# 技術資料

# フィルタプレス装置用耐放射線性材料の選定

石山 新太郎<sup>1,\*</sup>, 原 康二<sup>2</sup>, 山下 学<sup>2</sup>, 見浪 護<sup>1</sup>

Stock Selection of High-Dose-Irradiation-Resistant Materials for Filter Press under High-Dose Irradiation Operation

Shintaro ISHIYAMA<sup>1,\*</sup>, Kouji HARA<sup>2</sup>, Manabu YAMASHITA<sup>2</sup> and Mamoru MINAMI<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Okayama University, 2-1-1 Shimatsu Naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan <sup>2</sup>ISHIGAKI Co., 483-16, Ejiri-cho Sakaide-shi, Kagawa 762-8511, Japan

(Received August 4, 2014; accepted in revised form October 15, 2014; published online January 28, 2015)

In a volume reduction process for the decontamination of contaminated soil, the performance degradation of a filter press is expected owing to material deterioration under high-dose irradiation. Eleven-stock selection of candidate materials including polymers, fibers and rubbers for the filter press was conducted to achieve a high performance of volume reduction of contaminated soil and the following results were derived. Crude rubber and nylon were selected as prime candidates for packing, diaphragm and filter plate materials. Polyethylene was also selected as a prime candidate for the filter cloth material.

KEYWORDS: contaminated soil, decontamination, volume reduction, polymer, fiber, crude rubber, filter press, fission product

## I. 緒 言

前報<sup>1~4)</sup>において除染作業において大量に発生する汚染土壌を再生・減容化するための界面化学的分散制御高せん断流洗浄解砕処理技術の技術検証ならびにスケールアップした実用モックアップ機の性能実証のためのフィールド試験を福島県下の各種汚染土壌について実施した結果、解砕洗浄モックアップ工程において極めて高い洗浄・減容化性能を達成した。これらの成果から、今後モックアップから実規模プラント化へと開発フェーズを移行する段階に至り、現在放射線に対する安全対策を含めた実規模プラント用の各機器の開発を進めているところである。

この洗浄システムは、分散・分離・濃縮・固形/減容化各プロセスを統合化したものであるが、これら一連の作業工程で最も放射線量が高くなるのは濃縮・固形/減容化工程であることから、同工程では Fig. 1 に示すフィルタプレス (FP)装置の採用を予定しており、本装置の実用化開発は環境省平成 26 年度除染技術実証事業において実施されている。

しかしながら同装置の高線量下での機能性について使用 実績が乏しいことから、福島県内で実施した汚染土壌の洗

© 2015 Atomic Energy Society of Japan, All Rights Reserved.

浄解砕フィールド試験において濃縮・固形化工程で使用した FP 装置の性能試験結果をもとに<sup>1,2)</sup>, 実用機における作業中の FP 装置周りの線量評価解析を行い, 洗浄作業を安全に行うための作業者の作業時被ばく線量評価を行った結果, 極めて高線量となるため作業員被ばくならびに照射による装置性能への影響が懸念された.

そこで本研究では、実用 FP 装置に使用を予定しているゴム系、ポリマー系および繊維系各機構構成候補材料について照射試験後の特性評価を行い、それらの結果をもとにFP 装置用素材の銘柄選定を行った.

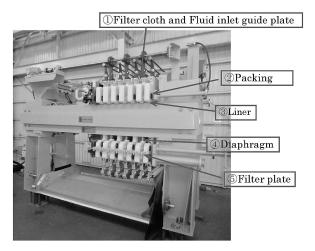


Fig. 1 Filter press machine and its typical component units

<sup>1</sup> 岡山大学自然科学系

<sup>2 (</sup>株)石垣

<sup>\*</sup> Corresponding author, E-mail: Ishiyama.shintaro@jaea.go.jp

# II. FP 実用機構成機器用材料と その試験方法

## 1. 構成機器材料

FP 実用機用構成材料のうち減容固化処理中に照射影響を受ける機能部材はゴム系、ポリマー系および繊維系素材の3種類を想定し、ゴム系素材ではクレハエラストマー社製の天然ゴム(NR)、エチレンプロピレンゴム(EPDM)、ニトリルゴム(NBR)およびクロロプレンゴム(CR)の4種類、ポリマー系素材では三菱樹脂㈱製の熱可塑性エラストマー(TPE)、超高分子ポリエチレン(UHMWPE)、ポリプロピレン(PP)およびナイロン(MC)の4種類、繊維系素材では敷島カンバス(㈱社製のポリプロピレン(IP182)、ポリエチレン(IN122-2)およびナイロン(IT135)の3種類をそれぞれ候補材に選定した。Table 1に実験で使用した各素材の品番ならびにFP装置各機能部での使用箇所を示す。

#### 2. 照射試験

#### (1) 照射条件

照射試験は、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所のコバルト 60 の  $\gamma$  線照射施設コバルト第 2 棟にて 13,000 TBq のコバルト線源を用いて実施した. 照射条件は 20 kGy/h で  $0\sim160$  kGy の範囲での段階的照射を室温で実施した.

## (2) 照射試験片

照射試験に供した試験片は① JIS K 6251 の 3 号型に準拠した機械的強度試験用試験片(縦×横×厚み, 100×25×2 mm), ② JIS K 6252 アングル型に準拠した引き裂き強さ試験片(縦×横×厚み,  $100\times19\times1.5$  mm)ならびに, ③ろ布材の外観確認, 通期度ならびに引張り強さ(縦&横)を調べるためのフェルトクーポン試験片(縦×横,  $500\times155$  mm)をそれぞれ準備した.

## 3. 照射後特性評価試験

## (1)機械的特性評価試験

各素材の主に照射前後における機械的特性評価を行うた

 Table 1
 Typical constitutional materials for filter press

Materials	Position in filter press	Specification
Crude rubber(a) (b)	24	NR
Ethylene-propylene rubber	24	EPDM
Nitrile rubber	24	NBR
Chloroprene rubber	24	CR
Thermoplastic elastomer	4	TPE
Ultra-high-molecular weight polyethylene	3	UHMWPE
Polypropylene	15	IP182, PP
MC nylon	3	MC
Polyethylene	1	IN122-2
Nylon	1	IT135

め各照射条件ごとに上記①の試験片3枚を準備しJIS K 6251の3号型に準拠して外観確認、引張り強さ、伸び、ヤング率ならびに硬さのデータを取得した.

#### (2) 引裂き強さ試験

各素材の主に引き裂き強さを照射前後で調べるため、上記②の試験片を各照射条件ごとにそれぞれ3枚づつ準備してJIS K 6251 の3号型に準拠した実験を実施した.

#### (3) ろ布特性試験

ろ布素材の照射前後における主に外観確認、通気度ならびに引張り強さ(縦&横)試験を上記③の試験片を各照射条件においてそれぞれ2枚ずつ準備して実施した.

# III. 照射前後の各種試験結果

## 1. 各種ゴム系素材の特性評価試験

4種類のゴム材質(NR, EPDM, NBR および CR)に関する照射前後の機械的特性評価試験を行った. なお, 照射実験における照射量は, 0, 30, 50 および 160 kGy の 4 段階で実施した.

## (1) 外観検査

照射前後 NR の引張り試験の外観を比較した結果, 照射により顕著な試験片形状ならびに色の変化は認められなかった. また, これらの傾向は EPDM, NBR および CR においても同様の結果となった.

## (2) 引張り強度試験

NR, EPDM, NBR および CR の最大  $160 \, \mathrm{kGy}$  までの照射量における引張り応力–歪曲線(SS 曲線)を取得した結果,すべてのゴム系素材において照射量が増加するに従って曲線勾配が徐々に増加するとともに破断強度ならびにひずみが低下した $^{5.6)}$ . ここで最大照射量  $160 \, \mathrm{kGy}$  における曲線勾配ならびに破断強度の変化の度合いは下記のとおりであった。

## CR>NBR~EPDM>NR

## (3)硬さ試験

照射によるゴム系素材の硬さ変化を調べた結果,全銘柄において照射量の増加に伴って数%の単調増加が認められたが、銘柄間の特異的な差異は認められなかった.

#### 2. 各種ポリマー系素材の特性評価試験

# (1) 外観検査

Figure 2 に照射前後での4種類のポリマー素材(TPE, PP, UHMWPE および MC ナイロン)の引張り試験片の色変化を示す.これによると照射量の増加に伴い TPE では黄色が濃くなり、PP は白色から黄色に、UHMWPE では白色から黒色に、MC ナイロンでは青色から黒色にそれぞれ色への変色がみられた.

Figure 3 に照射後の 4 繊維素材の試験片断面積変化を示す. これによるとどの素材も比較的照射初期において断面積が顕著に収縮する傾向があり, TPE では約 3%の収縮を示した後膨張に転じている.

#### (2) 引張り強度試験

4種類のポリマー素材の引張り応力-歪曲線を計測した結果、上記 III-1-(2)項のゴム系素材同様照射量が増加するに従って曲線勾配が徐々に増加するとともに破断強度ならびにひずみが低下した $^{5.6}$ . ここで最大照射量 160

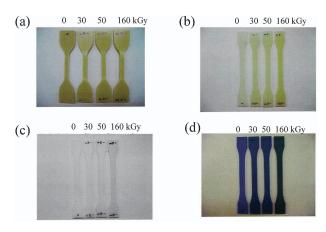


Fig. 2 Tensile strength test specimens of polymer before and after irradiation(a) TPE, (b) PP, (c) UHMWPE and (d) MC.

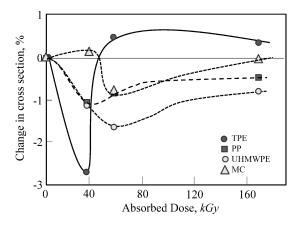


Fig. 3 Change in cross section of polymer specimens before and after irradiation

kGy における曲線勾配ならびに破断強度の変化の度合い は下記のとおりであった.

TPE>PP>UHMWPE>MC

## (3)硬さ試験

4種類のポリマー素材の照射後の硬さ変化を計測した結果,4種類すべてのポリマー素材の照射による硬さの変化に顕著な差異は認められなかった.

## 3. 各種繊維系ろ布材性能評価試験

## (1) 外観検査

Figure 4(a) に IP182(縦、横)の  $0\sim30$  kGy までの照射前後での形状変化を示す。これによると IP182 繊維クーポンの形状に顕著な変化は認められなかった。 同様に IP182 と IN122-2 についても顕著な変形は認められなかったものの色味が白色から黄色に若干の変化した。 また、Fig. 4(b) に照射前後の 3 種類の繊維クーポンの厚み変化を示す。これによるとクーポン厚みにおいて顕著な寸法変化は認められなかった。

## (2) 微細構造組織観察

Figure 5 に IN1222-2 繊維の照射前後の微細構造変化を示す. これによると繊維の微細組織構造において照射前後で顕著な差異は認められなかった. これは他の繊維にお

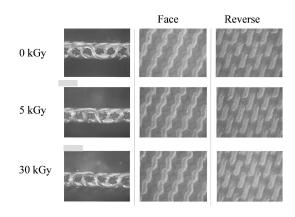


Fig. 5 Change in microstructure of IN122-2 fiber after irradiation

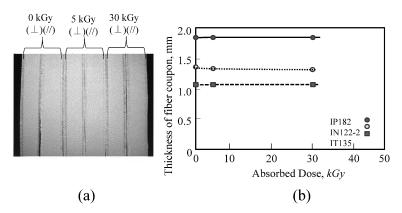


Fig. 4 (a) Fiber coupons IP182 and (b) change in thickness of coupons before and after irradiation

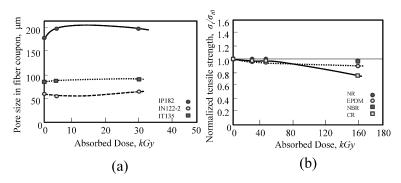


Fig. 6 (a) Change in pore size of fiber coupon and (b) change in tensile strength of rubbers before and after irradiation

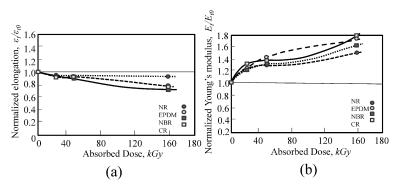


Fig. 7 (a) Change in tensile elongation and Young's modulus of rubbers before and after irradiation

いても同様であった.

Figure 6(a)に微細構造組織中の照射前後における平均 微細気孔径変化を示す。これによると最大気孔径を有する IP182において照射により増加しその後飽和する傾向を示 した。また、中程度の気孔径のIT134も同様の傾向を示 した。これに対して最小気孔径のIN122-2では照射初期 において若干減少するもののその後増加に転じている。

## IV. 考 察

# 1. 照射によるゴム系素材の特性変化5.60

Figures 6(b)~7に4種類のゴム系素材の照射後の引張り強さと伸び変化をそれぞれ示す。これによると両者とも照射量の増加に伴い単調減少しており、特にCR60においての強度減少率が70%まで達している。Fig. 14(b)に照射によるヤング率変化を示す。これによると、照射量の増加に伴いヤング率は単調に増加しており、CR60の場合1.8倍以上の上昇を示した。これらの結果ならびにIII-1-(3)項の硬さ変化から、これら4種類のゴム系素材は照射により脆性劣化しているものの、候補材中で放射線耐性が高く照射時の材料特性安定性の高い材料としては天然ゴムNRが第一候補材として推奨される。

# 2. 照射によるポリマー系素材の特性変化でつり

貴家ら $^{7}$ による 2.5 MGy までの高分子材料の $\gamma$  線照射の結果と本実験で得られた 4 種類のポリマー系素材のデー

タを Figs. 8,9 にまとめて示す。貴家らによれば、(1)ヤング率が増加し、降伏点が低下する PP タイプ、(2)両者が増加する N-6 タイプおよび(3)両者がほとんど変化しない PET タイプの三種類に分類できるとしており、弾性限界内の特性値の放射線照射による増減は最大でも 25%程度である.

これに対して本照射実験範囲における4種類のポリマー系素材は上記 PP タイプに属するものと考えられる.

また、Fig. 9に示す弾性限界以降の破断応力および破断ひずみは高分子の架橋と切断が同時に生じることから線量に従って減少するものと考えられ PP では比較低低線量で破断強度・伸びが急激に低下するとされていることから<sup>7~9)</sup>、本照射実験範囲における 4 種類のポリマー系素材の取扱いについては十分な注意を要するものの、照射時の材料特性安定性を評価するとナイロン MC 材が第一候補として推奨される。

#### 3. 照射による繊維系素材の特性変化100

フィルタプレス用濾布はろ壁内にスラリーを注入する際ならびにプレス加圧時にろ過板長手方向に引張り応力が働くため、放射線による強度や伸びに劣化を生じた場合、濾布破損によるスラリー漏れを生じる可能性があるとともに異常事象において、その交換作業に最も多くの時間がかかることから、耐放射線性の濾材選択が重要となる。そこで、ここではろ布用繊維素材の照射による特性変化を調べ

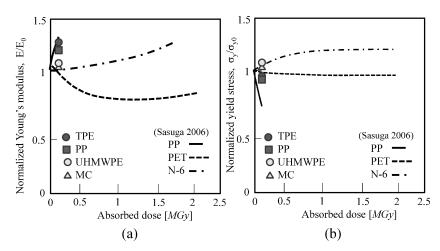


Fig. 8 Change in Young's modulus (a) and yield stress (b) of filter materials after γ irradiation

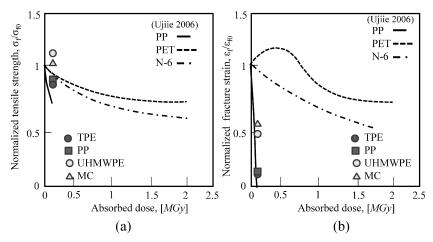


Fig. 9 Change in fracture stress (a) and fracture strain (b) of filter materials after  $\gamma$  irradiation

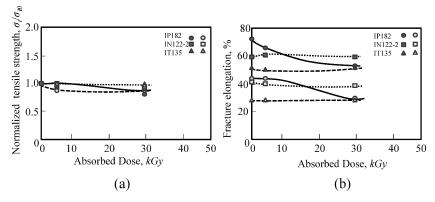


Fig. 10 (a) Change in strength and (b) fracture elongation of fiber coupons before and after irradiation Open and solid symbols are warp and wood.

た. Fig. 10 に繊維系素材の照射前後での強度ならびに伸びの変化を示す。これによると IP182 は照射により伸び特性の劣化が顕著であるのに対して、IN122-2 および IT135 の照射特性は比較的安定しており放射線耐性に優れているといえる。

Figure 11 に 3 種類の繊維系素材の照射による通気度変化を示す. これによると, IP182 および IT135 において比較的低線量で急激な通気度変化が認められる. この通気度変化は Fig. 6(a)の微細構造組織変化に起因しているものと考えられる.

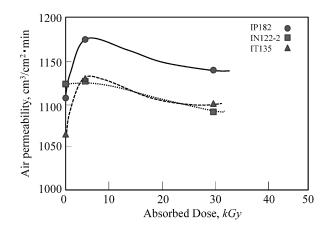


Fig. 11 Change in air permeability of fiber coupons before and after irradiation Open and solid symbols are warp and wood.

一方,これらに対して,IN122-2については比較的変化が少なく全照射範囲において通気特性が安定していることがわかる.したがって,想定使用期間中で最も照射耐性が高く特性の安定しているろ布素材としてIN122-2が第一候補材として推奨される.

#### 4. 候補材料の健全性評価

フィルタプレス機構部位において高濃縮汚染土壌に直接 的に接触するのはろ布材であることから、ここでは IV-3 節で選定された繊維素材ろ布を使用した場合のフィルタプ レス実機の耐久性に関する検討を行った.

## (1) 照射耐性

解砕洗浄処理後の高濃度汚染残土の固形化処理を行う工程において使用する実用フィルタプレス装置(㈱石垣製固定型(MC-2100))周りの線量評価を点減衰核分積分コードQAD-CGGP2R<sup>11)</sup>を用いて下記条件により実施した.

## ① 線源条件

線源核種は  $^{134}$ Cs および  $^{137}$ Cs とする. 核種ごとの光子エネルギーおよび光子放出率は放射線ハンドブック  $^{12)}$ から引用した. また、その際の放射能濃度は固形化処理の実験値の最大値 0.3 MBq/kg を用いた.

#### ② 計算モデル

線源領域はフィルタプレス装置内のケーク形成部全体を覆う範囲とし、本領域内に線源が均質に分布しているものとする。線源領域の奥行きおよび高さについてはケーク自体の寸法、長さについては(ろ過板厚×ろ過板枚数+ケーク厚み)として設定した。線源物質の組成は水とする。なお、ケーク本体の密度は 1.5 g/cm³ とした。

# ③ 解析モデル装置

Figure 12 にフィルタプレス実用機ならびに線源領域 (赤破線枠内) ならびに照射解析結果を示す. ここで, 線源領域の形状は幅×高さ×厚み, 1,880 mm×2,140 mm×9,085 mm とし, 線源領域の密度はケーク容量 14,400 L

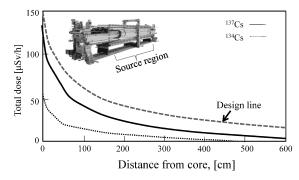


Fig. 12 Total dose of  $^{137}\mathrm{Cs}$  and  $^{134}\mathrm{Cs}$  from core of MC2100 filter press

の重量を線源領域体積で除した  $0.59 \,\mathrm{g/cm^3}(=14,400 \,\mathrm{L}\times 1.5 \,\mathrm{g/cm^3}/(1,880\times 2,140\times 9,085 \,\mathrm{mm})$  として自己遮蔽を考慮したが,装置自身による遮蔽は過小評価の可能性があることから考慮しなかった.線量領域以外の領域は空気(密度 0)とした.評価位置はフィルタプレス装置の中心位置から側面および端面方向に対して,線源表面から  $600 \,\mathrm{cm}$  まで離れた位置までの線量評価とした.

これによると、フィルタプレス用濾材の作業中の吸収線量率は  $169~\mu Sv/h$  程度と評価されることから、ここでは固形化処理を IV-3 節で選定したろ布材料で 1 年間連続使用した場合の同一吸収線量は最大  $1.5~Gy(\sim 169~\mu Sv/h\times 24~hr\times 365~days)$  程度と評価される。一方、同材料の IV-3 節における照射試験結果はこの値の 20,000 倍程度の $\gamma$  線照射(最大 0.03~MGy)で実施した結果であることから、実質的にはろ材の 1 年間連続使用時の放射線照射の劣化はほとんどないことが予測できる。そのためフィルタプレス装置のろ布交換は主に通常土壌における目詰まりが交換時の主要原因となるものと考えられる。

## (2)機器構造材料の選定

ここでは上述の各素材の照射特性を踏まえたフィルタプレス装置構成機器への素材適合化検討を行う.

## ① パッキンやダイアフラム用素材

フィルタープレスに使用するパッキンやダイアフラムは 屈曲時における引張り強さ・引裂き強さが重要となる. そ のため屈曲性の高いゴム系等のエラストマー素材を選択候 補材としている. これらの素材の照射試験の結果から,素 材のもつ材料特性のオリジナル値が高い事および放射線耐 性が高いことより天然ゴム(NR)を第一候補とした.

#### ② フィルタープレート用素材

フィルタープレートはフィルタープレス装置において大型部品であるとともに運転時に圧縮荷重が加わる部位であることから通常下の使用については、圧縮後の引張降伏応力の低下の影響が少ないことおよび製造コスト等などが重要であり、これらの観点から PP 材料が選択される。本素材の照射試験の結果から、引張試験において若干の降伏応力の低下ならびに歪の減少がみられるものの。他素材と比

較した場合でも製造コスト等に関する PP 材料の有利さは 揺るがないことからこれを候補とした.

#### ③ 摺動部素材

摺動部材としてその他のポリマー系素材の UHMWPE および MC ナイロンを従来使用しているが、照射試験の結果 PP 同様に若干の引張応力および歪の低下はみられた. しかしながら、摺動部位は放射線源中心域に直接接しないことよりこの部位での放射線劣化は従来問題視されないことから、摺動部材として UHMWPE を選定した.

## ④ ろ布材

ろ材として使用するろ布材料は従来吸水性が低く,使用 時の伸び等変形の少ない素材が選定される.そこで照射試 験には PP 材,ポリエチレンならびにナイロンの 3 種類の 材質の照射試験を行った結果,PP 材については引張強度 および伸び特性の低下がみられたが,ポリエチレンおよび ナイロンについては比較的安定した結果が得られた.一 方,ナイロン材ではポリエチレンと比較して吸水性が高く 使用時の伸び発生の問題があることから,ポリエステル材 料を候補とした.

# V. 結 論

放射能汚染土壌の洗浄再生・減容化処理プロセスにおける凝縮・固形減容化工程において使用されるフィルタプレス装置用の機器構成材料としてゴム系、ポリマー系ならびに繊維系各種素材の使用が検討されている。そこで本研究ではこれら候補素材の銘柄選定を目的に照射実験を行い11種類の適正評価を行った結果下記結論を得た。パッキンやダイアフラム用としては天然ゴムが、そしてフィルタープレート用として PP 材が第一候補としてそれぞれ推奨される。また、フィルタプレス装置用ろ布材として放射線耐性の高い素材としてポリエステルが第一候補として推奨される。

# 一参考文献一

1) S. Ishiyama, M. Kamitani, M. Kondo, "New combination washing approach of chemical interface controlled disper-

- sion and high-speed shearing washing techniques for Radioactive contaminated soil," *Nihon Kikaigakkai Ronbunnshyu*, **79**[802], 1106–1121 (2013a), [in Japanese].
- S. Ishiyama, M. Kamitani, M. Kondo, "Reclamation of highly radioactive contaminated soil by a combination of chemical interface controlled dispersion and high-speed shearing washing," *Kagakukogaku Ronbunshyu*, 39[6], 545-552 (2013b), [in Japanese].
- 3) S. Ishiyama, M. Kamitani, M. Kondo, "Decontamination of soil washing machines in high level radioactive contaminated soil processing by ceramic thin coating with ion plating technique," Kagakukogaku Ronbunshyu, 39[4], 405– 410 (2013c), [in Japanese].
- S. Ishiyama, M. Kamitani, M. Kondo, "Volume reduction effect of radioactive contaminated soil by hihg temperature heating process," *Nihon Kikaigakkai Ronbunnshyu*, 79[806], 1504-1516 (2013d), [in Japanese].
- S. Hironori, K. Iwata, A. Tonegawa, Y. Nishi, "Rapid joining between different polymers homogeneously irradiated by electron beam," J. Jpn. Inst. Metals., 72[7], 526-531 (2008), [in Japanese].
- K. Nakai, T. Sasuga, O. Sakamoto, EB Processing for Industrial Application, Industrial Application of Electron Irradiation Technique, Nissin Electric Technical Report, 54[2], 9-22 (2009), [in Japanese].
- H. Yamaoka, "Radiation-degadable polymer materials," Polymer, 47[9], 504-509 (1991), [in Japanese].
- 8) T. Sasuga, N. Hayakawa, K. Yoshida, M. Hagiwara, *Polymer*, **30**, 2054–2062 (1985).
- T. Sasuga, S. Kawanishi, T. Seguchi, I. Kohno, "Proton irradiation effects on several organic polymers," *Polymer*, 30, 2054–2060 (1989).
- 10) M. Takayanagi, T. Aramaki, T. Kyohi, "Effect of γ-ray irradiation on polyvinyl chloride fibers (I)," J. polymer, 15[2], 124-128 (1959).
- R. Sasaki, M. Watanabe, S. Takeda, T. Sawada, T. Ochiai, H. Kimura, Conversion Factor of External Exposure Dose for Determination of Upper Density Limit in Waste Burial Facility, JAEA-DATA/Code 2008-003, 36-41 (2008).
- 12) Radio Isotope Pocketbook, 11th editions, Japan Radioisotope Association, MARUZEN published (2010), [in Japanese].