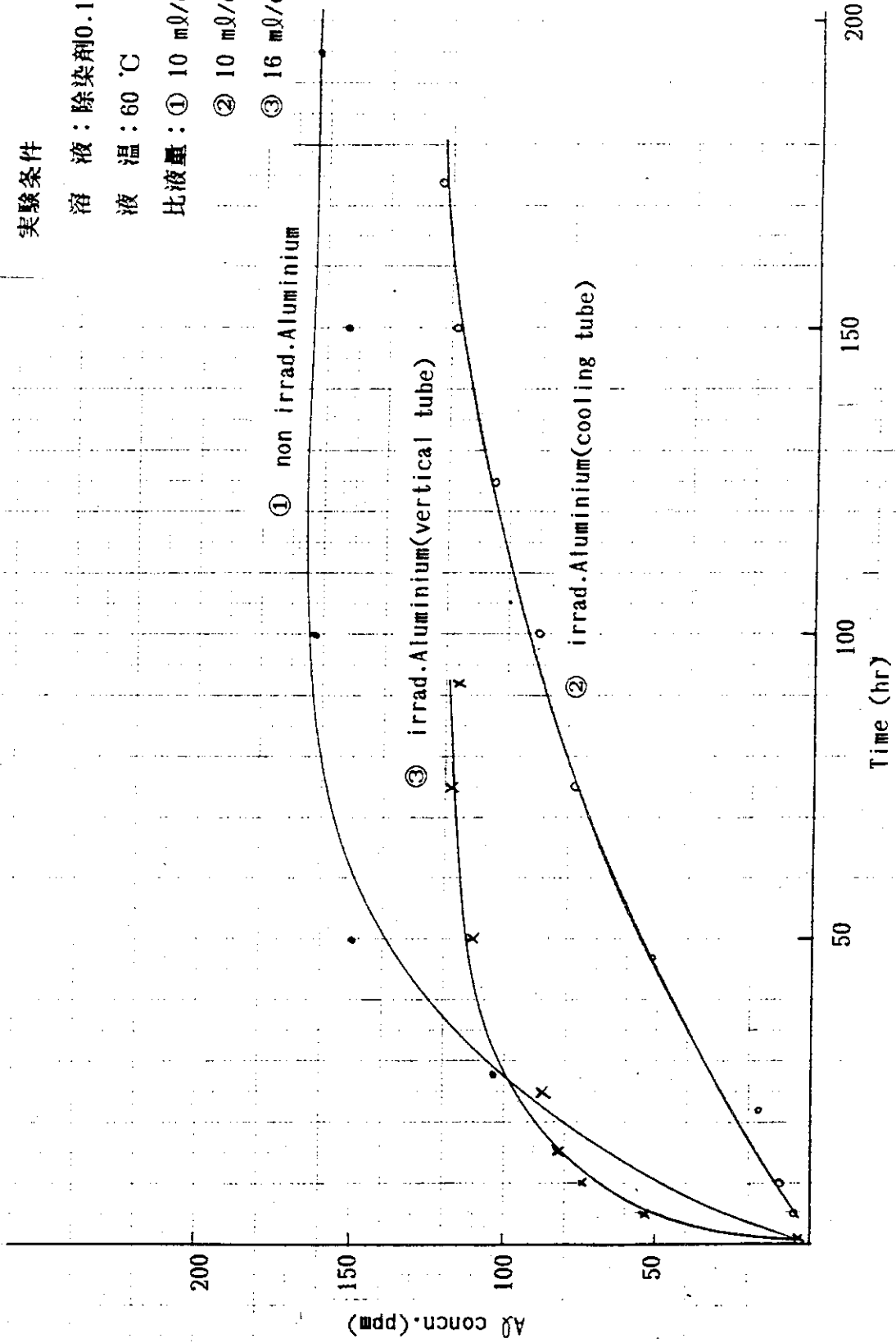


Fig.15 Resolution curve of Aluminium

APPENDIX ウランの除染係数について

ウラン汚染の非均一性因子を考慮して除染係数を表わせれば次のようになる。

$$DF = \frac{P_1 \cdot C}{P_2 \cdot R} \dots\dots\dots (1)$$

あるいは

$$DF = \frac{D/S + P_2 \cdot R}{P_2 \cdot R} \dots\dots\dots (2)$$

DF : 除染係数

C : 除染前の一部配管のウラン汚染量 (ng/cm²)

R : 除染後の一部配管の残留ウラン汚染量 (ng/cm²)

D : 除染液中のウランの総量 (ng)

S : 配管の接液面積 (cm²)

P₁ : 除染前ウラン汚染の非均一性因子

P₂ : 除染後残留ウランの非均一性因子

ここで、除染効果を考慮すれば、高濃度汚染の場所が低濃度汚染の場所より除染されやすいと考えるのが妥当であろう。したがって、P₁とP₂の関係は次のように推定される。

$$1 \leq P_2 \leq P_1 \dots\dots\dots (3)$$

実験値を用いて、(3)式の関係 considering (1), (2)式からP₁, P₂, DF の関係を計算した結果をTable A に示す。Table A のP₂を1とした場合と、P₂を4.5にした場合がTable 3 の値に相当する。

Table A Inhomogeneous factor of Uranium contamination and Decontamination factor of Uranium

除染前配管のウラン汚染 非均一性因子 : P ₁	除染後配管のウラン汚染 非均一性因子 : P ₂	P ₁ / P ₂	P ₁ , P ₂ を仮定した場合 のウランの除染係数
2.3	1	2.3	4.5
2.5	3	8	1.6
2.5	5	5	1.0
2.8	1.0	3	6
3.0	1.5	2	4
4.5	4.5	1	2