

# 旧廃棄物処理建家の除染技術の検討

## (技術報告)

2004年3月



核燃料サイクル開発機構  
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課  
電話：029-282-1122（代表）  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構  
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2004

## 旧廃棄物処理建家の除染技術の検討 (技術報告書)

福田誠司<sup>\*</sup>、近藤等士<sup>\*</sup>、大久保利行<sup>\*</sup>

### 要　旨

旧廃棄物処理建家（旧 JWTF）は、2010 年から本格解体を行う予定である。解体時の作業員の被ばくを低減するため、解体前に高放射性物質で汚染された機器の系統化学除染を行い、作業場所の線量率の低減を図ることを検討している。

本研究では、二次廃棄物の発生量と廃液処理費を低減する観点から、除染剤の選定を行い、ホット試験で除染効果（除染係数 DF）の評価を行うと共に、最も高い DF が得られた除染剤を使用した除染システムの概念検討を行った。

ホット試験の結果、目標とする DF が得られなかった機器に対しては、二次廃棄物の発生量と廃液処理費の増加に繋がる要素はあるが、より強力な除染剤（機器母材を溶解して放射性物質を除去する除染剤）の適用が必要である。そこで、コールド試験でステンレス鋼に対する溶解速度を評価した。

ホット試験およびコールド試験を通して得られた主な結果を以下に示す。

- (1) 水酸化ナトリウムと硝酸の交互浸漬による除染で、最も高い DF が得られた（最大 DF=10.7、80°C）。
- (2) 除染システムは、除染剤を貯留する薬注タンク、洗浄水を貯留する洗浄水タンク、除染剤および洗浄水を除染対象機器に供給する供給ポンプ、除染剤および洗浄水中の放射性物質を除去するフィルタで構成する。
- (3) 試験片を、室温で除染剤（塩酸、硫酸、硝酸とフッ化水素酸の混酸）に 24 時間浸漬した。この結果、硝酸とフッ化水素酸の混酸は、他の除染剤に比べて、著しく溶解速度が大きいことが分かった ( $7.43 \mu\text{m}/\text{日}$ )。

---

\* 大洗工学センター 照射施設運転管理センター 環境保全課

# Development of chemical decontamination method for Old Waste Treatment Facility

S.Fukuda\*, H.Kondo\*, T.Okubo\*

## Abstract

The Old Waste Treatment Facility of JOYO(Old JWTF), operation of which stopped in 1995, is scheduled to be dismantled starting in 2010. In order to reduce worker's radiation exposure, it is necessary to reduce radiation dose rate of the main equipments by system chemical decontamination before dismantling.

In this research, the decontamination solutions were selected in view of reduction of consequential waste amount and expense of treatment of decontamination waste. We evaluated decontamination factor (DF) in test with contaminated samples (Hot test). Moreover we performed a conceptual design of the decontamination system using the decontamination solution that obtained the highest DF in hot test.

The solution selected in hot test did not achieve the target DF to all equipments. For some equipment more aggressive solutions, which dissolve contaminants and base metal, would be needed, however using these solutions would tend to increase consequential waste amount and expense of treatment of decontamination waste. Therefore, we evaluated the dissolution rate of these solutions for stainless steels in test with non-contaminated samples (Cold test).

The main result of obtaining through the hot test and the cold test is shown below.

- (1) By alternating immersions in sodium hydroxide solution and nitric acid, the highest DF was obtained. (Maximum of DF= 10.7, 80°C).
- (2) The decontamination system is composed of two decontamination solution tanks, a washing water tank, a pump that supplies decontamination solutions and washing water, and filters for removing contaminants.
- (3) The test samples were immersed in various solutions ( $\text{HNO}_3+\text{HF}$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) for 24 hours at room temperature. As a result, it was confirmed that the dissolution rate of  $\text{HNO}_3+\text{HF}$  is remarkably large compared with other solutions ( $7.43 \mu\text{m/day}$ ).

---

\* Waste Management Section, Irradiation Center, Oarai Engineering Center

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 汚染性状の調査 .....	2
2. 1 調査方法 .....	2
2. 2 調査結果 .....	2
3. 除染対象機器と目標 DF .....	5
3. 1 除染対象機器 .....	5
3. 2 目標 DF の設定 .....	5
4. 除染剤の選定 .....	6
4. 1 除染剤の調査 .....	6
4. 2 除染剤の選定 .....	9
5. 除染効果の評価 .....	10
5. 1 目的 .....	10
5. 2 試験装置 .....	10
5. 3 試験条件 .....	10
5. 4 試験手順 .....	11
5. 5 試験結果 .....	12
5. 6 試験結果のまとめ .....	13
6. 除染システムの概念検討 .....	14
6. 1 前提条件 .....	14
6. 2 除染システムの構成 .....	14
6. 3 除染作業の概要 .....	14
6. 4 課題 .....	15
7. ステンレス鋼溶解速度の評価 .....	17
7. 1 目的 .....	17
7. 2 除染剤の選定条件 .....	17
7. 3 試験条件 .....	17
7. 4 実施内容 .....	18
7. 5 試験結果 .....	18

7. 6 試験結果のまとめ .....	20
8. おわりに .....	21
9. 参考文献 .....	23

## 図表目次

表 2. 1 旧 JWF 受入れ廃液中の核種の推定 .....	24
表 3. 1 除染対象機器の表面線量率 .....	25
表 3. 2 除染対象機器の目標 DF .....	26
表 4. 1 アルファベット計画で用いた除染剤の概要 .....	27
表 4. 2 除染剤選定結果のまとめ .....	28
表 5. 1 除染試験条件一覧 .....	29
表 5. 2 除染試験データ一覧（硝酸単一溶液） .....	30
表 5. 3 除染試験データ一覧（その他単一溶液） .....	31
表 5. 4 除染試験データ一覧（1N NaOH と 1N 硝酸に交互浸漬） .....	32
表 7. 1 1N 硝酸浸漬（24 時間）におけるステンレス鋼溶解量 .....	33
表 7. 2 酸洗いの有無による溶解速度への影響 .....	33
表 7. 3 各除染剤の溶解速度 .....	34
表 7. 4 溶解速度と時間の関係（硝酸とフッ化水素酸の混酸） .....	34
図 3. 1 旧 JWF の廃液処理フロー .....	35
図 5. 1 試験装置概略構成図（フード内） .....	36
図 5. 2 試験片外観 .....	37
図 5. 3 試験手順 .....	38
図 5. 4 ① 除染試験の結果（1N 硝酸、80℃） .....	39
図 5. 4 ② 除染試験の結果（0.1N 硝酸、80℃） .....	39
図 5. 4 ③ 除染試験の結果（3N 硝酸、80℃） .....	40
図 5. 4 ④ 除染試験の結果（1N 硝酸、60℃） .....	40
図 5. 4 ⑤ 除染試験の結果（1N 硝酸、常温 11℃） .....	41
図 5. 5 ① 除染試験の結果（1N 硝酸 + LAS、80℃） .....	41
図 5. 5 ② 除染試験の結果（ENS-103、60℃） .....	42
図 5. 5 ③ 除染試験の結果（1N NaOH、80℃） .....	42
図 5. 6 ① 除染試験の結果（1N NaOH と 1N 硝酸に交互浸漬、80℃） .....	43
図 5. 6 ② 除染試験の結果（1N NaOH と 1N 硝酸に交互浸漬、60℃） .....	43
図 5. 6 ③ 除染試験の結果（1N NaOH と 1N 硝酸に交互浸漬、40℃） .....	44

図 5. 6 ④ 除染試験の結果 (1N NaOH と 1N 硝酸に交互浸漬、常温 17°C) .	44
図 6. 1 除染システム概念図 .....	45
図 6. 2 既設設備と除染システム取合位置 .....	46
図 7. 1 各除染剤の溶解速度 .....	47
図 7. 2 硫酸の溶解速度と濃度の関係 .....	47
図 7. 3 塩酸の溶解速度と濃度の関係 .....	48
図 7. 4 浸漬時間と溶解厚さの関係 (20vol%硝酸 + 1.5vol%フッ化水素酸) .....	48

## 1. はじめに

旧廃棄物処理建家(以下、旧 JWTF という)は、1995 年 2 月に更新施設である廃棄物処理建家(以下、JWTF という)の運転開始に伴いその使命が終了した。旧 JWTF は、JWTF への切り替えに先立ち、設備の維持管理を容易にすることを目的に、1994 年 6 月から 11 月にかけて硝酸などを用いて系統設備の洗浄を行い、空間線量率の低減を図った。

旧 JWTF は 2010 年から解体撤去を行う予定であるが、高放射性物質で汚染された中和槽、定量槽、計量槽およびこれらに繋がる配管類(以下、高線量機器という)は、施設解体時に作業員の過度の被ばくが懸念される。これらの機器については、解体前に作業場所の線量率を可能な限り低くする必要があり、その方策の 1 つとして系統化学除染の適用を検討した。

系統除染で使用する除染剤は、①除染作業に伴い二次的に発生する廃棄物(以下、二次廃棄物という)を低減する観点から、機器母材に対する腐食が小さく、放射性物質のみを効果的に除去できること、②除染廃液の処理に係る費用を低減する観点から、更新施設である JWTF で廃液処理が可能であること、を前提として選定を行った。選定した除染剤については、実配管から採取した試験片を用いたホット試験で除染効果(除染係数  $DF =$ 除染前の放射能量／除染後の放射能量)の評価を行うと共に、最も効果があった除染剤を使用した除染システムの概念検討を行った。

また、ホット試験の結果、目標とする  $DF$  が得られなかつた機器については、二次廃棄物量および廃液処理費の増加に繋がる要素はあるが、より強力な除染剤(機器母材を溶解して放射性物質を除去する除染剤)を適用することとし、除染剤を選定するためにコールド試験を実施した。

本報告書は、上記検討および試験結果を取りまとめたものである。

## 2. 汚染性状の調査

### 2.1 調査方法

過去に実施された調査および除染作業で得られた知見から、旧 JWTF の汚染性状の検討を行った。

#### (1) アルファベット計画<sup>2)</sup>

1984 年度から 1986 年度にかけて、「常陽」における放射性腐食生成物(以下、CP という)問題の総合的な解決を目的に、①CP 振動解析技術開発、②CP 抑制技術開発、③CP 除染技術開発、④CP 除去技術開発、に関する 4 つのワーキンググループを設け、これらの研究開発を行った。

#### (2) 旧 JWTF 汚染性状調査<sup>3)</sup>

1998 年度に旧 JWTF の汚染性状および汚染状況を調査するため、旧 JWTF の高レベルタンクから蒸発缶に至る廃液供給系と蒸発缶から濃縮液受槽に至る濃縮廃液系の配管系統の一部からサンプル配管を採取し、その表面観察、放射能の核種分析および化学組成の測定を行った。

#### (3) 旧 JWTF 系統洗浄作業<sup>1)</sup>

1995 年に旧 JWTF から JWTF に運転を切り替えるにあたり、高線量機器である塔槽類および配管の系統洗浄を実施した。また、供用期間中においても放射線量率を低減するために数回系統洗浄を実施した。

### 2.2 調査結果

#### (1) アルファベット計画

CP 性状調査の目視観察において、配管内面に赤茶色の付着物の存在が確認された。この付着物を X 線回折で分析した結果、主要成分として  $\text{SiO}_2$  が同定された。その他、 $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ 、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  等の酸化物も含まれると推定された。この付着物は超音波洗浄により剥離することができ、その結果、放射能量が低減し、高い除染効果が期待できるものと推測された。

CP の元素構成を原子吸光で分析した結果、Cr 含有率が少ないとから、酸化により  $\text{Cr}^{3+}$  を溶解し易い  $\text{Cr}^{6+}$  にする酸化前処理の必要はないと考えられた。

## (2) 旧 JWTF 汚染性状調査

Ge 半導体検出装置による測定から、放射能の主要核種は  $^{60}\text{Co}$  であることが判明した。

金属顕微鏡 ( $\times 1000$  倍) による配管内面の観察により、配管表面に腐食によるものと考えられる空孔が確認された。また、配管表面に黄褐色の付着物の存在が確認された。この付着物は母材の金属組織が確認できる程度の薄膜であった。X線回折により付着物の化学組成の分析を行ったが、付着物の同定はできなかった。

配管表面の拭取りにより放射能量が大幅に低減したことから、付着物は放射性物質を含んだ、比較的ルーズなものと推測される。しかしながら、一部配管表面の空孔部に放射性物質が入り込んでいる可能性も想定される。

## (3) 旧 JWTF 系統洗浄作業

1994 年度に実施した系統洗浄では、1N、60°C の熱硝酸による浸漬除染により蒸発缶および下流の濃縮液受槽において高い除染効果が得られた (DF=3~300)。しかしながら、1N、常温の硝酸による浸漬除染後、高圧水ジェット洗浄を行った中和槽、定量槽および計量槽については、高い除染効果は得られなかった (DF=0.5~17)。同様に、1N、常温の硝酸による移送除染を行った中和槽、定量槽、計量槽を繋ぐ配管においても、高い除染効果は得られなかった (DF=1~4.5)。

## (4) 汚染性状の推定

旧 JWTF の受入廃液は、「常陽」と照射燃料集合体試験施設（以下、FMF という）からのアルカリ廃液（水酸化ナトリウム）である。この廃液は旧 JWTF の中和槽に移送された後、硝酸で中和処理される。受入廃液中には、発生元施設から放射性物質や機器の母材であるステンレス鋼の成分が移行しているものと考えられる。発生元施設の廃液中に含まれる成分の分析結果<sup>2) 4)</sup> と、この結果から推定した化合物、さらに旧 JWTF で中和処理後に生成されると推定した化合物を表 2.1 に示す。

以上のことから、旧 JWTF の汚染性状を以下のように推定した。

- ① 中和処理後に生成する化合物は、放射能の主要核種である  $^{60}\text{Co}$  を含ん

だ酸化物（同定された  $\text{SiO}_2$  の他、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  等）の状態で機器表面に付着している。

- ② 付着する放射性物質は、厚さ数  $\mu\text{m}$  以下の薄膜の状態で存在しており、比較的ルーズな状態で機器内面に付着している。
- ③ 放射性物質の一部は、機器表面の空孔部に入り込んでいる可能性がある。
- ④ 放射性物質の除去については、熱硝酸による浸漬除染により大きな除染効果が期待できる。

### 3. 除染対象機器と目標 DF

#### 3. 1 除染対象機器

旧 JWTF の系統図を図 3.1 に、除染対象機器の解体時に想定される表面線量率を表 3.1 に示す。解体時の対象機器の表面線量率は、1994 年度に実施した旧 JWTF の系統洗浄作業におけるドレンアウト後の測定値をベースに算定した。2010 年の解体開始までの 16 年間の減衰効果を考慮し、主要核種が  $^{60}\text{Co}$  (半減期約 5.3 年) であることから、機器の表面線量率は約 12%まで低下すると評価した。

#### 3. 2 目標 DF の設定

解体前の除染は、作業員の被ばくを低減する観点から非常に重要であるが、必要以上に除染を行うと、二次廃棄物量の増加を招くことになる。そこで、解体時の作業員被ばくを規定値 ( $1\text{mSv}/\text{週}$ ) 内に抑えるため、目標とする DF を以下のように設定した。

主要な被ばくは、作業員が直接機器に接している際に受けるものとして評価した。中和槽、定量槽、計量槽およびそれらを繋ぐ配管の解体は、グリーンハウス内での作業となる。グリーンハウス内の作業は、3 シフト／日、1 シフトの作業時間を約 1.5 時間とすると、1 シフトあたりの作業員は 1 週間（5 日）で 7.5 時間被ばくする。

解体時の被ばくを規定値以下に抑えるには、機器表面の線量率を約  $0.1\text{mSv}/\text{時間}$  以下にする必要がある。除染対象機器の目標 DF を表 3.2 に示す。計量槽本体の目標 DF が最も大きく約 200、計量槽の下流側の配管で約 50、その他機器については 10 前後となる。

#### 4. 除染剤の選定

廃止措置時の除染作業は、高い除染効果が要求されるとともに、二次廃棄物量や廃液処理費の低減が要求される。

除染剤の選定にあたり、①二次廃棄物量を低減する観点から、機器母材に対する腐食が小さく、放射性物質のみを効果的に除去できること、②除染廃液の処理に係る費用を低減する観点から、更新施設である JWF で廃液処理が可能なこと、を条件とした。

上記の観点から、一般産業分野（ボイラー等）で使用されている酸系除染剤およびアルカリ系除染剤、アルファベット計画で使用された除染剤、原子力分野で実績のある除染剤について調査を行った。更に、除染効果を高める補助剤として除染剤に添加する界面活性剤についても調査を行った。

##### 4. 1 除染剤の調査

###### (1) 酸系除染剤

酸を使用する主目的は、酸化皮膜の溶解と金属イオンの溶解性やイオン交換作用を増大させることである。これらは、亜鉛のように反応しやすい金属を除いて、ほぼ全ての金属材料に用いることができる。酸は効果的に作用し、除染剤として広く使われている。

###### ①硝酸<sup>1) 6)</sup>

硝酸は、酸化性の酸であり、ステンレス鋼の洗浄に用いられる。また、ステンレス鋼に対する腐食性は殆んどない。原子力産業界では再処理施設のプルトニウム酸化物、核分裂生成物、汚泥沈殿物や系統配管の残留汚染物を溶解するために使われている。1994 年に実施した旧 JWF 系統洗浄において、常温での浸漬除染では、高い除染効果が得られなかつたが、60℃以上の熱硝酸を用いた浸漬除染は有効であった。

一方、硝酸は JWF で使用されている薬品であり、JWF での廃液処理が可能である。

###### ②硫酸<sup>1) 6)</sup>

硫酸は、カルシウム化合物を含まない酸化物を除去する場合に使用される酸化剤であり、ステンレス鋼に対する腐食性はあるが、塩酸ほど大

きくない。

一方、硫酸は J W T F で受入れた実績がなく、廃液処理後の設備の健全性が担保できないことから、新に専用の処理設備を設ける必要がある。また、過去に旧 J W T F で硫酸が含まれた除染剤を処理した際に、硝酸ナトリウムと反応して硫化ナトリウムとなり、さらに、800℃以上に加熱すると溶融硫化ナトリウムとなり、高温硫化腐食により設備が腐食する可能性があるとの知見が得られている。

### ③塩酸<sup>6)</sup>

塩酸は、事業用ボイラーの化学洗浄剤として広く使用されており、鉄酸化物をよく溶解すると共に、ステンレス鋼に対する腐食性も大きい。

一方、塩酸は J W T F で受入れた実績がなく、廃液処理後の設備の健全性が担保できないことから、新に専用の処理設備を設ける必要がある。

### ④硝酸とフッ化水素酸の混酸<sup>6)</sup>

硝酸とフッ化水素酸の混酸は、オーステナイトステンレス鋼の脱スケールに最も効果的で広く使用されている。ただし、ステンレス鋼に対して腐食性がある。フッ酸による脱スケールおよびステンレス母材腐食後の不動態皮膜を再生するために硝酸が、ステンレスの腐食を抑制するためにインヒビターが使用される。

一方、硝酸とフッ化水素酸の混酸は、J W T F で受入れた実績がなく、廃液処理後の設備の健全性が担保できないことから、新に専用の処理設備を設ける必要がある。

## (2) アルカリ系除染剤<sup>6)</sup>

### ①水酸化ナトリウム

水酸化ナトリウムは、強アルカリ性で、シリカスケールに対する溶解力があり、金属洗浄における脱脂洗浄にも広く用いられている。また、ステンレス鋼に対する腐食性はない。アルファベット計画で、「常陽」の配管表面から SiO<sub>2</sub> が同定されており、「常陽」からの廃液を受入れる旧 J W T F の系統内にも同様に SiO<sub>2</sub> が存在すると推定される。放射性物質が SiO<sub>2</sub> 内に取り込まれている場合、水酸化ナトリウムで溶解することにより、高い除染効果が期待できる。

一方、水酸化ナトリウムは JWTF で使用されている薬品であり、JWTF での廃液処理が可能である。

### (3) アルファベット計画で使用された除染剤

アルファベット計画の「CP 除染技術開発」では、市販除染剤の中から 6 種類 (A~F) の除染剤を選定し、「常陽」および FMF のホットサンプルを用いた除染試験を実施した。使用した除染剤の種類およびアルファベット計画で評価された除染剤の概要を表 4.1 に示す。

表 4.1 に示すとおり、除染剤 B と E で「常陽」および FMF 両方の試験において高い除染効果が得られた。また、除染剤 E は、ステンレス鋼に対する腐食性はほとんどなかった。

除染溶液の内、A と E は旧 JWTF で受入れた実績があることから、JWTF で同様に処理できる可能性がある。

### (4) 原子力分野で実績のある除染剤

#### ①HOP 法<sup>5) 6)</sup>

「ふげん」で実施した酸化還元法による除染法の一例である。ヒドログン-シュウ酸-過マンガン酸カリウムを用いた除染法であり、除染部位によって差はみられるが、DF は最大約 24 と十分な除染効果を得ることができる。

除染廃液については、JWTF で受入れた実績がなく、廃液処理後の設備の健全性が担保できないことから、新に専用の処理設備を設置する必要がある。

#### ②CORD 法<sup>6)</sup>

酸化処理に過マンガン酸を用い、還元除染には単純な化学構造のカルボン酸(シユウ酸)を用いて酸化／還元除染をマルチステップ、マルチサイクルで行う希薄溶液除染プロセスの総称である。酸化剤と還元剤は相互に化学分解して、その大部分を炭酸ガスと水に分解して二次廃棄物発生量を低減できることを特徴とする。国内では原子炉再循環系配管、再循環ポンプ等の除染に用いた実績がある。

除染廃液については、JWTF で受入れた実績がなく、廃液処理後の設備の健全性が担保できないことから、新に専用の処理設備を設置する必要

がある。

### ③NP - LOMI 法<sup>7)</sup>

英国 CEGB で開発された方法で、主に Cr<sup>3+</sup> がクラッドの主成分である PWR の系統除染方法である。2 段階除染方法であり、1 段階目（NP 法）で Cr<sup>3+</sup> を Cr<sup>6+</sup> に酸化溶解し、2 段階目（LOMI 法）で Fe<sup>3+</sup> を Fe<sup>2+</sup> に還元溶解することにより、クラッドを除去、溶解する方法である。除染剤には NP 法で過マンガン酸カリウム硝酸を LOMI 法で還元性バナジウム、ピコリン酸、蟻酸が用いられる。

除染廃液については、JWTF で受入れた実績がなく、廃液処理後の設備の健全性が担保できないことから、新に専用の処理設備を設置する必要がある。

## 4. 2 除染剤の選定

### (1) 除染剤

旧 JWTF の汚染性状に対して除染効果があり、JWTF での処理が可能なことから、除染剤として硝酸、水酸化ナトリウム、除染溶液 E（荏原洗浄工業（株）製 ENS-103）を選定した。選定結果のまとめを表 4.2 に示す。

### (2) 界面活性剤<sup>6), 8)</sup>

界面活性剤を除染剤の補助剤として用いる場合、その除染効果は勿論のこと廃液処理方法についても検討する必要がある。

界面活性剤はその性質上、取扱時に気泡が生じる。JWTF の廃液処理を行う蒸発缶の運転では、気泡が阻害要因とされているため、界面活性剤の選定にあたり、気泡の発生量に留意する必要がある。また、界面活性剤は除染効果を高める補助剤として除染剤に添加するため、除染剤との化学反応性についても考慮する必要がある。

以上のことから、①気泡力が比較的低い、②除染剤（硝酸）との化学反応性が低い、③洗浄効果が高い、等の特徴を有する直鎖アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム（LAS）を選定した。

## 5. 除染効果の評価

### 5. 1 目的

ホットサンプルを用いたビーカスケールでの浸漬試験を行い、4章で選定した各除染剤の除染効果を評価した。

### 5. 2 試験装置

本試験は、JWTF の地下 2 階にある既設フード内に装置を持込み実施した。本試験装置の主要な構成機器を以下に示す。また、試験装置の概略構成を図 5. 1 に示す。

- ・ ビーカ (ポリエチレン製)
- ・ 温度調節器付きウォーターバス
- ・ Ge 半導体検出装置
- ・ 熱電対

### 5. 3 試験条件

#### (1) 試験パラメータ

除染剤の種類、温度、濃度をパラメータとして試験を行った。表 5. 1 に試験パラメータの一覧を示す。

##### ① 除染剤

除染剤は 4 章の結果から、硝酸、水酸化ナトリウム、ENS-103 (荏原洗浄工業製)、硝酸に界面活性剤 (LAS) を添加した溶液を单一溶液として使用した。その他、水酸化ナトリウムと硝酸に交互に浸漬する組合せ除染を行った。

##### ② 温度

一般的には除染剤の温度が高いほど、大きな除染効果が期待できる。その反面、除染剤の取扱性、安定性は低下する。また、系統内で除染剤を高温に維持するには、昇温装置等の附帯設備が必要となりシステムが大規模になる。そこで、本試験では除染剤の上限温度を、硝酸の沸点 (約 86°C) 以下として 80°C に設定した。温度条件として常温、60°C、80°C の

計 3 点とした。

### ③濃度

除染剤の濃度は、溶液の取扱性、廃液処理の容易性を考慮した場合、可能な限り低い濃度が望ましい。

硝酸と水酸化ナトリウムについては、JWTF で扱っている薬品であり、その最大濃度は 1N である。そこで、両者とも使用する濃度の基準を 1N とした。

硝酸の単一溶液については、濃度と除染効果の関係を調べるため、0.1N、1N、3N の計 3 種類を使用した。

### (2) 浸漬条件

①除染剤 300ml に 1 個の試験片を浸漬

②静的浸漬（除染剤の攪拌は行わない）

③浸漬時間は、実際に系統除染を実施する場合、1 日の作業時間は最大 7 時間である。作業準備、片付け等に約 1.5 時間費やすものとして、本試験における最大除染時間（累積）は約 5.5 時間とする。

### (3) 試験片

試験片は、旧 JWTF の撤去済み配管を輪切り状に切断したものである。配管の材質は SUS304 で、口径は 15A と 20A の 2 種類がある。試験片はビーカーに入れることを考慮し、2cm の長さとした。試験片の放射能の主要核種は  $^{60}\text{Co}$  であり、1 試験片あたりの放射能量は、 $2.3 \times 10^3 \text{ Bq} \sim 4.2 \times 10^4 \text{ Bq}$  であった。試験片の外観写真を図 5.2 に示す。

試験片の元となる配管は、中和槽で中和、沈降処理した後の上澄水を蒸発缶に移送する系統のものである（図 3.1 参照）。

## 5.4 試験手順

本試験は以下の手順で実施した。本試験の作業手順を図 5.3 に示す。

- ①試験前に Ge 半導体検出装置により、試験片の放射能量を測定する。
- ②水洗いによる除染効果の影響を評価するため、除染剤中に試験片を入れて揺すった後、直ぐに取り出し試験片の放射能量を測定する。
- ③再度、試験片を除染剤中に浸漬させ、30 分後に取り出し放射能量を測

定する。この測定結果に基づき、次の浸漬時間を決定する。

④浸漬時間の累積が 5.5 時間に達するか、または、除染効果が大きく変化しなくなるまで、浸漬、放射能量測定を繰り返す。

## 5.5 試験結果

除染試験で得られた放射能量測定データと除染効果 (DF) を表 5.2~5.4 に示す。また、各除染条件における除染効果のグラフを図 5.4~5.6 に示す。

### (1) 除染剤の種類による影響

除染剤の温度、浸漬時間の条件を一定にして、各除染剤による除染効果を比較した。80°C、150 分の条件で比較すると、1N 硝酸の DF が 1.7、1N 水酸化ナトリウムの DF が 1.7~2.2、1N 硝酸に界面活性剤を添加した溶液の DF が 1.9、1N 水酸化ナトリウムと 1N 硝酸に 30 分間隔で交互に浸漬した場合の DF が 5.7 となった。

ENS-103 溶液については、最高使用温度が 60°C であるため、60°C、1N 硝酸と比較した。浸漬時間 150 分で、ENS-103 の DF が 1.5、1N 硝酸の DF が 2.0 となった。

この結果、水酸化ナトリウムと硝酸に交互に浸漬する方法により、最も大きな DF が得られた。この理由としては、水酸化ナトリウムにより、<sup>60</sup>Co を取り込んだ SiO<sub>2</sub>（酸に対して難溶解）を溶解し、次の硝酸により、<sup>60</sup>Co を溶解しているものと考えられる。

硝酸、水酸化ナトリウム、ENS-103 溶液単一での浸漬除染では、除染剤の種類による著しい DF の差はなく、DF もあまり大きくなかった。また、硝酸に界面活性剤を添加しても、DF には殆ど影響しなかった。

### (2) 除染剤の温度による影響

1N の硝酸については、常温で殆ど除染効果は得られなかった。また、除染剤の温度が 80°C と 60°C の場合を比較すると、温度による著しい DF の差は見られなかった。

1N 水酸化ナトリウムと 1N 硝酸に交互に浸漬した場合は、全ての温度条件（常温、40°C、60°C、80°C）で大きな DF が得られており、温度による著しい DF の差も見られなかった。

### (3) 除染剤の濃度による影響

温度、浸漬時間の条件を一定にして、各濃度での硝酸による除染効果を比較した。80°C、270分の条件で比較すると、1N 硝酸のDFが2.9、0.1N 硝酸のDFが1.6、3N 硝酸のDFが2.2となり、濃度による著しいDFの差はなく、DFもあまり大きくなかった。

よって、過去に系統除染を実施した際に使用した1N 硝酸に比べて、高濃度の硝酸を用いたとしても、大きなDFは得られないと考えられる。

### (4) 水洗いによる除染効果の影響

浸漬直後（除染剤中に試験片を入れて揺すった後）のDFは殆ど変化していない。このことから、除染剤を使用せずに系統を水洗いする程度の除染では効果がないものと考えられる。

## 5.6 試験結果のまとめ

硝酸、水酸化ナトリウム、アルファベット計画で使用された除染剤、硝酸に界面活性剤を添加した溶液による浸漬および水酸化ナトリウムと硝酸による交互浸漬を行った。

この結果、水酸化ナトリウムと硝酸による交互浸漬により、最も高い除染効果 (DF=10.7、80°C) が得られた。

除染対象機器の目標DF（表3.2参照）から、中和槽、定量槽、中和槽と定量槽の連結配管、定量槽と計量槽の連結配管については、水酸化ナトリウムと硝酸による交互浸漬法により目標DFが得られる可能性がある。しかしながら、計量槽、計量槽と固化装置の連結配管に対しては、除染効果が不足するため、本除染方法とは別の方法を適用する必要がある。

## 6. 除染システムの概念検討

ホット試験で最も高い除染効果が得られた除染剤をベースに、除染システムの概念検討を行った。

### 6.1 前提条件

除染システム検討の前提条件を以下に示す。

- ①中和槽、定量槽およびこれら機器を繋ぐ配管を除染対象とする。
- ②除染剤として硝酸と水酸化ナトリウムを使用する。
- ③除染プロセスは、水酸化ナトリウム浸漬→水洗→硝酸浸漬→水洗の工程を繰り返し行う。
- ④除染剤および洗浄水（脱塩水）は循環して再使用する。
- ⑤除染剤は80℃まで昇温して使用する。
- ⑥再使用により、次第に汚染される除染剤および洗浄水は、フィルタにより浄化させる。

### 6.2 除染システムの構成

水酸化ナトリウムと硝酸による交互浸漬による除染システム概念を図 6.1 に示す。除染システムは、除染剤を貯留する薬注タンク（2基：水酸化ナトリウム、硝酸用）、除染剤を昇温するためのヒータ、洗浄水を貯留する洗浄水タンク、除染剤および洗浄水を除染対象機器に供給する供給ポンプ、除染剤および洗浄水をタンクに回収する回収ポンプ、除染剤および洗浄水中の放射性物質を除去するフィルタで構成する。

### 6.3 除染作業の概要

#### (1) 除染対象機器への接続

中和槽、定量槽およびこれら機器を繋ぐ配管の除染にあたり、仮設配管で上記システムを接続する。除染剤供給用の仮設配管の接続は、中和槽と定量槽でのクロスコンタミを防止するため、個別に設けることとする。中和槽および中和槽と定量槽の連結配管を除染する場合、中和槽に薬品を供給する既設薬注ラインに、定量槽および定量槽と計量槽の連結

配管を除染する場合、既設濃縮受槽から定量槽に繋がるラインに除染剤供給ラインを接続する。除染剤回収用の仮設配管は、共用することとし、中和槽、定量槽のドレンラインに除染剤回収用の仮設配管を接続する（図6.2 参照）。

### (2) 除染作業

除染作業は、中和槽および中和槽と定量槽の連結配管の除染が完了したのち、定量槽および定量槽と計量槽の連結配管の除染を行う。除染の基本手順を以下に示す。

- ① 薬注タンクの水酸化ナトリウムを80℃に昇温した後、供給ポンプにより対象機器に注入する。一定時間浸漬後、水酸化ナトリウムは、回収ポンプによりフィルタを経由して薬注タンクに回収する。
- ② 供給ポンプにより、洗浄水タンクの水を対象機器に洗浄水を注入する。洗浄後の水は、回収ポンプによりフィルタを経由して洗浄水タンクに回収する。
- ③ 硝酸も同様に80℃に昇温した後、供給ポンプにより対象機器に注入する。一定時間浸漬後、硝酸は、回収ポンプによりフィルタを経由して薬注タンクに回収する。
- ④ 上記②と同様に対象機器を洗浄水で洗浄する。
- ⑤ 対象機器の表面線量率を測定し、目標DFが得られるまで、上記①～④を繰り返し行う。
- ⑥ 除染作業に伴いフィルタの交換をする必要がある。除染作業中に常に、フィルタの差圧および表面線量率を測定し、閉塞または設定線量率に上昇したと予測される時点で交換を行う。

### (3) 除染廃液の処理

除染完了時および除染中に廃液として排出する硝酸、水酸化ナトリウムおよび洗浄水は、200Lドラム缶で保管する。

## 6.4 課題

### (1) 除染条件の最適化

本除染法を実機に適用するにあたり、各除染剤への浸漬時間および浸

漬回数による除染効果への影響をホット試験で評価し、最適な条件を調査する必要がある。

(2) フィルタの交換方法

除染剤および洗浄水中の放射性物質はフィルタで除去することから、フィルタ交換時に作業員の被ばくが考えられる。フィルタのモジュール化、遠隔での交換等フィルタの交換方法について検討する必要がある。

## 7. ステンレス鋼溶解速度の評価

### 7.1 目的

水酸化ナトリウムと硝酸の交互浸漬で、目標とする DF が得られなかつた機器については、二次廃棄物量および廃液処理費の増加に繋がる要素はあるが、より強力な除染剤（機器母材を溶解して汚染物を除去する除染剤）を適用することを検討した。

本試験は、ホット試験で使用する除染剤を選定するため、ピーカスケールでの浸漬試験を行い、各除染剤のステンレス鋼に対する溶解速度を評価した。

### 7.2 除染剤の選定条件

過去に実施した電解研磨試験で、旧 JWF のホットサンプルを約 15 分間浸漬したところ、放射能量がバックグラウンドレベルになった。この時のステンレス鋼の平均研磨厚さは約  $30\text{ }\mu\text{m}$  であった。

そこで、ホット試験で使用する除染剤は、実機での除染作業期間を最大 4 日（1 週間で作業を完了することを目標に設定した）と想定し、この期間内で約  $30\text{ }\mu\text{m}$  溶解でき、かつ、低濃度のものを選定することを条件とした。

### 7.3 試験条件

#### (1) 除染剤

4 章の調査結果から、ステンレス鋼に対して腐食性のある塩酸、硫酸、硝酸とフッ化水素酸の混酸を除染剤の候補とした。試験で使用した各除染剤の濃度を以下に示す。

- ① 塩酸 (1wt%、5wt%、15wt%)
- ② 硫酸 (20wt%、30wt%)
- ③ 硝酸 (20vol%) + フッ化水素酸 (1.5vol%)

#### (2) 浸漬条件

- ① 除染剤 300ml に 1 個の試験片を浸漬
- ② 除染剤の液温管理なし（室温で放置）
- ③ 静的浸漬（除染剤の攪拌は行わない）

④除染剤の再使用なし（除染剤は試験片ごとに新しいものに交換）

### (3) 試験片

①材質：SUS304

②寸法：32A (Sch5) × 20mm

## 7.4 実施内容

### (1) 酸洗いによる溶解速度への影響調査

旧 JWTF の除染対象機器は、施設停止時に硝酸で酸洗い（除染）を実施している。硝酸で酸洗いした試験片と市販材の試験片を用いて浸漬試験を行い、溶解速度 ( $\mu\text{m}/\text{日}$ ) の違いを評価した。

除染剤は、塩酸 (1wt%)、硫酸 (20wt%)、硝酸とフッ化水素酸の混酸の3種類を使用した。

### (2) 溶解速度の調査

ホット試験で適用する除染剤の条件を選定するため、24時間浸漬により溶解速度を求めた。溶解速度は、浸漬前後の試験片の減重量から計算し、24時間浸漬を3回行い、その平均値から求めた。

### (3) 溶解特性の評価

選定した除染剤について、溶解特性（溶解厚さと時間の関係）を評価するため、上記(2)で求めた溶解速度から溶解厚さ  $13\mu\text{m}$ 、 $30\mu\text{m}$ に達する時間を求め、その時間連続浸漬を行い、溶解厚さと時間の関係を求めた。

## 7.5 試験結果

### (1) 酸洗いによる溶解速度への影響調査

表 7.1 に示すように 1N 硝酸に 24 時間浸漬した結果、浸漬前後で顕著な重量変化は見られなかった。

硝酸で酸洗いした試験片と市販材の試験片を用いた 24 時間浸漬試験の結果を表 7.2 に示す。塩酸、硫酸、硝酸とフッ化水素酸の混酸とも、酸洗いの有無による溶解速度の差異は殆んど見られなかった。

以上のことから、酸洗いの有無による溶解速度への影響はないものと

判断し、以後の浸漬試験では市販材の試験片を用いることとした。

## (2) 溶解速度の調査

24時間浸漬試験から得られた各除染剤に対する溶解速度を表7.3および図7.1に示す。

硝酸とフッ化水素酸の混酸による溶解厚さは、 $7.43\text{ }\mu\text{m}/\text{日}$ となり、目標溶解厚さ $30\text{ }\mu\text{m}$ を溶解するのに4日必要となる。

図7.2に示すとおり、硫酸濃度20wt%、30wt%の場合、溶解厚さは、 $0.09\text{ }\mu\text{m}/\text{日}$ 、 $0.04\text{ }\mu\text{m}/\text{日}$ となり、目標溶解厚さを溶解するのに必要な期間は、設定した期間（4日）を大幅に超える結果となった。また、濃度を30wt%に上げた方が溶解速度は小さくなつた。

図7.3に示すとおり、塩酸濃度1wt%、5wt%、15wt%の場合、溶解厚さは、 $0.33\text{ }\mu\text{m}/\text{日}$ 、 $0.85\text{ }\mu\text{m}/\text{日}$ 、 $2.82\text{ }\mu\text{m}/\text{日}$ となり、目標溶解厚さを溶解するのに必要な期間は、設定した期間を超える結果となつた。塩酸については、濃度が上がると溶解速度も大きくなる傾向になつた。

以上のことから、硝酸とフッ化水素酸の混酸は、設定した期間内に目標溶解厚さ $30\text{ }\mu\text{m}$ を溶解できる可能性があることが分かった。

## (3) 溶解特性の評価

硝酸とフッ化水素酸の混酸について、上記(2)の24時間浸漬で得られた溶解速度から溶解厚さ $13\text{ }\mu\text{m}$ 、 $30\text{ }\mu\text{m}$ に達する時間を求めた。必要な浸漬時間はそれぞれ44時間、96時間となり、この時間連續浸漬を行つた。この結果を表7.4、図7.4に示す。

浸漬前後の試験片の減重量を溶解厚さに換算すると、44時間浸漬の場合で約 $11\text{ }\mu\text{m}$ 、96時間浸漬の場合で約 $22\text{ }\mu\text{m}$ となり、上記(2)で得られた溶解速度から求めた溶解厚さに対して、それぞれ20%、25%程度小さくなつた。

以上のことから、浸漬時間の増加にともない溶解速度が小さくなる傾向が見られ、20vol%硝酸+1.5vol%フッ化水素酸を用いても、設定した期間内に $30\text{ }\mu\text{m}$ 溶解することはできなかつた。

## 7. 6 試験結果のまとめ

硝酸とフッ化水素酸の混酸は、塩酸、硫酸に比べて溶解速度が著しく大きく、除染剤選定の条件(4日間で $30\mu\text{m}$ 溶解)に近い溶解速度が得られた。したがって、ホット試験で使用する除染剤として、硝酸とフッ化水素酸の混酸を選定することとした。

今後、溶解速度を向上させるために2つの酸の相互比率を変えて（硝酸濃度を下げるか、または、フッ化水素酸濃度を上げる）試験を行い、選定条件を満たす比率を求める必要がある。

塩酸については、濃度に対して直線的に溶解速度が上がる傾向が見られる。選定条件を満たすには濃度を更に上げる必要があるが、1wt%、5wt%、15wt%塩酸から得られた結果を外挿すると約40wt%の濃度が必要と考えられる。市販の塩酸濃度が35wt%～37wt%であることから、濃度を変えても選定条件を満たすことは難しいと考える。

硫酸についても、溶解速度が選定条件より大幅に小さいことから、濃度を変えても選定条件を満たすことは難しいと考える。

## 8. おわりに

過去の調査、試験結果から旧 JWTF の汚染性状を推定し、二次廃棄物量および廃液処理費の低減の観点から、除染剤の選定を行った。選定した除染剤について、実配管から採取した試験片を用いたホット試験で除染効果（除染係数 DF）の評価を行うと共に、ホット試験で最も高い DF が得られた除染剤を使用した除染システムの概念検討を行った。また、ホット試験の結果、目標とする DF が得られなかつた機器については、二次廃棄物量および廃液処理費の増加に繋がる要素はあるが、機器母材ごとより強力な除染剤を適用することとし、除染剤を選定するためにコールド試験を実施した。

### (1) 汚染性状の推定

過去の調査、試験結果から、旧 JWTF の汚染性状を以下の通り推定した。

- ① 中和処理後に生成する化合物は、放射能の主要核種である  $^{60}\text{Co}$  を含んだ酸化物（同定された  $\text{SiO}_2$  の他、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  等）の状態で機器表面に付着している。
- ② 付着する放射性物質は、厚さ数  $\mu\text{m}$  以下の薄膜の状態で存在しており、比較的ルーズな状態で機器内面に付着している。
- ③ 放射性物質の一部は、機器表面の空孔部に入り込んでいる可能性がある。
- ④ 放射性物質の除去については、熱硝酸による浸漬除染により大きな除染効果が期待できる。

### (2) 目標 DF の設定

計量槽本体の目標 DF が最も大きく約 200、計量槽の下流側の配管で約 50、その他機器については 10 前後となる。

### (3) 除染剤の選定

放射性物質のみを効果的に除去できること、更新施設である JWTF で廃液処理が可能であること、を考慮し、除染剤として硝酸、水酸化ナトリウム、ENS-103（荏原洗浄工業製）を選定した。その他、硝酸に界面活性剤（LAS）を添加した溶液、水酸化ナトリウムと硝酸に交互に浸漬する組合せ溶液の 5 種類を選定した。

#### (4) 除染効果の評価

ホット試験の結果、水酸化ナトリウムと硝酸の交互浸漬による除染で、最も高い DF が得られた (DF=10.7、80°C)。この除染方法により、中和槽、定量槽、中和槽と定量槽の連結配管、定量槽と計量槽の連結配管については、目標 DF が得られる可能性がある。しかしながら、計量槽、計量槽と固化装置の連結配管については、DF が不足するため、本除染方法とは別の方針を適用する必要がある。

#### (5) 除染システムの検討

ホット試験で最も高い DF が得られた水酸化ナトリウムと硝酸の交互浸漬法を採用した除染システムの概念検討を行った。除染システムは、除染剤を貯留する薬注タンク、除染剤を昇温するためのヒータ、洗浄水を貯留する洗浄水タンク、除染剤および洗浄水を除染対象機器に供給する供給ポンプ、除染剤および洗浄水をタンクに回収する回収ポンプ、除染剤および洗浄水中の放射性物質を除去するフィルタで構成する。

#### (6) ステンレス鋼溶解速度の評価

ホット試験の結果、DF が不足する機器については、より強力な除染剤（機器母材を溶解して放射性物質を除去する除染剤）を調査するため、コールド試験でステンレス鋼に対する溶解速度を評価した。この結果、硝酸とフッ化水素酸の混酸は、溶解速度が大きく、有望であることが分かった。

#### (7) 今後の課題

- ① 水酸化ナトリウムと硝酸による交互浸漬法については、各除染剤への浸漬時間による除染効果への影響について評価する必要がある。
- ② 硝酸とフッ化水素酸の混酸による除染法については、コールド試験で各酸の最適な比率を求め、ホット試験で除染効果を評価する必要がある。また、除染廃液の処理方法についても検討する必要がある。
- ③ 旧 JWTF の解体開始時期が 2004 年度から 2010 年度に変更になり、当初想定していた目標 DF が半分程度になったこと、汚染性状調査結果から放射性物質が比較的ルーズな付着状態であると推定されることから、物理除染の適用性も考慮し、合理的な除染方法を選定する必要がある。

## 9. 参考文献

- 1) 宇佐美朋之, 他：“旧廃棄物処理建家の運転実績” ZN9440 95-004、(1995)
- 2) 田村政昭, 他：“FBRにおけるCP問題と対策” ZN9410 88-047、(1988)
- 3) 吉澤俊司, 他：“旧「常陽」廃棄物処理建家の汚染性状分析” TN9410 99-017、(1999)
- 4) 川部浩康, 他：“CP除去技術開発” ZN9410 87-085、(1987)
- 5) 森田聰, 他：“酸化還元除染法による「ふげん」原子炉冷却系Bループの系統化学除染結果”, サイクル機構技法 No.7、(2000)
- 6) 平野英樹:最新洗浄技術総覧、初版、(株)産業技術サービスセンター、(1996)
- 7) 小川竜一郎, 他：“核燃料施設デコミッショニングに関する技術調査(3)” ZN9420 95-001、(1994)
- 8) 堀口博:新界面活性剤、初版、三共出版(株)、(1975)

表2. 1 旧JWTF受入れ廃液中の核種の推定

発生元施設	分析方法	元素*	発生元施設側***		旧JWTF		備考	
			化合物性状	備考	移送配管*** (中和処理前)	中和槽 (HNO <sub>3</sub> により中和)		
「常陽」	メンテナンス建家	Ge半導体 原子吸光	60 Co	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	*アルファベット計画における分析結果	
			58 Co	Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub> 、Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub>	Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub>	**アルファベット計画における推定	
		エネルギー分散 型X線分光 (EDS)	51 Cr	NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub> 、MnO	Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
			54 Mn	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> 、NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
			55 Fe	NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub> 、NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>		
	X線回折	Si	59 Ni	SiO <sub>2</sub> 、Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
			182 Ta	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>		
		22 Na	Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> 、Na <sub>4</sub> FeO <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> (遊離)、SiO <sub>2</sub> (配管表面付着)	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>		
				Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub> (配管表面付着。ただし、ナトリウム中では還元・消失)	Na <sub>4</sub> FeO <sub>3</sub>	Na <sub>4</sub> FeO <sub>3</sub>		
	付属建家	Ge半導体 原子吸光	K	TiO <sub>3</sub>	$\gamma$ -Fe(オーステナイト) $\alpha$ -Fe(フェライト)	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	※アルファベット計画における分析結果 **アルファベット計画における推定	
			Ti	MoO <sub>3</sub>		Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub>		
		X線回折	Mo	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
			Fe	SiO <sub>2</sub> MoO <sub>3</sub> $\gamma$ -Fe(オーステナイト) $\alpha$ -Fe(フェライト)		NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
照射燃料集合体試験施設 (FMF)	Ge半導体 原子吸光	60 Co	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	コロイド状	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	※アルファベット計画における分析結果 **アルファベット計画における推定	
		58 Co	Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub> 、Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	コロイド状(一部イオン)		Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub>		
		51 Cr	NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	コロイド状(一部イオン)		Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
		54 Mn	Na <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> 、Na <sub>4</sub> FeO <sub>3</sub>	コロイド及びイオン		NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
		22 Na		イオン主体		Na <sub>4</sub> FeO <sub>3</sub>		
	エネルギー分散 型X線分光 (EDS)	60 Co	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>					
		58 Co	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> 、NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>					
		51 Cr	NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub> 、NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>					
		59 Ni	Cu <sub>2</sub> O					
	X線回折	K			$\gamma$ -Fe(オーステナイト) $\alpha$ -Fe(フェライト)	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
		Ti				Cr <sub>23</sub> C <sub>6</sub>		
		Zn				Na <sub>2</sub> Cr <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
		Mg				NiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		
		Ca				Na <sub>4</sub> FeO <sub>3</sub>		
		Si	SiO <sub>2</sub>					
		Mo	MoO <sub>3</sub>					
		55 Fe	$\gamma$ -Fe(オーステナイト)					
		59 Fe	$\alpha$ -Fe(フェライト)					

表3.1 除染対象機器の表面線量率

除染対象機器	表面線量率(mSv/h)	
	系統洗浄後 <sup>*1</sup> (1994年)	解体開始時 <sup>*2</sup> (2010年)
中和槽本体	0.7 ~ 5.2	0.1 ~ 0.6
中和槽から定量槽への移送配管	8.0 14.0	1.0 1.7
定量槽本体	1.0 ~ 10.0	0.1 ~ 1.2
定量槽から計量槽への移送配管	1.0 10.0	0.1 1.2
計量槽本体	3.0 ~ 200.0	0.4 ~ 24.7
計量槽から固化装置への移送配管	1.3 48.0	0.2 5.9

\* 1:1994年度に実施した系統洗浄作業におけるドレンアウト後の表面線量率の測定値

\* 2:解体開始時における表面線量率の推定値

表3.2 除染対象機器の目標DF

除染対象機器	解体時の表面線量率 (mSv/h)	許容表面線量率 (mSv/h)	目標DF*
中和槽本体	0.1 ~ 0.6	0.13	5
中和槽から定量槽への移送配管	1.0 ~ 1.7	0.13	14
定量槽本体	0.1 ~ 1.2	0.13	10
定量槽から計量槽への移送配管	0.1 ~ 1.2	0.13	10
計量槽本体	0.4 ~ 24.7	0.13	197
計量槽から固化装置への移送配管	0.2 ~ 5.9	0.13	47

\* : 目標DF = 解体時の機器表面線量率 / 許容表面線量率

表4. 1 アルファベット計画で用いた除染剤の概要

除洗剤	A	B	C	D	E	F
組成	有機酸	○	○	○	○	
	無機酸		○		○	○
	アルカリ			○		
	助剤			○		
	インヒビタ		○		○	○
除染効果 ①「常陽」 ② FMF	①DF=9(at 80°C) 使用可能 ②DF=2(at 80°C) 効果は期待できない	①DF=9(at 80°C) 使用可能 ②DF=34(at 80°C) 使用可能	①DF=4(at 80°C) 効果は期待できな い ②DF=2(at 80°C) 効果は期待できな い	①DF=2(at 80°C) 効果は期待できな い ②DF=2(at 80°C) 効果は期待できな い	①DF=9(at 60°C) 使用可能 ②DF=5(at 60°C) 使用可能	①DF=3(at 60°C) 効果は期待できな い ② DF = 340 ( at 90°C) 使用可能
旧 JWTF での 廃液処理実績	実績あり	実績なし	実績なし	実績なし	実績あり	実績なし

表4. 2 除染剤選定結果のまとめ

除染剤		除染効果		廃液処理費	選定
酸系	硝酸	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ステンレス鋼、インコネル材上のU、Puおよびそれらの酸化物の溶解に有効である。</li> <li>・熱硝酸(60°C)を用いた旧JWTFの除染実績から、高い除染効果が期待できる。</li> <li>・ステンレス鋼に対する腐食はほとんどない。</li> </ul>		JWTFで取扱っている薬品であり、JWTFでの処理が可能である。	○
	塩酸	<ul style="list-style-type: none"> <li>・汎用ボイラーの洗浄で使用されており、鉄酸化物の除去に有効である。</li> <li>・ステンレス鋼に対して腐食性を示す。</li> </ul>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—
	硫酸	<ul style="list-style-type: none"> <li>・Caを含まない酸化物の除去に有効である。</li> <li>・ステンレス鋼に対して腐食性がある。</li> </ul>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—
	硝酸+フッ化水素酸	<ul style="list-style-type: none"> <li>・一般産業分野でステンレス鋼の脱スケールに広く使用されている。</li> <li>・ステンレス鋼に対して腐食性を示す。</li> </ul>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—
アルカリ系	水酸化ナトリウム	<ul style="list-style-type: none"> <li>・SiO<sub>2</sub>の除去に有効である。</li> <li>・ステンレス鋼に対する腐食はほとんどない。</li> </ul>		JWTFで取扱っている薬品であり、JWTFでの処理が可能である。	○
原子力分野で実績のある除染	過マンガン酸カリウム シュウ酸	CORD法	海外の原子炉の除染に用いられ、系統除染法として有効である。		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。
	ヒドラジン シュウ酸 過マンガン酸カリウム	HOP法	'ふげん'での除染実績から高い除染効果が期待できる。		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。
	過マンガン酸カリウム バナジウム(Ⅱ価) ピコリン酸 ギ酸	NP- LOMI 法	クラッド酸化物中の金属を還元して溶解するため、高い除染効果が期待できる。		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。
	A	<p>「常陽」の除染試験結果から高い除染効果が期待できる。 FMFでの除染試験結果から除染効果は低い。</p>		旧JWTFでの処理実績があり、JWTFで処理できる可能性がある。	—
市販溶液 (アルファベット計画)	B	<p>「常陽」およびFMFでの除染試験結果から高い除染効果が期待できる。</p>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—
	C	<p>「常陽」およびFMFでの除染試験結果から除染効果は低い。</p>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—
	D	<p>「常陽」およびFMFでの除染試験結果から除染効果は低い。</p>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—
	E	<p>「常陽」およびFMFでの除染試験結果から高い除染効果が期待できる。</p>		旧JWTFでの処理実績があり、JWTFで処理できる可能性がある。	○
	F	<p>FMFでの除染試験結果から高い除染効果が期待できる。 「常陽」での除染試験結果から除染効果は低い。</p>		新設の処理設備が必要となり、処理費増加につながる。	—

表5. 1 除染試験条件一覧

試験片 No.	除染液種類	温度 (°C)	備 考
10	硝 酸(1N)	80	单一溶液浸漬
13	硝 酸(1N)	80	
6	硝 酸(0.1N)	80	单一溶液浸漬
22-1	硝 酸(0.1N)	80	
2	硝 酸(3N)	80	单一溶液浸漬
21	硝 酸(3N)	80	
7	硝 酸(1N)	60	单一溶液浸漬
12	硝 酸(1N)	60	
19	硝 酸(1N)	60	
20	硝 酸(1N)	60	
24	硝 酸(1N)	常温(11°C)	单一溶液浸漬
5	硝酸(1N) + 界面活性剤(LAS)	80	除染補助剤を添加
11	硝酸(1N) + 界面活性剤(LAS)	80	
4-1	ENS-103(荏原洗浄工業)	60	单一溶液浸漬
15	ENS-103(荏原洗浄工業)	60	
14	NaOH(1N)	80	单一溶液浸漬
16	NaOH(1N)	80	
17	硝酸(1N)、NaOH(1N)	80	NaOH、硝酸の順に30分毎に交互に浸漬
18	硝酸(1N)、NaOH(1N)	80	
2	硝酸(1N)、NaOH(1N)	60	NaOH、硝酸の順に30分毎に交互に浸漬
8	硝酸(1N)、NaOH(1N)	60	
3	硝酸(1N)、NaOH(1N)	40	NaOH、硝酸の順に30分毎に交互に浸漬
22-2	硝酸(1N)、NaOH(1N)	40	
4-2	硝酸(1N)、NaOH(1N)	常温(17°C)	NaOH、硝酸の順に10分毎に交互に浸漬

表5. 2(1/2) 除染試験データ一覧(硝酸単一溶液)

時間(分)	試験条件／試験片	初期値	浸漬直後	30	60	90	150	180	210	270	330
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、80°C	2.35E+04	2.08E+04	1.87E+04		1.76E+04	1.42E+04		1.09E+04	8.20E+03	7.91E+03
DF <sup>*2</sup>	試験片No.10		1.1	1.3		1.3	1.7		2.2	2.9	3.0
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、80°C	1.19E+04	1.36E+04	8.56E+03		8.05E+03	7.79E+03		7.68E+03	6.66E+03	5.69E+03
DF <sup>*2</sup>	試験片No.13		0.9	1.4		1.5	1.5		1.5	1.8	2.1
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸0.1N、80°C	2.53E+04	2.50E+04	2.17E+04		1.77E+04		1.68E+04	1.68E+04	1.58E+04	
DF <sup>*2</sup>	試験片No.6		1.0	1.2		1.4		1.5	1.5	1.6	
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸0.1N、80°C	1.21E+04	1.37E+04	1.23E+04		9.56E+03		9.24E+03	9.24E+03	9.55E+03	
DF <sup>*2</sup>	試験片No.22-1		0.9	1.0		1.3		1.3	1.3	1.3	
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸3N、80°C	2.23E+04	2.15E+04	1.76E+04		1.44E+04	1.04E+04			1.02E+04	
DF <sup>*2</sup>	試験片No.2		1.0	1.3		1.6	2.1			2.2	
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸3N、80°C	1.60E+04	1.63E+04	1.35E+04		1.16E+04	9.83E+03				
DF <sup>*2</sup>	試験片No.21		1.0	1.2		1.4	1.6				
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、60°C	2.37E+04	2.31E+04			2.03E+04		1.67E+04			
DF <sup>*2</sup>	試験片No.7		1.0			1.2		1.4			
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、60°C	1.21E+04	1.05E+04	6.61E+03		6.74E+03	5.98E+03				
DF <sup>*2</sup>	試験片No.12		1.2	1.8		1.8	2.0				
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、60°C	2.79E+04	2.92E+04	3.08E+04		1.57E+04					
DF <sup>*2</sup>	試験片No.19		1.0	0.9		1.8					
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、60°C	1.83E+04	2.06E+04	1.71E+04		1.77E+04	1.80E+04	1.82E+04			
DF <sup>*2</sup>	試験片No.20		0.9	1.1		1.0	1.1	1.3			

\* 1 : Ge半導体検出装置による放射能量測定値

\* 2 : 浸漬前試験片放射能量(初期値)／浸漬後の試験片放射能量

表5. 2(2/2) 除染試験データ一覧(硝酸単一溶液)

時間(分)	試験条件	初期値	浸漬直後	30	90	150	270	4950	10725
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N、常温(11°C)	2.66E+04	2.57E+04	2.17E+04	2.11E+04	2.07E+04	2.04E+04	1.62E+04	1.51E+04
DF <sup>*2</sup>	試験片No.24		1.0	1.2	1.3	1.3	1.3	1.6	1.8

\* 1 : Ge半導体検出装置による放射能量測定値

\* 2 : 浸漬前試験片放射能量(初期値)／浸漬後の試験片放射能量

表5.3 除染試験データ一覧(その他単一溶液)

時間(分)	試験条件	初期値	浸漬直後	30	60	90	150	180	210	270	330
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N+LAS、80°C	2.10E+04	1.81E+04	1.99E+04		1.61E+04	1.09E+04			8.71E+03	
DF <sup>*2</sup>	試験片No.5		1.2	1.1		1.3	1.9			2.4	
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	硝酸1N+LAS、80°C	2.28E+04		2.11E+04	1.35E+04						
DF <sup>*2</sup>	試験片No.11			1.1	1.7						
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	ENS-103、60°C	2.66E+04	2.57E+04	2.17E+04		2.11E+04	2.07E+04			2.04E+04	1.62E+04
DF <sup>*2</sup>	試験片No.4-1		1.0	1.2		1.3	1.3			1.3	1.6
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	ENS-103、60°C	1.31E+04	1.33E+04	1.04E+04		8.68E+03	8.82E+03				
DF <sup>*2</sup>	試験片No.15		1.0	1.3		1.5	1.5				
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	NaOH 1N、80°C	7.25E+03	6.35E+03	5.05E+03		4.26E+03		3.99E+03	3.99E+03	4.04E+03	
DF <sup>*2</sup>	試験片No.14		1.1	1.4		1.7		2.2	1.8	1.8	
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	NaOH 1N、80°C	3.82E+04	3.34E+04	2.76E+04		2.22E+04					
DF <sup>*2</sup>	試験片No.16		1.1	1.4		1.7					

\* 1: Ge半導体検出装置による放射能量測定値

\* 2: 浸漬前試験片放射能量(初期値)／浸漬後の試験片放射能量

表5.4 除染試験データ一覧(1N NaOHと1N硝酸に交互浸漬)

時間(分)	試験条件	初期値	30	60	90	120	150	180	210	240	270	300
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	80°C、30分間隔	2.12E+04	3.21E+03	2.85E+03	2.16E+03	1.98E+03						
DF <sup>*2</sup>	試験片No.17		6.6	7.4	9.8	10.7						
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	80°C、30分間隔	1.98E+04	8.53E+03	5.69E+03	4.91E+03	4.40E+03	3.48E+03	3.20E+03	2.70E+03	2.61E+03		
DF <sup>*2</sup>	試験片No.18		2.3	3.5	4.0	4.5	5.7	6.2	7.3	7.6		
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	60°C、30分間隔	8.99E+03	2.59E+03	2.09E+03	1.75E+03	1.56E+03	1.64E+03					
DF <sup>*2</sup>	試験片No.2		3.5	4.3	5.1	5.8	5.5					
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	60°C、30分間隔	2.57E+04	1.18E+04	5.99E+03	5.02E+03	4.58E+03	4.22E+03	4.61E+03				
DF <sup>*2</sup>	試験片No.8		2.2	4.3	5.1	5.6	6.1	5.6				
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	40°C、30分間隔	4.15E+04	1.86E+04	1.31E+04	5.53E+03							
DF <sup>*2</sup>	試験片No.3		2.2	3.2	7.5							
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	40°C、30分間隔	9.44E+03	6.78E+03	3.42E+03	3.00E+03							
DF <sup>*2</sup>	試験片No.22-2		1.4	2.8	3.1							
放射能量(Bq) <sup>*1</sup>	常温(17°C)、30分間隔	1.34E+04	1.22E+04	8.67E+03	7.54E+03	4.88E+03	4.46E+03	3.92E+03	3.15E+03	3.31E+03	2.29E+03	2.15E+03
DF <sup>*2</sup>	試験片No.4-2		1.1	1.5	1.8	2.8	3.0	3.4	4.3	4.1	5.9	6.3

\* 1: Ge半導体検出装置による放射能量測定値

\* 2: 浸漬前試験片放射能量(初期値)／浸漬後試験片放射能量

表 7.1 1N 硝酸浸漬（24時間）におけるステンレス鋼溶解量

溶解量 (mg)		溶解速度 (μm/日)
測定値	平均値	
0.34	0.12	0.006
0.08		
0.05		
0.03		

表 7.2 酸洗いの有無による溶解速度への影響

除染剤	酸洗い	溶解量 (mg)	溶解速度 (μm/日)
20wt%硫酸	有	2.0	0.09
	無	2.0	0.09
1wt%塩酸	有	7.5	0.34
	無	6.4	0.30
20vol%硝酸+	有	153.1	7.09
1.5vol%フッ酸	無	162.9	7.50

表 7.3 各除染剤の溶解速度

除染剤	溶解量 (mg)	溶解速度 (μm/日)	目標厚さ溶解 期間 (日)
20wt%硫酸	2.0	0.09	325.1
30wt%硫酸	0.8	0.04	851.8
1wt%塩酸	7.2	0.33	91.0
5wt%塩酸	18.5	0.85	35.3
15wt%塩酸	61.5	2.82	10.7
20vol%硝酸 + 1.5vol%フッ酸	161.4	7.43	4.0

表 7.4 溶解速度と時間の関係（硝酸とフッ化水素酸の混酸）

浸漬時間 (h)	溶解量 (mg)	溶解厚さ (μm)		溶解速度 (μm/日)
		* 1	* 2	
24	161.4	7.4	7.4	7.43
44	231.8	10.7	13	5.84
96	478.3	22.2	30	5.55

\* 1 : 24、44、96 時間浸漬時の溶解量から換算した値

\* 2 : 24 時間浸漬で得られた溶解速度から算定した値

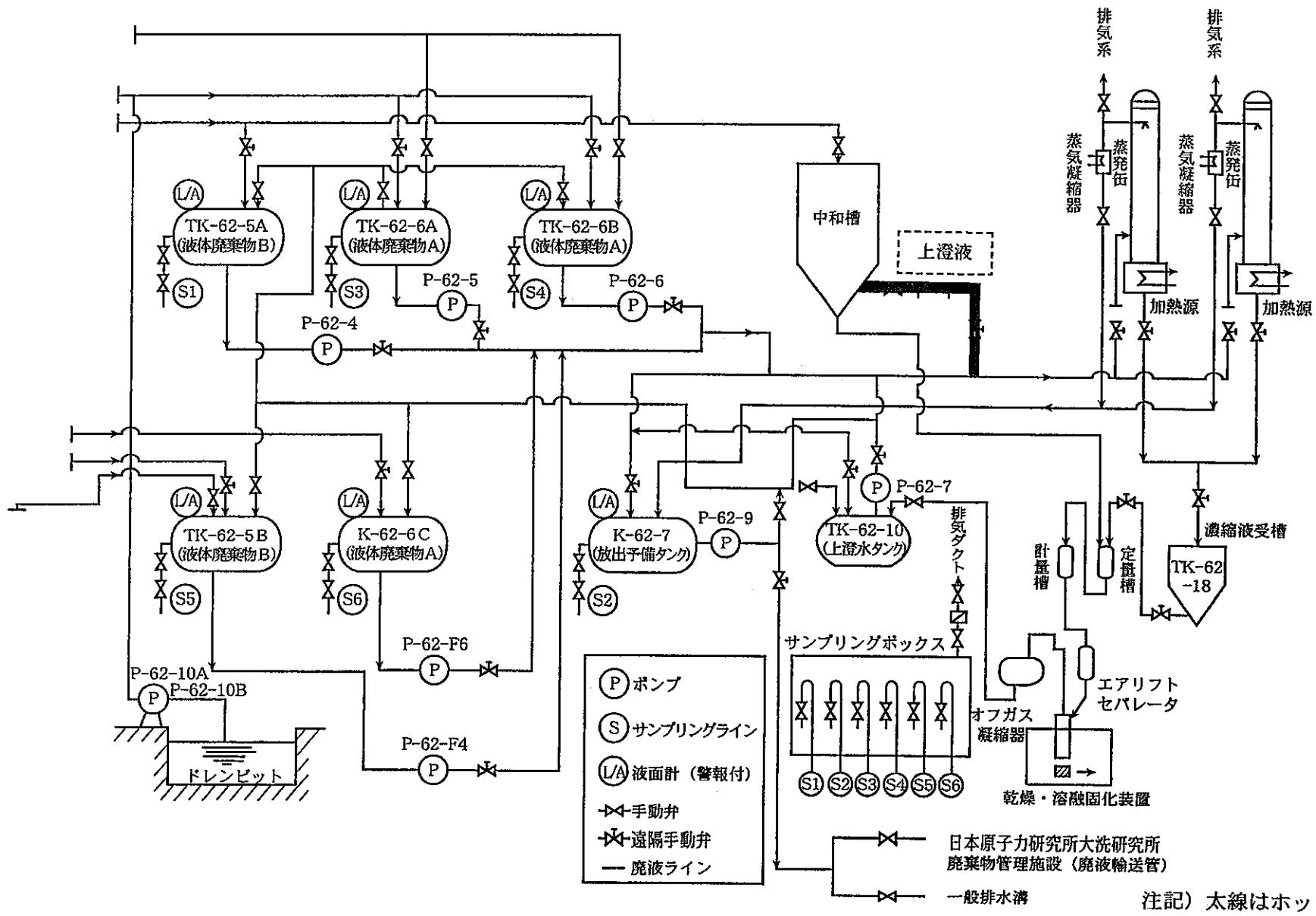


図3. 1 旧 JWTF の廃液処理フロー

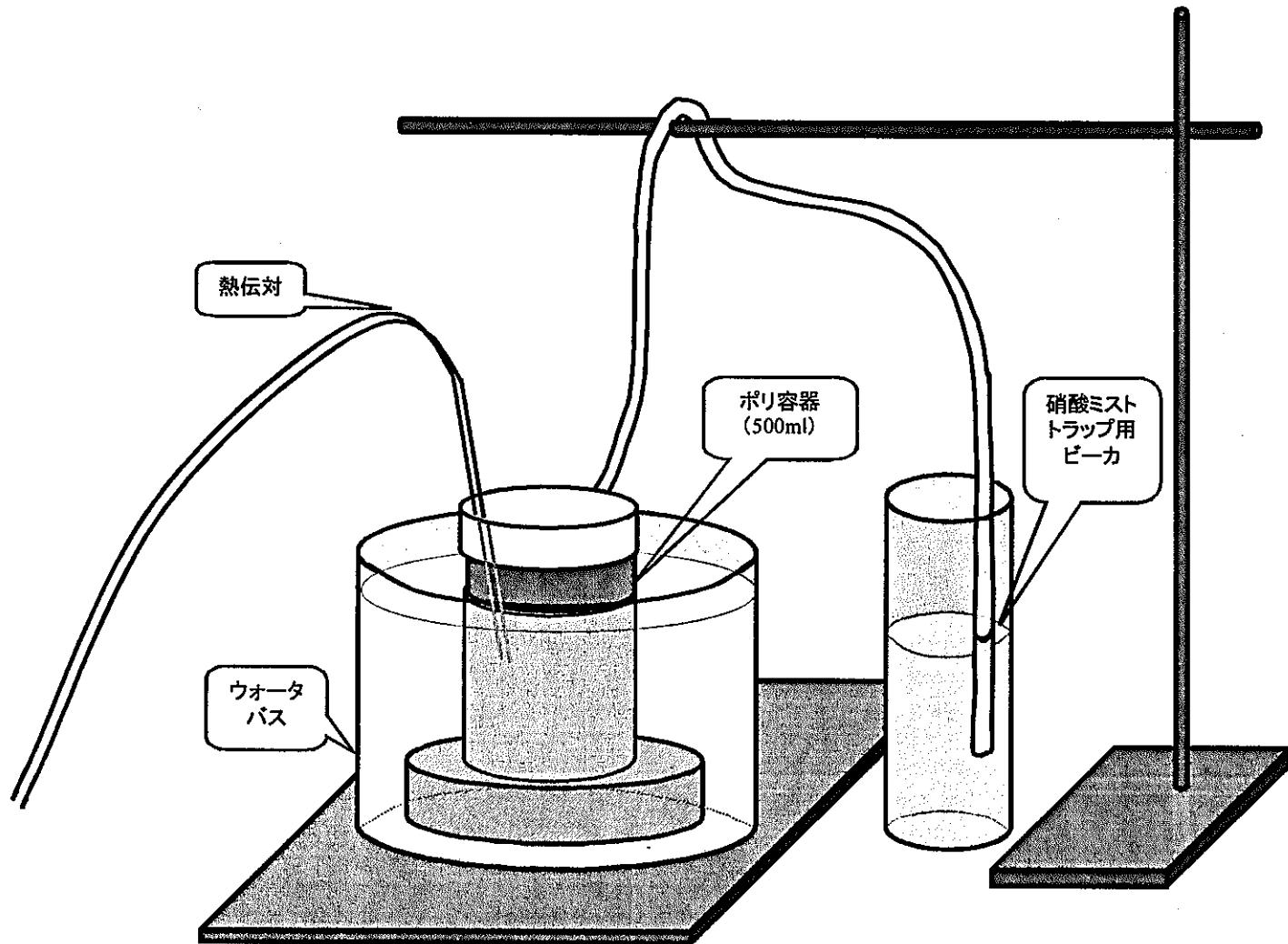
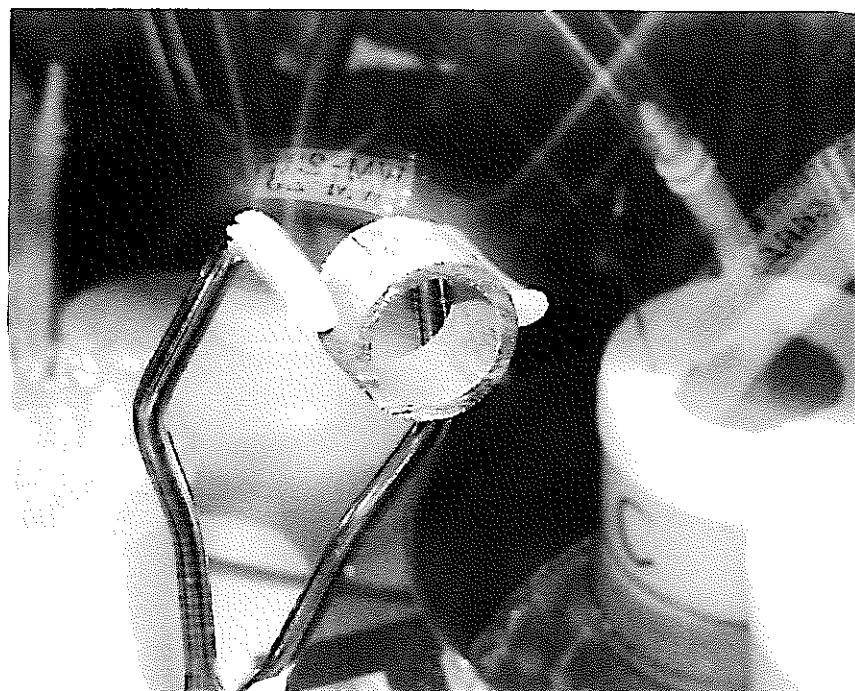
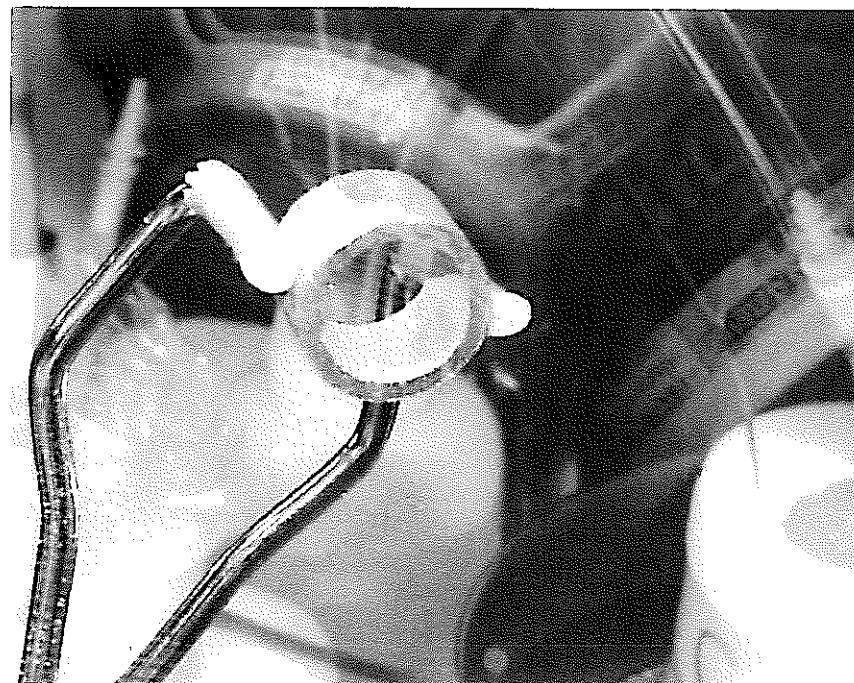


図5.1 試験装置概略構成図(フード内)



(試験片 No. 7)



(試験片 No. 16)

図 5. 2 試験片外観

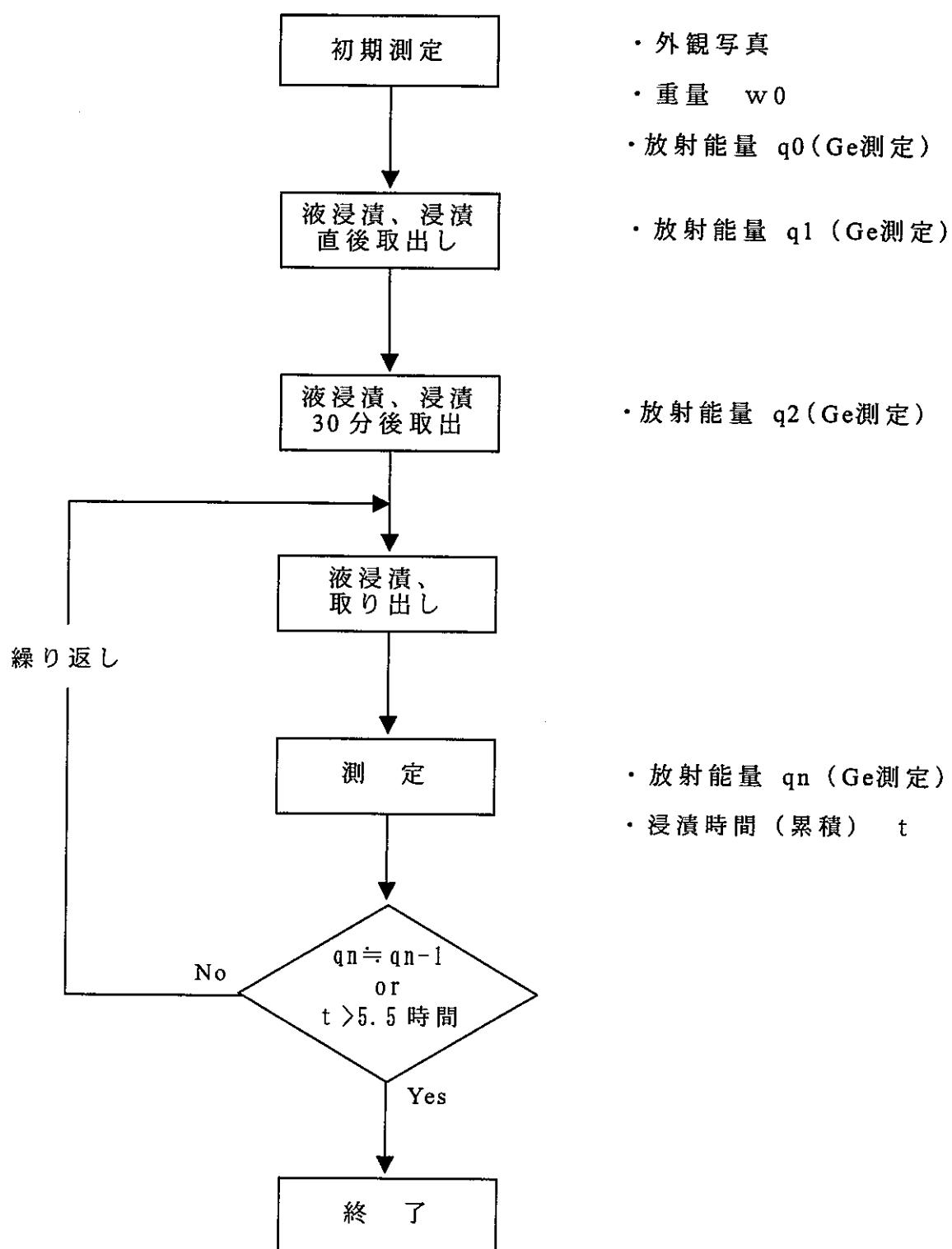


図 5.3 試験手順

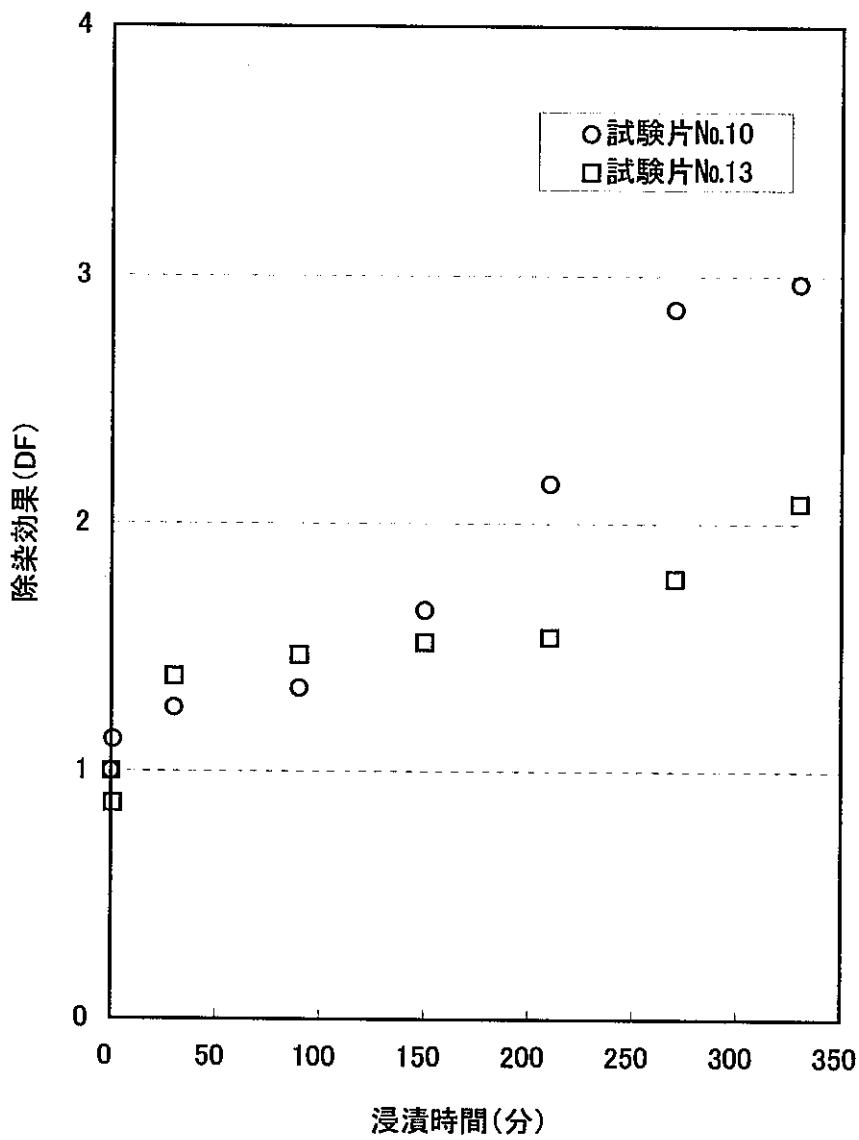


図5.4① 除染試験の結果(1N硝酸、80°C)

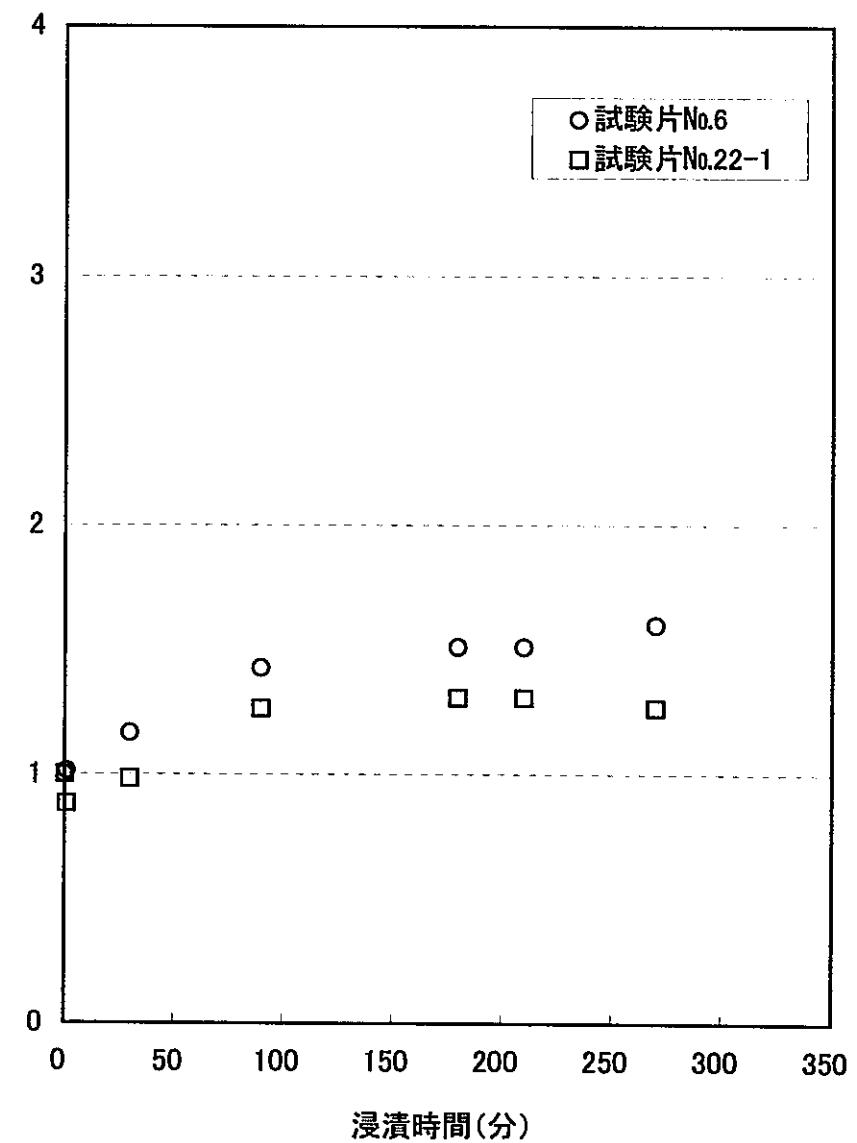


図5.4② 除染試験の結果(0.1N硝酸、80°C)

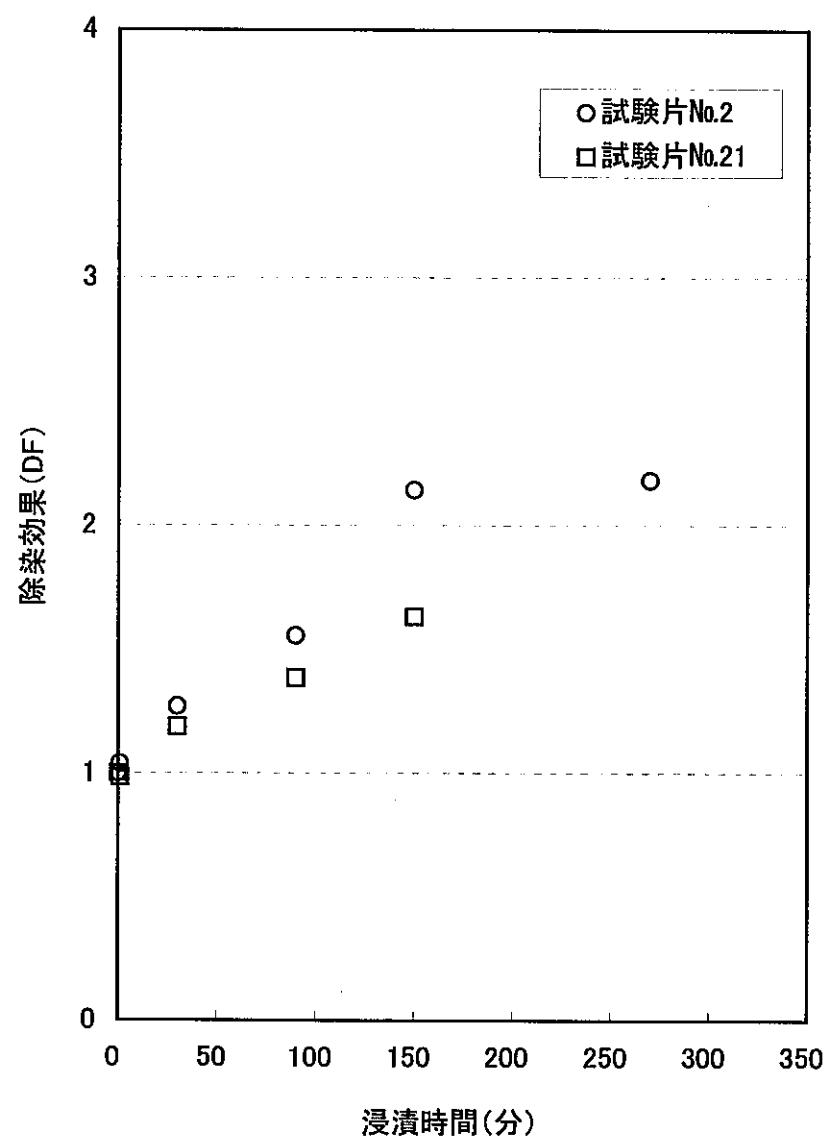


図5.4③ 除染試験の結果(3N硝酸、80°C)

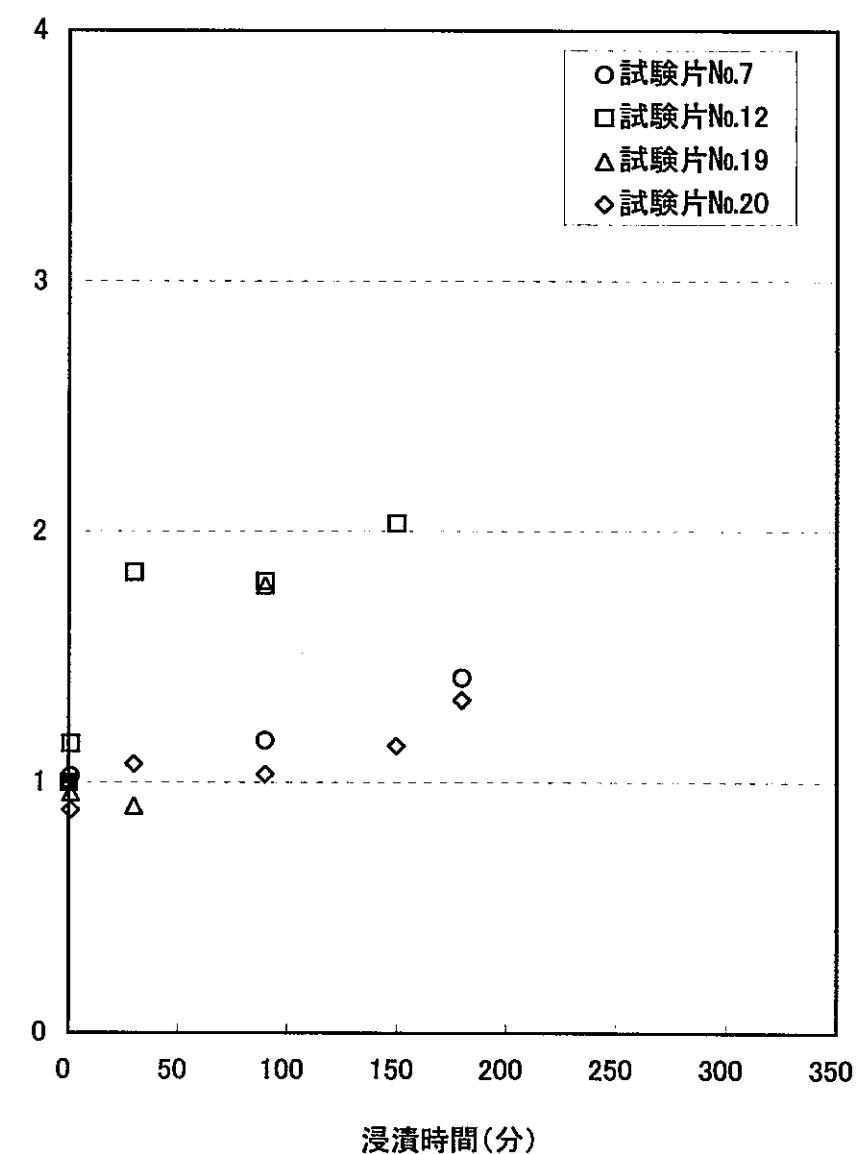


図5.4④ 除染試験の結果(1N硝酸、60°C)

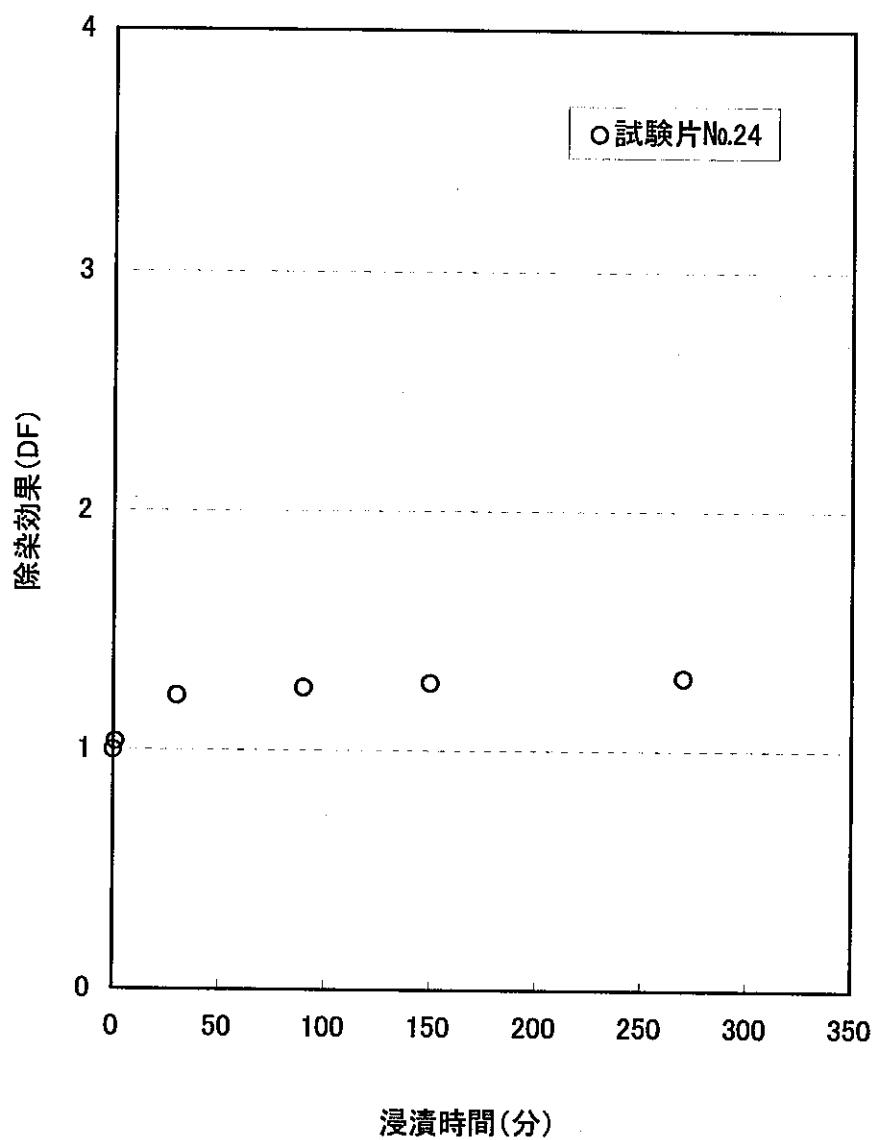


図5.4⑤ 除染試験の結果(1N硝酸、常温11°C)

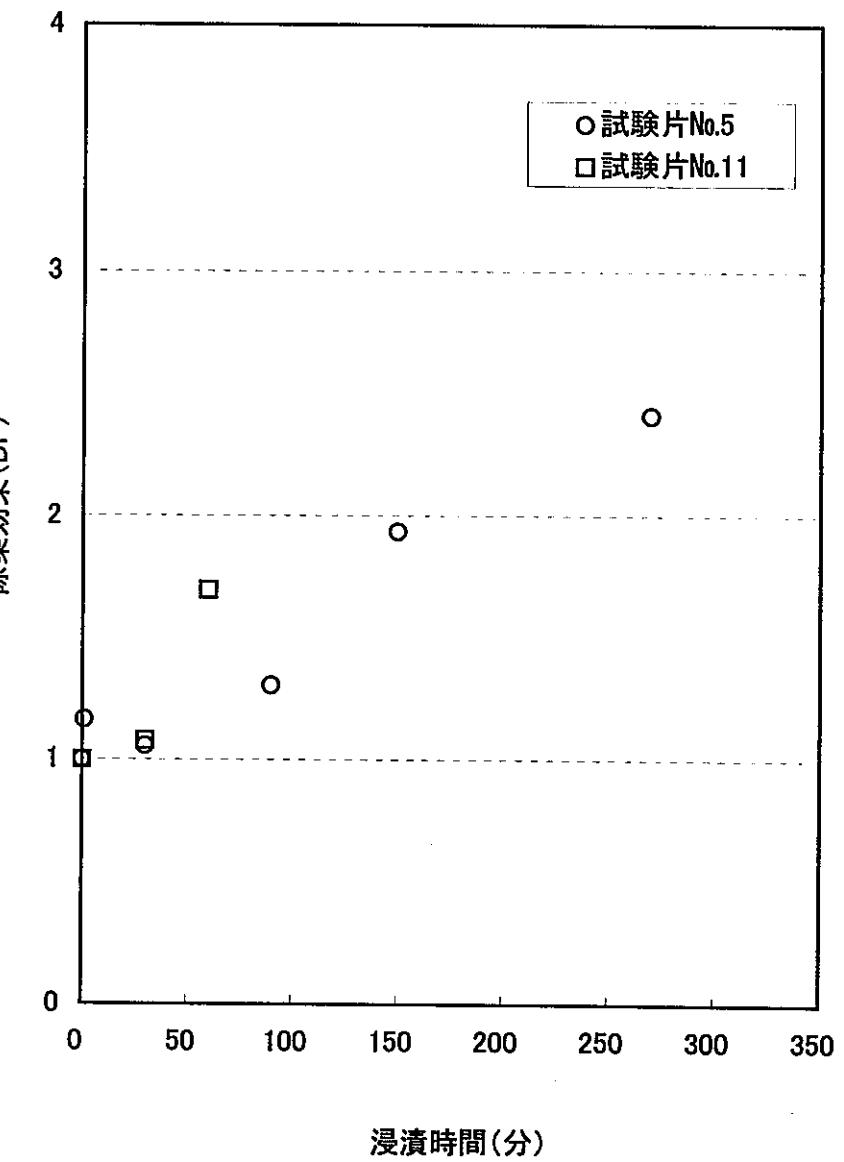


図5.5① 除染試験の結果(1N硝酸+LAS、80°C)

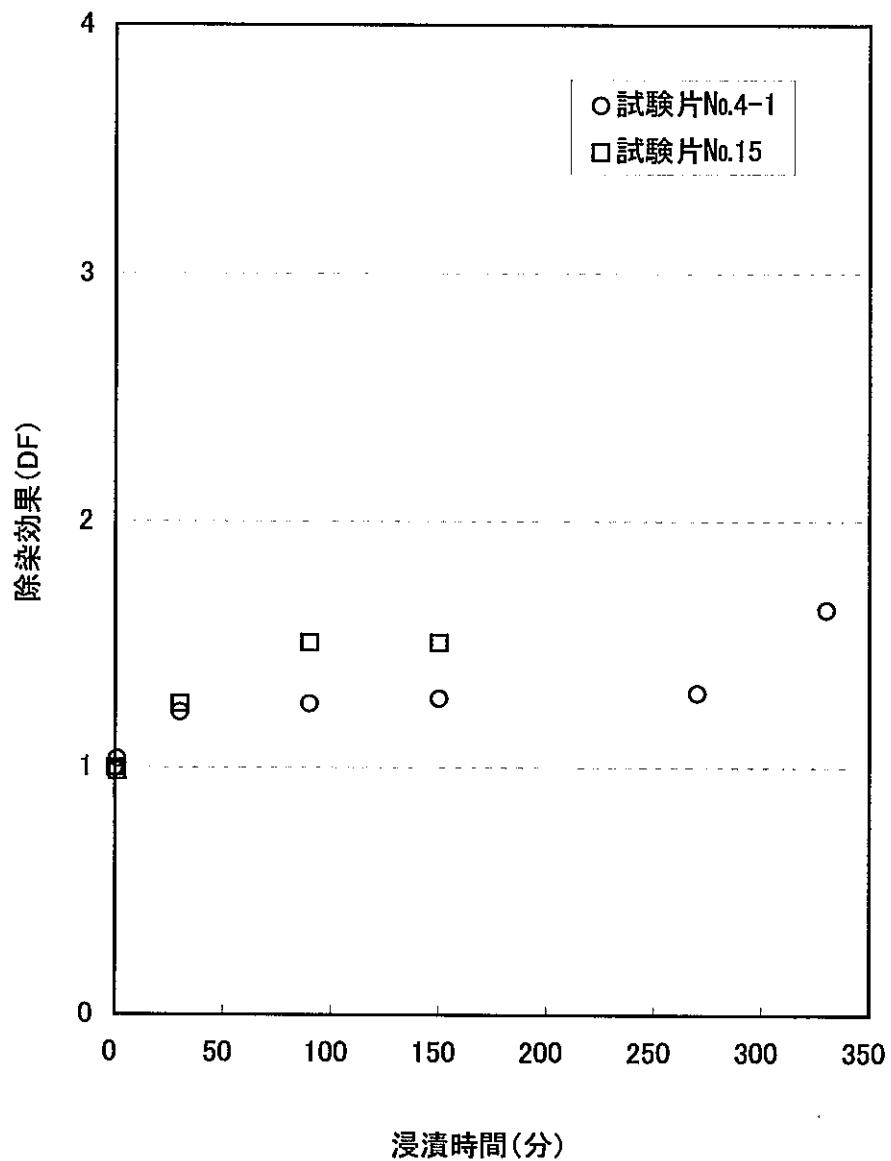


図5.5② 除染試験の結果(ENS-103、60°C)

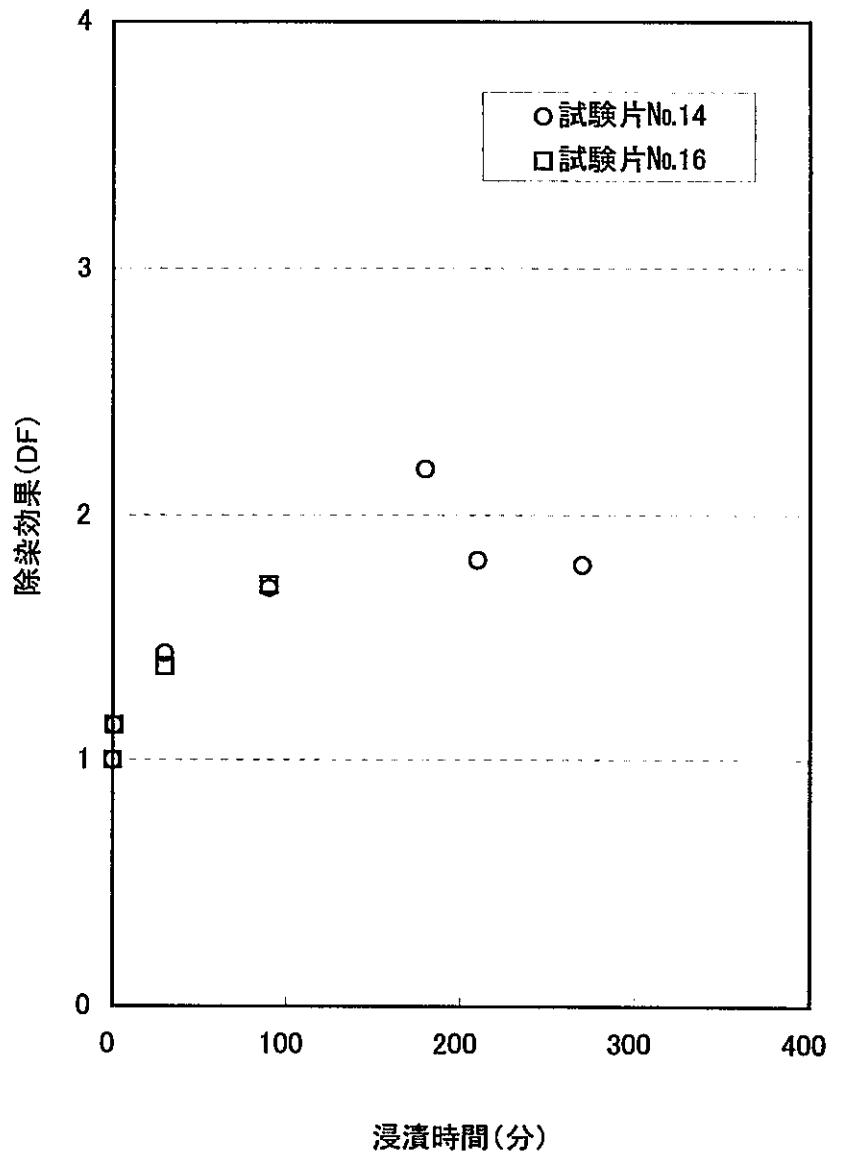


図5.5③ 除染試験の結果(1N NaOH、80°C)

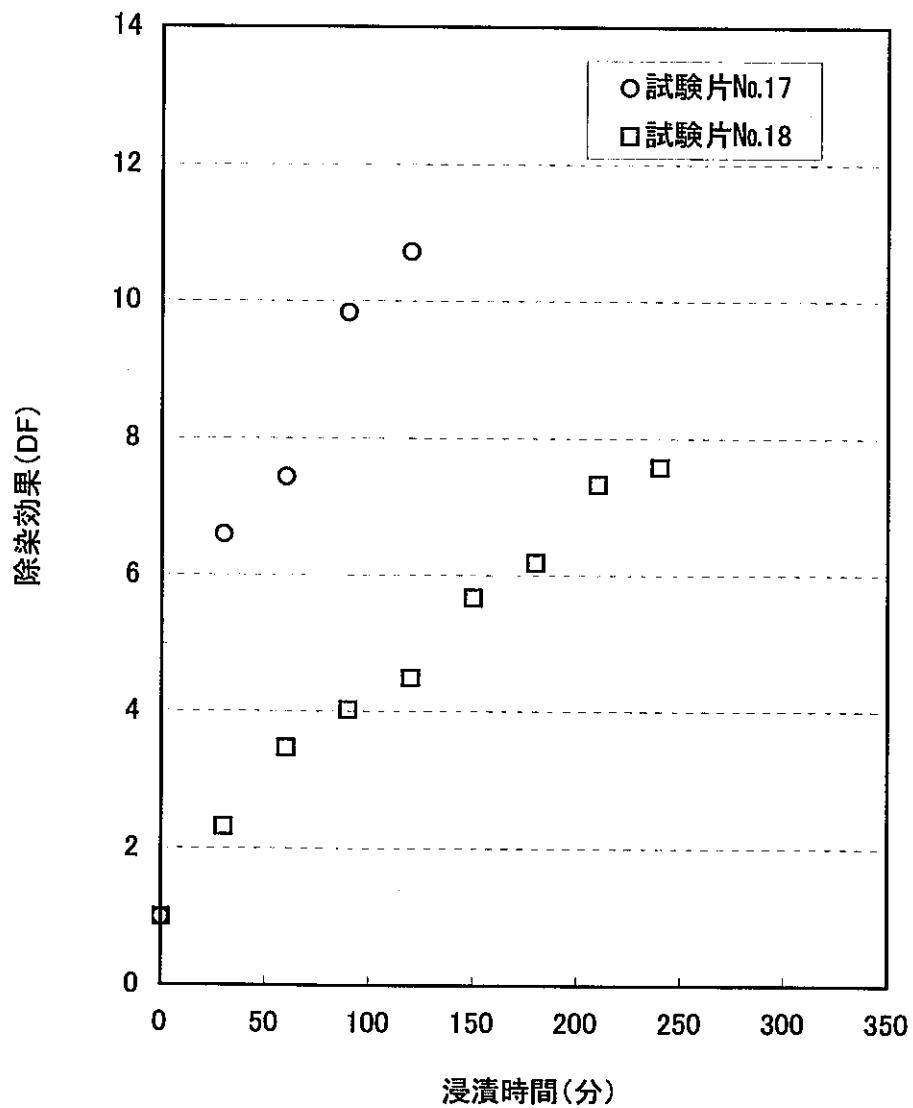


図5.6① 除染試験の結果(1N NaOHと1N硝酸に  
交互浸漬、80°C)

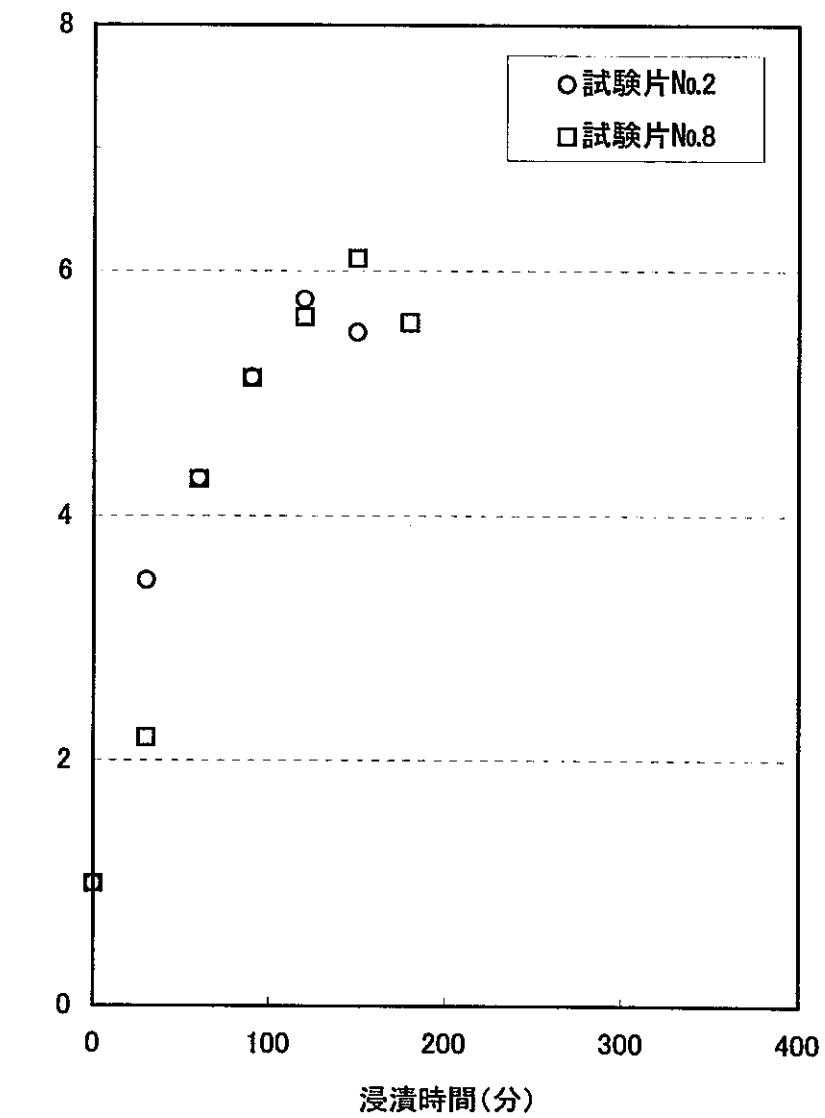


図5.6② 除染試験の結果(1N NaOHと1N硝酸に  
交互浸漬、60°C)

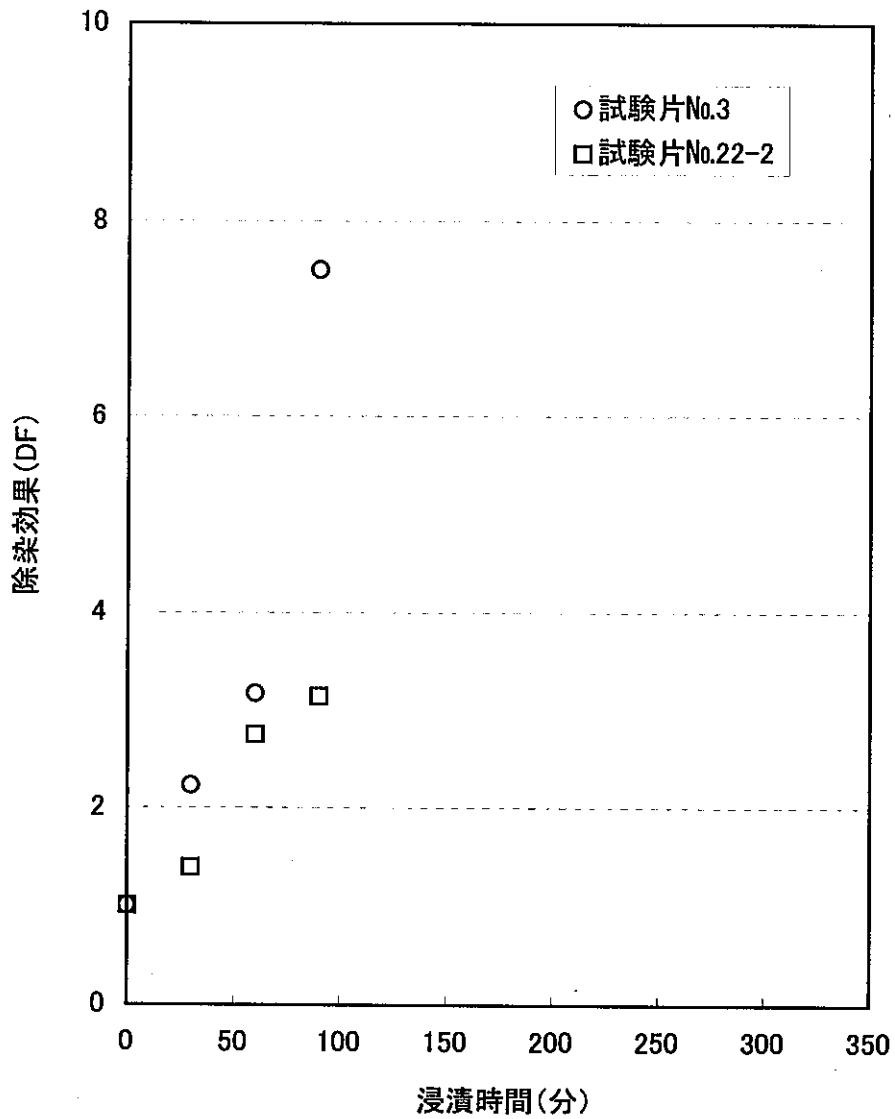


図5.6③ 除染試験の結果(1N NaOHと1N硝酸に  
交互浸漬、40°C)

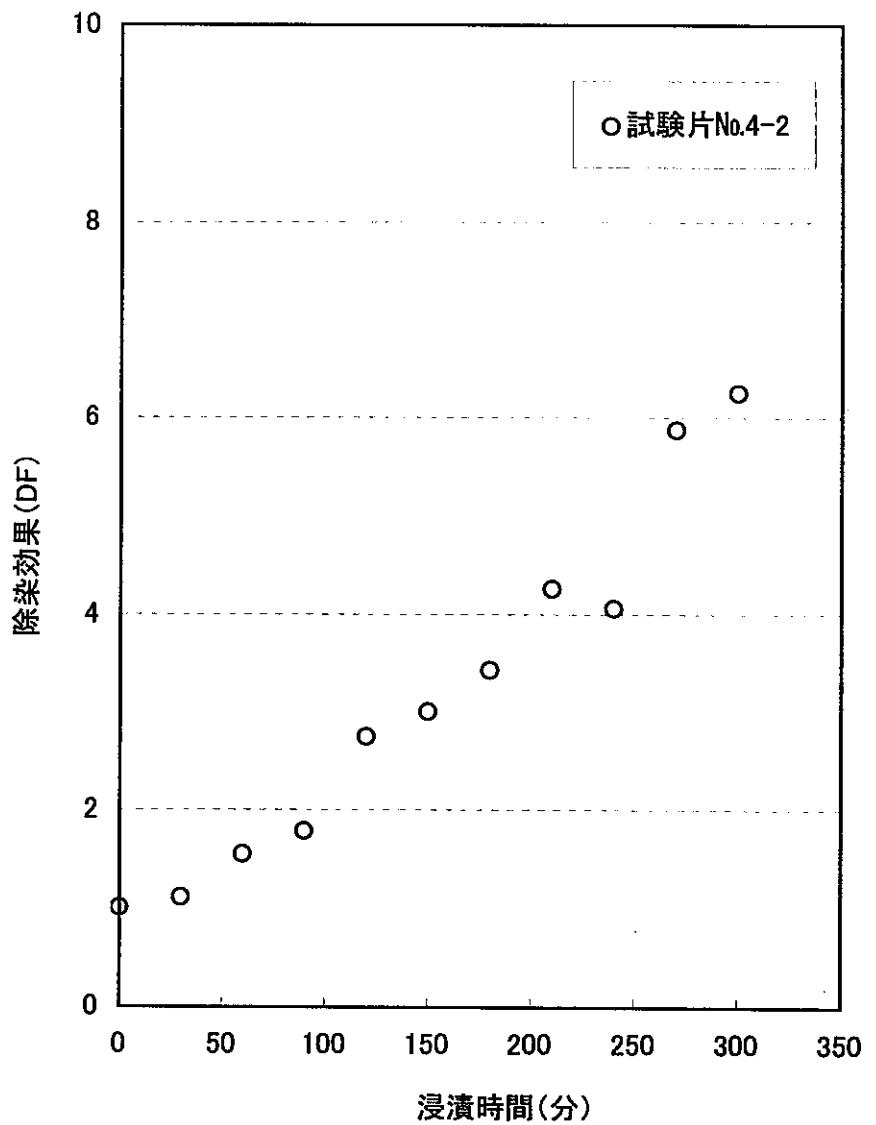


図5.6④ 除染試験の結果(1N NaOHと1N硝酸に  
交互浸漬、常温17°C)

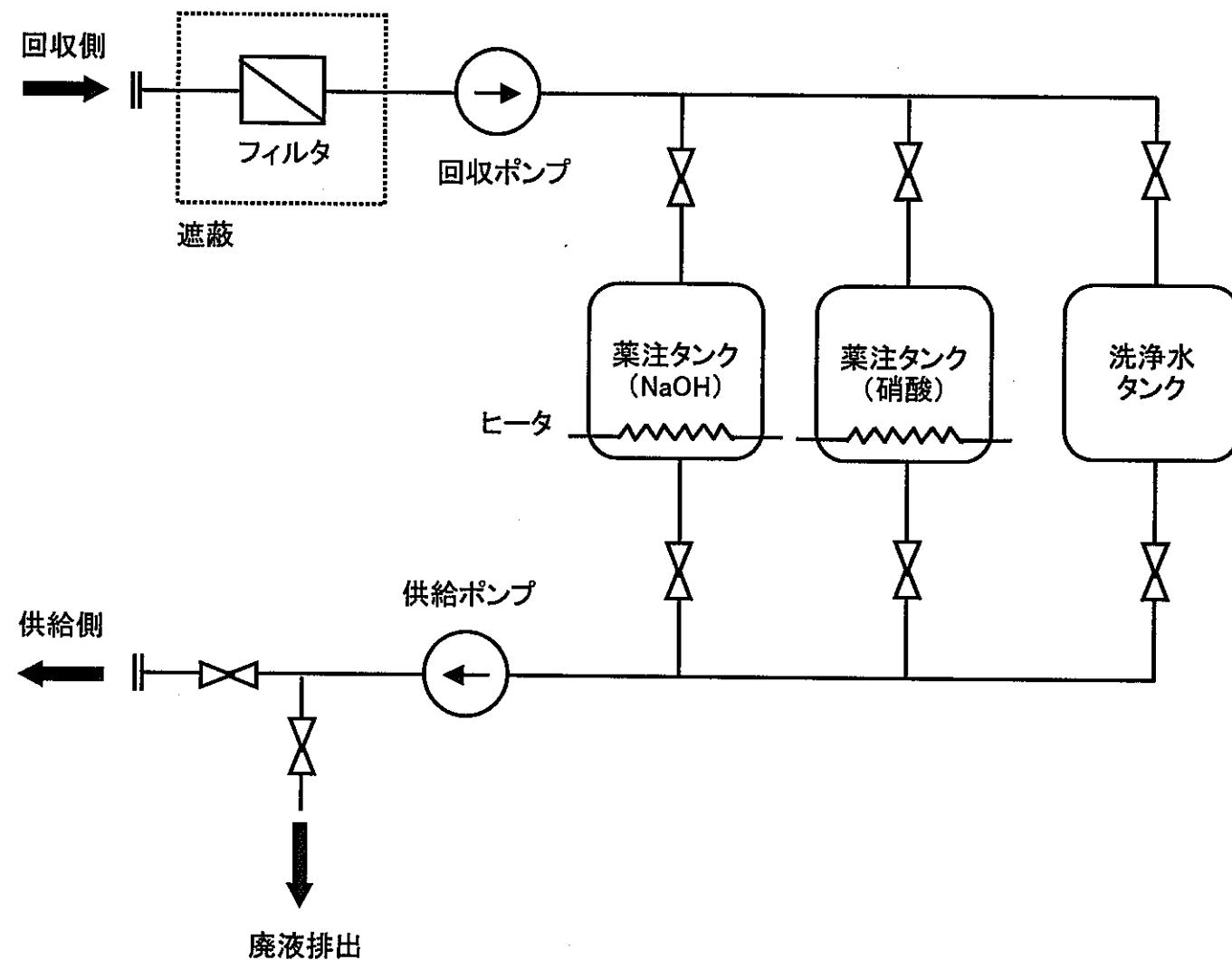
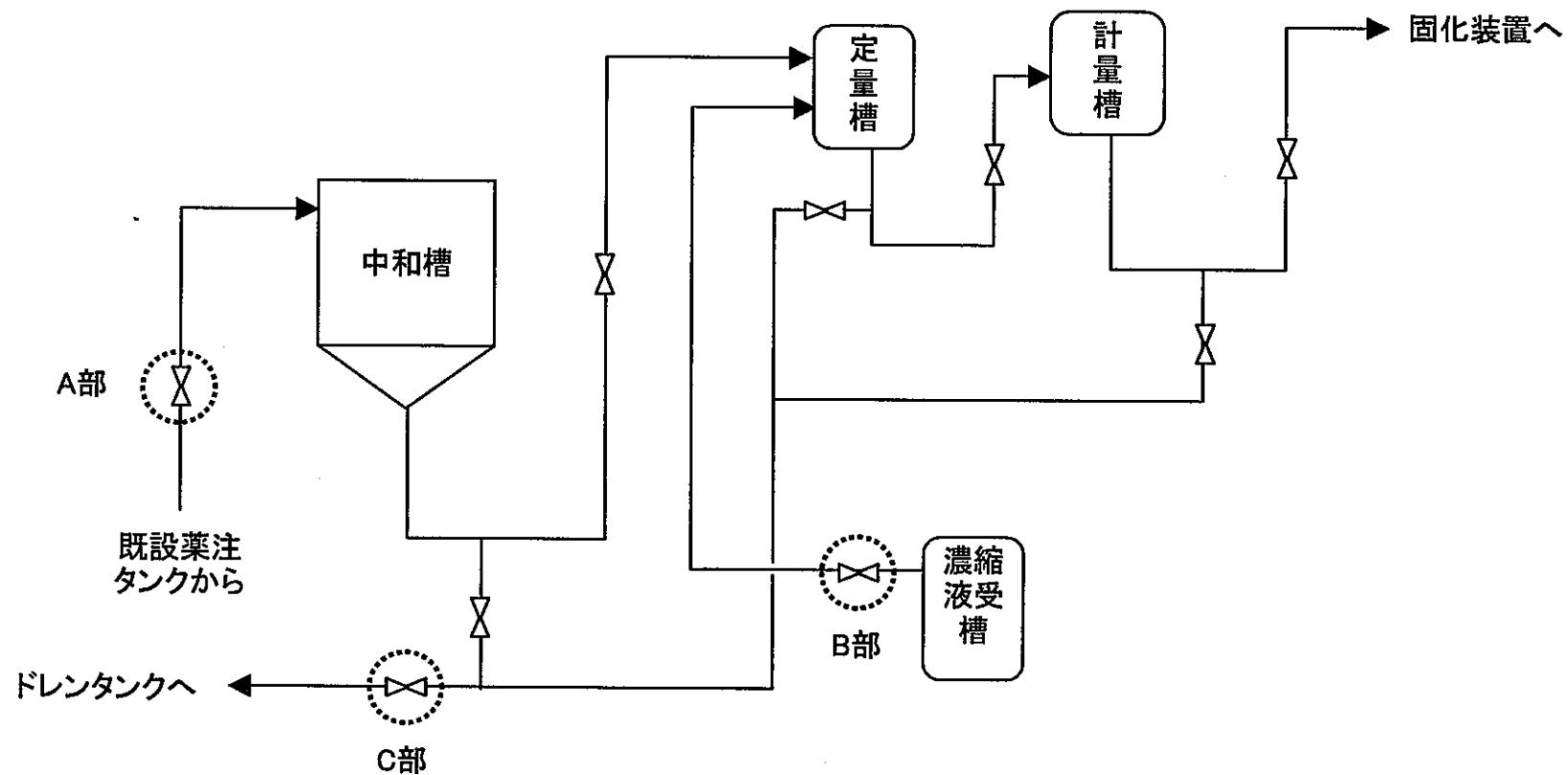


図6.1 除染システム概念図



A部	除染剤供給仮設配管接続位置(中和槽除染時)
B部	除染剤供給仮設配管接続位置(計量槽除染時)
C部	除染剤回収仮設配管接続位置

図6. 2 既設設備と除染システム取合位置

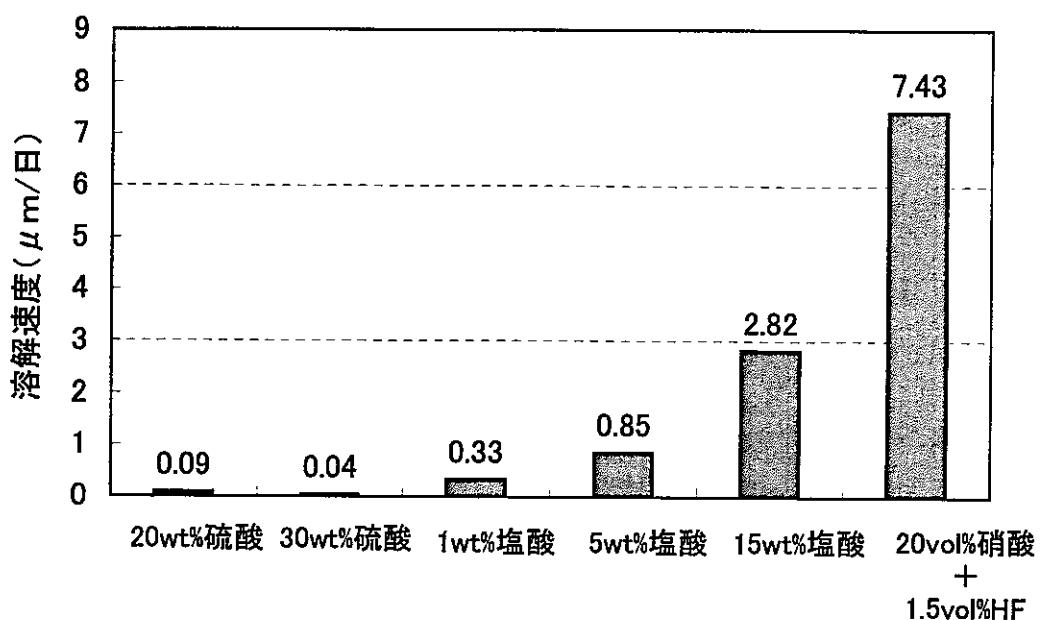


図7. 1 各除染剤の溶解速度

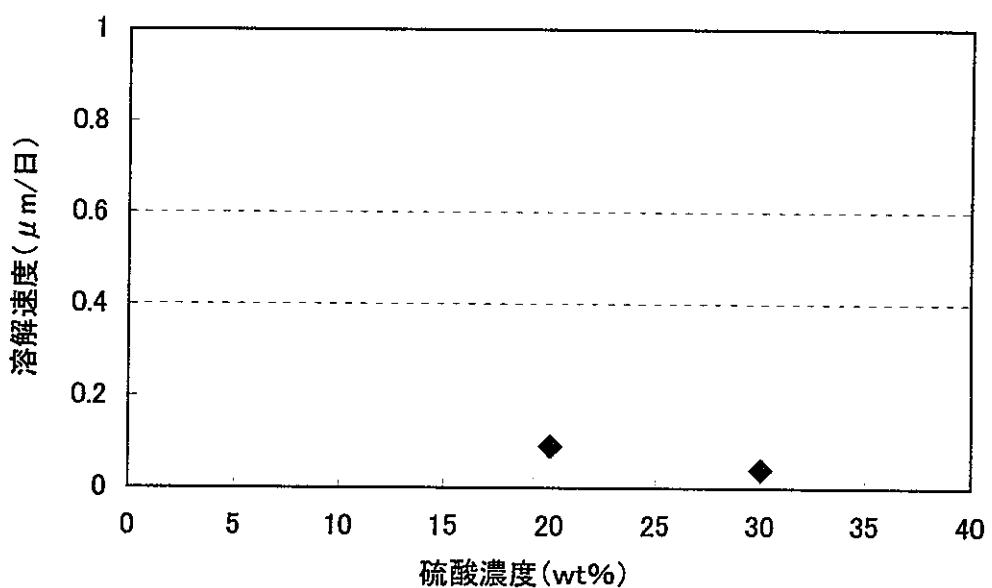


図7. 2 硫酸の溶解速度と濃度の関係

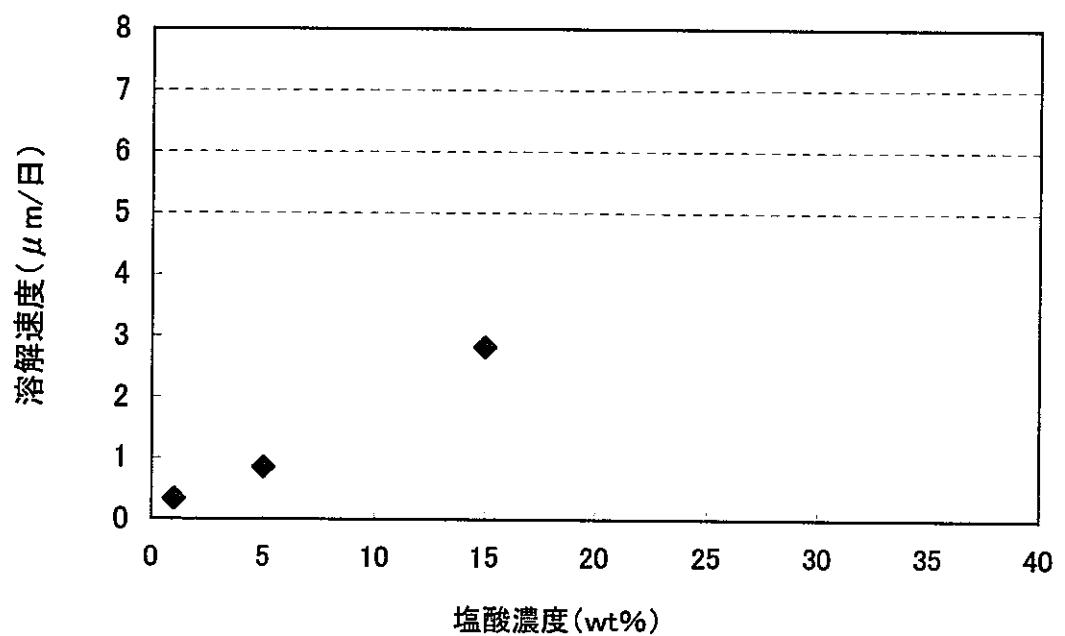


図7. 3 塩酸の溶解速度と濃度の関係

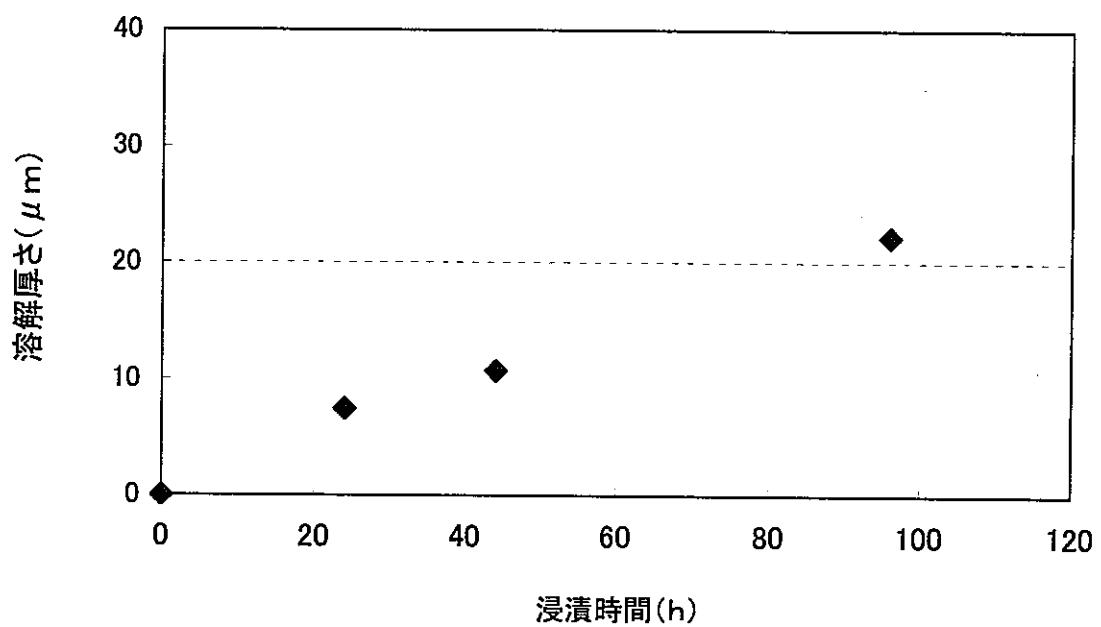


図7. 4 浸漬時間と溶解厚さの関係  
(20vol%硝酸 + 1.5vol%フッ化水素酸)