新原子力研究分野における腐食漏洩のリスク低減手法の提案

Risk reduction methods for preventing corrosion leakage in the novel nuclear field

橋口亜由未^{#A)},西村昭彦^{B)}, 峰原英介^{C)},菖蒲敬久^{B)},栗田圭輔^{B)} ^{A)} Faculty of Environmental, Life, Natural Science and Technology, Okayama University ^{B)} Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

C) LDD Corporation

Abstract

JAEA developed a new maintenance technique for carbon steel containers using a CW fiber laser cleaning. This technique can be upgraded by corrosion prevention, where the laser irradiation removes rust and coatings by laser irradiation, and the latter aims to improve long-term corrosion resistance by forming micro-crystallization and oxide film on the vessel surface through rapid heating and cooling by laser irradiation. Laser rust removal exhibits an excellent corrosion protection capacity that promotes the formation of a non-conductive film. However, the environment in which drums are stored does not allow for complete isolation from the outside world, and microbial corrosion must be taken into consideration. In this year, we studied the improvement of the rust removal process by laser irradiation and the imaging of stored materials inside waste containers. As results, it was found that the use of CW lasers showed excellent surface cleaning effects, and in particular, single-mode fiber lasers, which can minimize the focused spot diameter, can be used in combination with a high-speed scanning mechanism for uniform, large-area processing.

In addition, neutron imaging results showed that fused silica barely added neutrons, but some absorption was observed in borosilicate glass and plastic (PP). Although lead and iron were thought to be almost impervious to neutrons, they showed similar transmission to PP and borosilicate glass, but clear images could be obtained even after a short imaging time. Water in the container absorbed most of the neutrons, and even water as small as a drop could be photographed. The contents of the simulated waste in a stainless-steel bucket were also clearly visible when photographed.

Keyword: microbial corrosion, CW fiber laser, neutron imaging, low-level radioactive waste, long term strage

1. はじめに

JAEAの原子力科学研究所では、200Lドラム缶換算 で約13万本の放射性廃棄物を保管している。その一 部は40年以上が経過し、表面の錆が進行している。 安全管理のために容器の補修作業等を定期的に行っ ているが、その改善のために、CWファイバレーザー による炭素鋼容器のリユース技術の開発を開始した [1]。このリユース技術は、除錆技術及び防錆技術の 二種類から成り、前者ではレーザーを用いた錆と塗 膜等の剥離及び除去を行い、後者ではレーザー照射 による急加熱及び急冷却による容器表面の微細結晶 化及び酸化被膜の形成によって長期的な防食性を高 める事を目指した技術開発を進めており、このレー ザー除錆びは不導体膜の形成を促す防食効果のある 優れた手法である。

昨年度は日本原子力研究開発機構原子力科学研究 所の海岸近くに暴露されたドラム缶の発錆をサンプ リングし、異なる嫌気・好気条件下で貧栄養・富栄 養の微生物の培養試験を実施し、腐食に関与する微 生物として Gamma proteobacteria 綱の Noviherbaspirillum, Massiliaを同定した。今年度 は、レーザー照射による錆除去プロセスの高度化と 廃棄物収納容器内部の収納物のイメージングについ

て検討を行った。

なお、本研究は小テーマ1:UV-LEDによる鉄表面の 殺菌、小テーマ2:廃棄物収納容器表面の腐食層除去 と保護膜形成、小テーマ3:廃棄物収納容器内部の収 納物のイメージングの3つの小テーマで構成されて おり、本報告は主として小テーマ2と3に関するも のである。

2. 実験方法

2.1 レーザー照射による表面クリーニング (小テーマ2)

レーザー照射による表面の蒸発除去には、パルス レーザーと CW レーザーの2種類が可能であるが、 大面積処理能力や複雑形状への対応を考慮すると、 CW レーザーの利用が優れている。特に集光スポッ ト径を極小化できるシングルモードファイバレーザ ーは、高速スキャン機構との組み合わせにより均一 で大面積の処理が可能となった。従来のマルチモー ドレーザーの使用では 10kW のレーザー出力を用い ても集光直径が 1mm であったため集光強度が 10⁶w/cm² オーダーに止まっていたのに対して、シン

[#] hashiguchi-a@okayama-u.ac.jp

グルモードファイバレーザーでは 1kW のレーザー 出力でありながら,集光直径を10µmまで絞り込む ことで3桁高い10⁹W/cm²オーダーの集光強度を達 成した。これにより,レーザー集光された表面は比 較的穏やかな溶融状態から一挙に蒸発除去の状態が 達成される。

図1にふげん冷却系配管内壁サンプルのレーザー 除染の様子を示す。内壁には中性子照射により配管 材含有のコバルトが放射化し、鉄中から冷却水に溶 出したコバルトイオンが還元され、鉄錆として付着 している。レーザー照射は、この鉄錆層をほぼ完全 に除去できることが、放射線計測により証明されて いる[2]。

レーザー蒸発面の高速度カメラ観察によると、スキャン速度 lm/s,集光直径 70~200 μ m では溶融液滴が生成していることが確認される。明確に固体から液体という相変化が生じている。しかし、スキャン速度 10m/s,集光直径 10~20 μ m では、表面の様子は一変し、溶融液滴は観察されない。照射スポットの移動に伴い、表層部が蒸発消失する。液滴という相変化をほとんど経由することなく、蒸発が生じている。表層部の熱が、その直下の金属表面の伝熱を抑制出来る事は、以下に示す効果を生み出す。

- 1) 表層酸化物に限定された蒸発除去
- 2) 下地金属上のマグネタイト化
- 3) 残留熱応力の低減
- 4) 下地金属の高反射率の維持

以上の4つの効果により、反射率の低い表層の錆 層部分は錆層に含まれる水分の蒸発と伴に除去され る。



図1 ふげん配管内壁除染の様子(LDD 社提供)

レーザー錆除去装置の光学系の構成は、上流から 順次, a)シングルモードファイバレーザー本体, b)伝 送用プロセスファイバ, c)高速ガルバノミラースキ ャナー, d) f θ レンズ, により構成される。高速ガル バノミラースキャナーより下流では、圧縮空気によ る強制空冷により、光学部品表面の冷却と微粉塵の 除去が行われる。これらに加えて重要となるのが、 集塵装置である。蒸発面から飛散する酸化鉄微粒子 をサイクロンで集塵し、気流から除去する。その後、 超微粒子を含む空気は、空気清浄機で使用される HEPA フィルター及び水スクラバーを潜らせること で除去できる。

2.2 廃棄物収納容器内部の収納物のイメージン グ (小テーマ 3)

長期間の保管を余儀なくされる廃棄物容器は、内 部の廃棄物が水分を含む場合には、廃棄物から蒸発 した水分が容器内壁に結露を生じる可能性がある。 実際、福島第一原子力発電所においては、角型廃棄 物収納容器の腐食が判明した。内容物が不明な容器 は4000 基にのぼる。事故初期はサイト内が広範囲に 津波で冠水したため、これらの瓦礫は多量の海水を 含んでいたであろう。海水とそれに含まれる微生物 は腐食の要因である。研究所で発生した放射性廃棄 物は海水を含むわけではないが、ドラム缶内の雑固 体が水分を含む場合も想定される[3]。

ここでは、雑固体に多くの水分が含まれる場合を 想定し、密閉容器内内の雑固体の中性子イメージン グ測定を実施した。イメージング測定には、原子力 科学研究所にある研究用原子炉 JRR-3 に設置されて いる熱中性子ラジオグラフィ装置(TNRF)を使用し た[4]。



図 2 中性子照射室(シンチレーター, サンプルとス テージ, シャッターで構成)

図2に撮影の様子を示す。写真右のシャッターが 開くと炉心からの中性子の照射を行うことが出来る。 写真左には、雑固体を封入した鉄製容器がステージ 上に設置されている。ステージは、直線動作と回転 動作を行うことが出来る。炉心からの中性子は鉄製 容器を透過し、蛍光板にシャドウグラフ像が生じる。 この像は45度に設置したミラーで下方からカメラ で撮影した。中性子フラックスは1×10⁸ n/cm²/sec である。2次元像の撮影は数秒の露光で充分であり、 [R4-1]

放射化の影響はほぼ無視できる。

3. 結果と考察

3.1 レーザー照射錆除去プロセスの高度化

従来のケレン作業やグラインダ研磨などの機械的 手法に比べて,格段に優位にあるのがレーザー錆除 法である。この手法は原子力科学研究所に導入され, 保管されてきたドラム缶の錆除去が順次行われる。 この作業を管理区域内で実施する場合,高度化の観 点から留意する点がある。



図3 ドラム缶を用いた基礎試験(LDD 社提供)

錆除去部分はマグネタイト化(上)蒸発飛散する 高温酸化鉄粒子(下)

図3にレーザー除錆びされたドラム缶とレーザー 除錆び中の様子を示す。発錆したドラム缶は回転ス テージに固定されている。高速ガルバノスキャナー を備えたレーザー加工ヘッドはロボットアームに取 り付けられており、ドラム缶に対して 50mm 幅の領 域を処理する。ドラム缶をステージで回転させるこ とで一周にわたる処理が完成する。この操作を上下 にわたって実施することでドラム缶側面全体の処理 が終了する。これらの基礎試験を通じて、以下に述 べる3つの改善点が示唆される。

第一に, 錆除去に際して飛散する微粒子の捕集で ある。図3(下)に示すように、レーザー照射面から は高温の白熱微粒子が飛散する。開放された空間で は、高速気流が蒸発面に吹き付けられる場合、この 気流を漏れなく回収することは困難である。廃棄物 収納容器から放射性廃棄物の漏洩がある場合、放射 性微粒子が混入することになる。従って、レーザー 錆除去装置の光学系からレーザー照射面に供給され る流量よりも、遥かに大流量の空気流を形成して微 粒子を流れに取り込んだ形で回収することが必要と なる。第二は、各種の遠隔計測技術の組み合わせが、 より一層このレーザー除錆び技術を次のステージに 高度化させる。例えば,飛散する微粒子の組成分析 である。微粒子は吸引されてサイクロン内部に捕集 される。高濃度の微粒子をオンライン分析できる技 術として LIBS が有効である。 また, 放射線量の監視 も集塵された状態で効果的に行うことが出来る。半 導体検出器や小型 GM サーベイメーターなどの組み 込みが有効である。第三は、ドラム缶回転機構の安 定化である。回転に伴い内容物が不安定に移動する 状態では、レーザー集光に影響が出る可能性がある。

上記の点以外にも、実際にレーザー錆除去作業の 経験を積み重ねることで、いくつかの改善点が見い だされると思われる。また、操作を行う作業員の経 験の蓄積も重要である。装置と人が合わさってシス テムの高度化が達成される。

3.2 廃棄物収納容器内部の収納物のイメージング

図4に中性子イメージングで撮影した各種材料および水の写真を示す。図5に模擬廃棄物収納容器内部の写真を示す。中性子イメージングの結果,石英ガラスにはほとんど中性子は捕捉されなかったが,ホウ珪酸ガラスやプラスチック(PP)などに若干の吸収は見がられた。鉛や鉄はほとんど中性子を透過しないものと考えていたが,PPやホウ珪酸ガラスと同等の透過率がみられ,短時間の撮影でも明瞭な像を得ることができた。容器内の水は大部分の中性子を吸収し,水滴ほどの大きさの水でも撮影することができた。

図 5 に示すように鉄製のペール缶内に入れた模擬 廃棄物を撮影した場合にも、内容物ははっきりと確 認することができ、技術的には実際の低濃度放射性 物質を保管する 200 L 容器にスケールアップした際 にも同様の撮影が可能であると考えられる。実際の 低レベル放射性廃棄物内部には濡れウェスなど水分 を含む廃棄物が含まれており、それらが錆を発生さ せる原因になる。そのため、低レベル放射性物質保 管期間を長寿命化させるためには格納容器内部から の水分検知や外部の保護、保管環境の適正化(特に 微生物を対象として、室内大気中水分量の調整や殺 菌による微生物腐食の低減など)が必要である。

4. まとめ

本研究で得られた知見を以下に記載する。

1) レーザーによる錆除去プロセスの高度化については,CWファイバレーザーで高効率かつ完全性の高い除錆が可能であった。

2) 中性子イメージングの結果, ホウ珪酸ガラスやプ

ラスチック(PP)は中性子をある程度捕捉し,鉛や 鉄などは一定量の中性子を透過することがわかった。 容器内の水は大部分の中性子を吸収し,水滴ほどの 大きさの水でも撮影することができ,鉄製のペール 缶内に入れた模擬廃棄物を撮影した場合にも,ホウ 珪酸ガラス,プラスチック(PP),鉛,鉄,ガラスバ イアル内の水など,内容物ははっきりと確認するこ とができ,収納容器内の微量な水分の検出にも利用 可能性が見込めた。

今後は、レーザー除錆において、粉塵の除去とその組成解析の導入などによる高度化が求められており、サイクロンによる粉塵の除去、微粒子オンライン分析装置 LIBS の利用などに取り組む必要がある。

中性子イメージングにおいては、中性子を吸収す る雑廃棄物が重なるように収納されている場合、含 水物を判断し難い。このため、ステージの回転によ る3D イメージを得ることで、雑廃棄物の立体イメ ージを把握する必要がある。

また, 錆から採取された微生物には錆を進行させ る作用があるとわかったため (2022 年度報告書), 今 後は UV-LED による殺菌, 制御の手法についての確立 が必要である。



図4各種材料および水



図5模擬廃棄物収納容器内部

参考文献

- [1] 須田翔哉ら, "CW ファイバーレーザー照射法を用いた放射性廃棄物容器のリユース技術の開発,日本原子力学会 2022 年秋の大会予稿集,2C02,",日本原子力学会 2022 年秋の大会,2C02,2022
- [2] 忽那 秀樹ら, "第 27 回ふげん廃止措置技術専門 委員会資料集", JAEA-Review-2013-027, p9, 2013
- [3] 東京新聞、2021年6月28日 <u>https://www.tokyo-np.co.jp/article/113154</u>
- [4] <u>https://msrc.jaea.go.jp/jp/device/tnrf_cnrf/index.html</u>