

動燃における安全研究の成果  
(昭和61年度～平成2年度)  
(核燃料施設等分野)

1992年4月

動力炉・核燃料開発事業団

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical  
Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation) 1995

動燃事業団における安全研究の成果  
(昭和61年度～平成2年度)  
(核燃料施設分野)

安全研究委員会

要　　旨

本報告書は、平成2年度までの核燃料施設にかかる安全研究の5年間の成果について、とりまとめを行ったものである。

核燃料施設分野の安全研究は、(1) 核燃料施設に共通する研究、(2) 再処理施設に関する研究、(3) プルトニウム取扱施設に関する研究、(4) 放射性廃棄物の処理・貯蔵に関する研究の4分野で構成されている。

さらに、本報告書では、「原子力施設の耐震安全性に関する研究」並びに「確率論的安全評価に関する研究」に含まれる核燃料施設に関する研究課題も合わせることで、「動燃における安全研究の成果（昭和61年度～平成2年度）（核燃料施設分野）」として、とりまとめを行った。

## はじめに

動燃事業団における安全研究は、近年、原子力安全委員会の定める安全研究年次計画（昭和61年度～平成2年度）に基づき、プロジェクトの開発と密接なかかわりを持ちつつ推進しており、現在も引き続き安全研究年次計画（平成3年度～平成7年度）（以下、「年次計画」という。）に基づき実施している。

本報告書は、前「年次計画」の区切りである平成2年度末までの5年間の成果について、「年次計画」の趣旨に従って研究成果の集約・とりまとめを行ったものである。

核燃料施設分野の安全研究は、

- (1) 核燃料施設に共通する研究
- (2) 再処理施設に関する研究
- (3) プルトニウム取扱施設に関する研究
- (4) 放射性廃棄物の処理・貯蔵に関する研究

の4分野で構成されている。さらに、「年次計画」においては「原子力施設の耐震安全性に関する研究」及び「原子力施設等の確率論的安全評価等に関する研究」に含まれる核燃料施設に関する研究課題もあり、本報告書では、これらを含め「動燃における安全研究の成果（昭和61年度～平成2年度）（核燃料施設分野）」とし、研究成果の概要と個別研究課題ごとの詳細報告書とで構成した。

## 目 次

1. 核燃料施設の安全研究成果の概要	1
2. 耐震安全性に関する安全研究成果の概要	3
3. 確率論的安全評価に関する安全研究成果の概要	4
[核燃料施設分野]	5
① 日米共同臨界実験及び未臨界度測定手法の開発	7
② プルトニウム取扱施設の臨界管理に関する研究	14
③ 中性子しゃへい及び中性子被ばく管理に関する研究	19
④ インライン測定技術の開発	25
⑤ センサー及び耐放射線材料の開発	32
⑥ 遠隔作業技術の信頼性に関する研究	38
⑦ 供用期間中の調査技術の開発	43
⑧ ラックシステムによる新型遠隔保守技術に関する研究	49
⑨ 材料及びその加工法の耐食安全性に関する研究	55
⑩ 使用済燃料の溶解に関する安全性研究	61
⑪ 抽出工程の異常運転挙動時に関する安全性評価試験	67
⑫ よう素除去・貯蔵技術の開発	72
⑬ クリンプトン回収・貯蔵技術の開発	78
⑭ プルトニウムの包蔵性に関する研究	84
⑮ ガラス溶融炉の安全対策の研究	90
⑯ 貯蔵施設の安全性に関する研究	未提出
⑰ TRU廃棄物の発生量低減化技術の信頼性に関する研究	96
⑱ TRU廃棄物の減容処理、貯蔵技術の安全性・信頼性に関する研究	102
⑲ TRU廃棄物管理の安全性に関する研究	108
⑳ 放射性廃棄物の減容処理技術の信頼性に関する研究	114
㉑ 分析廃液、含塩廃液の処理技術の信頼性に関する研究	122
㉒ アスファルト固化体、プラスチック固化体の健全性に関する研究	127
[耐震安全性]	141
① 核燃料施設の免震構法に関する研究—建物及び部分免震—	143

[確率論的安全評価]	151
① 再処理施設の信頼性評価手法の開発及び改良	153
② 再処理施設の確率論的安全評価の実施	158
③ 確率論的安全評価の核燃料施設技術基準への適用	164

## 1. 核燃料施設等の安全研究成果の概要

### (1) 核燃料施設に共通する研究

臨界安全性に関しては、最新の臨界安全解析コード、ライブラリを導入・整備し、Pu及びMOX系を対象に従来コードとのベンチマーク計算によりそれらの信頼性を確認した。また、未臨界度測定手法については、日米共同実験の中でPu+U溶液系を対象にMihalczo法による実測を行い、その成立性と測定範囲を評価した。更に、未臨界度測定試験施設の設計を進め、上記と合わせて次期での試験施設の建設・運転・試験に反映する。

遮へい安全性に関しては、Pu燃料加工施設を念頭に置いての遮へい計算用ライブラリを整備するとともに、中性子スカイシャインコードシステム「SKYLARK」を整備し、実験との比較により精度が良好なことを確認し、中性子線量評価手法の高度化に資した。

事故評価手法に関しては、大型セル内圧力特性・温度分布・流動特性を評価する解析コードを開発し、実験により検証をおこなった。このコードはTVFの安全審査・施設設計に利用できた。

放射線管理技術及び分析測定技術に関する研究としては、放射線管理・測定の自動化・遠隔化を進めそれを実用するとともに、耐放射線性に優れたマニプレータセンサー回路の開発及び性能確認試験等が実施され、同回路はTVFに適用されている。また、オンライン測定技術については、Pu,U及び硝酸濃度に関しての吸光光度分析法や、 $Pu^{+3}$ ,  $Pu^{+4}$ の濃度に関してのフロークロメトリ法等の適用可能性を確認し、今後RET-Fでの実証を通して、実施設への適用を図る。

運転管理、保守・補修及び検査技術に関する研究としては、補修作業内の配管工事を対象にした主要作業要素の遠隔作業システムを構築し、今後の機器類の補修・解体作業の遠隔化と合わせて、施設での補修・交換作業の遠隔化、被ばく低減化に反映させていく。また、遠隔保守システムとしてラックシステム、高性能マニプレータシステムを開発し試験により操作性を確認し、これらをTVFに採用した。

### (2) 再処理施設に関する研究

耐食安全性に関しては、種々の条件下での各種材料の腐食挙動を把握し、また寿命評価として、Ti-5Ta製及びZr製の模擬酸回収蒸発缶について連続運転試験を行い、長期（合計 13000時間）耐食性を評価した。更に、Ti,Ti-5Ta,及びZrとステンレス鋼との固相接合法による異材継手の優れた耐食性を確認した。再処理プロセスの安全性に関しては、照射済FBR 燃料を用いた CPFにおける溶解試験により、種々の条件下での溶解挙動、オフガス放出挙動を把握するとともに、不溶解性残渣の組成データを得た。また、レーザービームによる燃料集合体解体時のエアロゾル発生挙動を試験により把握した。これらは、R E T F の安全設計に反映された。更に、抽出工程でのプロセス挙動について、パルスカラムを用いたU,Pu試験により把握した。

放射性物質の放出低減化に関する研究として、核種よう素吸着材の性能把握及びKr-85 の回収法（液化蒸留法）の開発試験がそれぞれ実ガスを用いて行われ、今後の一層の放出低減に向けての最適吸着材及び最適運転条件の選定並びに回収法の実用化に反映される。

#### (3) プルトニウム取扱施設に関する研究

グローブボックスの供用期間中の機密性試験方法の実験による検討、気密性の経年変化の実測、供用中のボックス内エアロゾル挙動の把握を行うとともに、地震時包蔵性及び停電時の負圧維持について試験による確認を行った。また、グローブボックスの新交換法の開発、臨界管理及び放射線管理の遠隔・自動化を行い、Pu燃料工場への適用を図った。

#### (4) 放射性廃棄物の処理・貯蔵に関する研究

高放射性廃液ガラス固化の安全性に関して、ガラス溶融炉の3次元熱流動解析コードを開発し、試験での温度実測値にて検証し、溶融炉の設計に適用した。また、溶融炉の耐火物材料・電極について耐食性に優れた新材料を開発するとともに、廃液前処理としての非脱硝濃縮法の運転方法の確立、高性能オフガス処理システムの開発を行い、それぞれT V F に適用しガラス固化の安定運転、放出低減に資した。

T R U 廃棄物の処理の安全性に関しては、汚染機器の解体・切断のためのプラズマ切断法及びレーザー切断法について、操作性試験あるいはレーザー伝送技術の開発を行うとともに、廃棄物の除染について電解研磨法の有効性を確認し、また劣化

電解液の電着再生法の有効性を試験により確認した。減容処理（焼却・灰溶融）の安全性について、PWTFでの実証試験にて長期安定運転、処理能力向上を確認するとともに、燃焼灰マイクロ波固化体の浸出試験にて浸出率を把握した。更に、廃棄物中のTRU核種測定法について、パッシブ $\gamma$ 線法については実廃棄物を用いて、またアクティブ中性子法については標準廃棄体を用いた測定試験により検出感度を確認した。

放射性廃棄物の減容処理の安全性に関しては、主にハルの圧縮〔熱間等方圧加圧(HIP)処理〕による減容法について固化体試作試験を行い、処理法の成立性とTRU核種の閉じ込め性を確認した。また、分析廃液、含塩廃液の処理に関し共沈・限外濾過・イオン交換等の組合せ処理法を選定し、ホット基礎試験により十分な放射性核種分離・除去の効率を確認し、IWTFのプロセスへの反映を図った。更に、アスファルト固化体・プラスチック固化体の健全性に関し、数年間経過した固化体のサンプルの基本物性を測定し、初期物性とほぼ同様であることを確認した。

## 2. 耐震安全性に関する安全研究成果の概要

### (1) 免震構造に関する研究

核燃料施設の免震に関する研究では、建物免震と既存の施設に適用可能である部分免震について研究が進められた。建物免震の研究においては、三種類の免震方式を用いた縮小モデルの効果の確認、フェイルセーフ機構の実機適用性及び解析手法の妥当性の検証、及び耐震設計された核燃料施設について免震設計のケーススタディを行い、免震構法の有効性を確認した。また、部分免震においては、滑り支承、転がり支承の加振試験及びシミュレーション解析と解析手法の妥当性を検証した。

## 3. 確率論的安全評価に関する安全研究成果の概要

### (1) 信頼性評価のための手法等の確立の研究

システムの信頼性評価においては、対象とするシステムの機能喪失に至る因果関

係を分析し、その結果をシステム・モデルとして表現する。このモデルを定量化するためには、システムを構成する機器の故障率等の信頼性データ及びモデルを処理し解析する手段を用意することが重要である。

再処理施設については、運転に伴う保全経験データを収集し、一部の機器についてのデータベースの開発を進めた。また、信頼性データに関する調査を行い、公開文献等のデータを基に故障率データベースを作成した。さらに、信頼性評価に係わる各種手法について調査し、従来の手法を再処理施設に適用した場合の得失の検討に基づき、信頼性評価システムの概念の構築、コード化を行った。

## (2) 確率論的安全評価手法の適用の研究

原子力施設の安全性を大局的に把握するとともに、開発・整備された手法の妥当性確認のために、現実問題に対する手法の適用が重要である。

再処理施設については、中規模のモデルプラントを想定しシステムモデルを作成、評価を実施し、溶解工程及び分離精製工程について放射性物質の放出リスクを算出した。これに関連して、火災・爆発解析コードの整備を行った。評価の実施を通して、整備した各種データ及び評価手法の再処理施設 P S Aへの適用の見通しが得られるとともに、総合的な P S Aの実施にあたっての課題等が明らかになった。

核燃料施設技術基準への適用については、主要な国際会議で発表された論文等を基に調査研究を行い、諸外国の核燃料サイクル施設に対する P S Aの研究開発及びその適用状況を把握した。さらに、調査結果については技術基準の検討に当たって重要な情報を整理し、データベース化を図った。

## 【核燃料施設分野】

# 日米共同臨界実験及び未臨界度測定手法の開発

大洗・実験炉部 清野英昭  
東海・再処理技術開発部 小山智造

## I. 研究の概要

### 1. 日米共同臨界実験

核燃料サイクル施設で臨界安全性を確保しつつ、過剰な裕度を取り除いた合理的な設計を達成するためには、臨界解析手法の信頼性を向上させるとともに解析モデルを現実的なものにする必要がある。臨界安全解析技術の向上を目的として、Pu+Uの溶液燃料及び燃料ピンを用いた臨界実験を実施した<sup>(1)</sup>。実験の目的は、①既存の臨界実験で取り扱われていない範囲のデータの取得、②計算コードと断面積ライブラリーの確証、③解析・評価精度の向上による核燃料サイクル施設の信頼性の向上等である。

実験で得られたデータは、主として核燃料サイクル施設の許認可で臨界安全評価に適用されるSCALEコードシステムで解析されたほか、より詳細な炉物理的現象の解明を目的として、原子炉炉心の核設計評価に適用される計算コードによる解析を行った。

### 2. 未臨界度測定手法の開発

核燃料サイクル施設の臨界安全管理の向上には、未臨界度（実効増倍率）の測定が有効である。未臨界度測定法の1つとしてJ. T. Mihalczo（米国・ORNL）が提唱した<sup>252</sup>Cf-Source-Driven Neutron Noise Analysis法（以下、Mihalczo法と呼ぶ）について、日米共同臨界実験を通してその性能を確認した。Mihalczo法については、重水臨界実験装置において測定・実験を実施するためのシステムが整備され、さらに、従来から原子炉炉心の実効増倍率測定法として適用されているFeynmann- $\alpha$ 法やパルス中性子源法についても、測定システムの整備が実施された。また、重水臨界実験装置を未臨界度測定試験装置に改造するための設計が進められた。

## II. 研究成果

### 1. 日米共同臨界実験

#### (1) 実験内容と結果

臨界実験は、Pu+U水溶液体系、有機溶液中燃料ピン体系、燃料溶液中燃料ピン体系について、以下に示す5つのSubtaskに分けて実施された。

- Pu+U水溶液体系の低濃度実験 (Subtask 110)
- Pu+U水溶液体系の基本ケース実験 (Subtask 120)
- Pu+U水溶液体系の固定中性子吸収体実験 (Subtask 140)
- 有機溶液中燃料ピン体系の基本ケース実験 (Subtask 220)
- 燃料ピンと燃料溶液・可溶性中性子吸収材の体系の実験 (Subtask 320)

各Subtaskの実験について概要を説明する。

#### (a) Subtask 110

Subtask 110<sup>(2)</sup>は、Pu+U水溶液体系の低濃度実験であり、実験に使用された燃料溶液のPu富化度は、50wt%、20wt%の2種類、その濃度は、約23 g (Pu+U)/ℓ～約53 g (Pu+U)/ℓである。直径約69cmの円筒タンクを炭素鋼製の反射体タンクの中に設置し、水反射条件で測定

を実施した。実験に使用した円筒タンクの概念を図-1に示す。また、実験データの例を表-1に示す。

(b) Subtask 120

Subtask 120<sup>(3)</sup>は、Pu+U水溶液体系の基本ケース実験であり、実験に使用された燃料溶液のPu富化度は、50wt%、40wt%、20wt%の3種類、その濃度は、約104 g (Pu+U)/l～約468 g (Pu+U)/lである。実験には、直径約35cmの円筒タンクと厚み可変の平板タンクが使用された。Subtask 110と同様に、円筒タンクは炭素鋼製の反射体タンクの中に設置され、水反射、コンクリート反射、反射体なしの3種類の実験が実施された。コンクリート反射体を用いた実験では、円筒タンクのまわりに約25cm厚のコンクリート反射体を設置した。実験に使用した円筒タンクは、図-1に示されたタンクと同様であり、実験データの例を表-2に示す。

平板タンクは、タンクまわりがベロー（じゃばら）になっており、タンクの厚みを約7cm～約23cmの範囲で変えることができる。平板タンクは、ステンレス製反射体タンクの中に設置され、水反射、反射体なしの2種類の反射条件で実験した。平板タンクの概念を図-2に、実験データの例を表-3に示す。

(c) Subtask 140

Subtask 140<sup>(4)</sup>は、固定中性子吸収体を含むPu+U水溶液体系の実験であり、実験に使用された燃料溶液のPu富化度は、100wt%、50wt%、20wt%の3種類、その濃度は、約60 g (Pu+U)/l～約488 g (Pu+U)/lである。実験には、内径約25cm、外径約53cmの円環タンクを使用した。円環タンクの概要を図-3に示す。円環タンクの中央には、燃料溶液の入ったインナーボトルあるいは中性子吸収体を設置することができる。インナーボトル内の燃料溶液はPu+U水溶液であり、円環タンクに装荷された燃料溶液と同じPu富化度の燃料溶液を使用した。固定中性子吸収体には、中央にインナーボトルを設置できるようにした円環形の吸収体と円筒形の吸収体の2種類があり、円環形の吸収体では、B<sub>4</sub>C含有率の異なる4種類のB<sub>4</sub>Cコンクリート及びCdのシートで覆われたポリエチレンを、円筒形の吸収体では、カドミニウムのシートで覆われたポリエチレンを吸収材として使用した。Subtask 110と同様に、円環タンクを炭素鋼製の反射体タンクの中に設置し、水反射条件で実験を実施した。実験データの例を表-4に示す。

(d) Subtask 220

Subtask 220<sup>(5)</sup>は、有機溶液中に燃料ピンを配列した体系の実験である。実験では、FTT (Fast Test Reactor) の燃料ピンを直径約110cmの炭素鋼製のタンクの中に配列し、タンク内に減速材として有機溶液又は水を充填した状態で行った。使用された燃料ピンのPu富化度は約20wt%であった。燃料ピンは正方格子状に配列され、ピッチ（燃料中心間の距離）は、1.935cm、1.537cm、1.242cm、0.968cm、0.761cmの5種類とした。実験データの例を表-5に示す。

(e) Subtask 320

Subtask 320<sup>(6)</sup>は、可溶性中性子吸収材を含む燃料溶液にSubtask 220と同じFTT燃料ピンを配列した体系の実験である。燃料溶液は、Pu+U混合溶液であり、Pu富化度20wt%、濃度は約4 g (Pu+U)/l～約468 g (Pu+U)/lである。実験には図-4に示す直径約53cmのボイラーチューブ型槽を使用した。このタンクには996本のガイドチューブがつけられており、

燃料ピンはガイドチューブの中に収納される。燃料ピンのピッチは1.4cmであり、正方格子状に配列された。実験に使用した可溶性中性子吸収材はGd（ガドリニウム）であり、その濃度は、0～約2g/lである。実験は、Subtask 110と同様に、炭素鋼製の反射体タンクの中にボイラーチューブ槽を設置し、水反射条件で行った。実験データの例を表-6に示す。

## (2) 実験解析

### (a) SCALEコードシステムによる解析

得られた実験データを、ORNL（米国オークリッジ国立研究所）で開発されたSCALE2（Standardized Computer Analyses Licensing Evaluation）コードシステム<sup>(7)</sup>のCSAS2（Criticality Safety Analysis Sequence）モジュールと、SCALE内蔵のCSR-L（Criticality Safety Reference Library）27群の核データを使用して解析した。BONAMI、NITAWL、XSDRNPによって断面積処理計算を行った後、KENO-IVで臨界計算を行った。XSDRNPは均質セル断面積作成コードであり、今回の解析では、燃料ピンを用いたSubtask 220と320の解析に使用した。

実験解析の結果を図-5に示す。Subtask 320（△印）を除くと、大部分（約8割）の実効増倍率は±1%以内（0.99～1.01）にあり、また、Pu濃度、U濃度、Pu富化度等の実験パラメータと実効増倍率との間には有意な依存性はなく、良好な結果が得られた。また、ORNLにおいても、より新しい版であるSCALE4コードシステムを使用して同時に解析を実施し、PNCと同様の良好な結果を得た。Subtask 320については、PNCが使用したSCALE2では低いC/E値を示しているが、SCALE4コードシステムを使用したORNLの解析では、良好な結果<sup>(8)</sup>が得られている。

### (b) 炉心解析コードによる解析

FTTR燃料ピンを使用したSubtask 220の実験解析<sup>(9)</sup>を、従来からATRの炉心解析で実績のある衝突確率法によるWIMSコードで得られた群定数と、拡散コードCITATIONを用いて実施した。その結果、実効増倍率に対して0.02～0.7%Δkの解析精度を得ることができた。また、FTTR燃料ピンと溶液燃料からなる共鳴領域の取扱いが困難なSubtask 320（ボイラーチューブ型タンク体系）の実験データを、WIMSコードによる群定数と多群モンテカルロコードKENO-IVによって解析した。その結果、実効増倍率に対して0.1～1.0%Δkの解析結果を得ることができた。さらに、Subtask 110、140及び220の実験で得られた各核種の反応率分布を、WIMSコード又は連続エネルギーモンテカルロコードMCNP-3Aを用いて解析した。その結果、ATR炉心の実験解析で得られた精度と同等の20%以内の解析精度を得ることができた。Subtask 220及び320の実効増倍率に関する実験解析結果を図-6、図-7に示す。

## 2. 未臨界度測定手法の開発

### (1) Mihalczo法による未臨界度測定

#### (a) 確証実験<sup>(10), (11)</sup>

核燃料サイクル施設の臨界安全管理に有効な未臨界度測定技術開発として、Mihalczo法を基本とした未臨界度測定装置（Subcriticality Measurement System: SMS）を試作し、Pu+U水溶液系に適用してその原理の成立性と未臨界度測定範囲を評価した。実験には、米国バッテル研究所のCritical Mass Laboratory (CML) にあるSlab Tank Assemblyを使用した。この実験では、Slab Tank Assemblyの厚さは11.43cmから11.09cmまで変化させた。実験

体系はSlab Tank Assemblyの厚さを固定し溶液の高さを変化させた場合と、溶液の高さを固定し厚さを変化させた場合の2種類とした。一連の実験において、中性子検出器と $^{252}\text{Cf}$ 中性子源の配置を、未臨界度情報として得られるスペクトル密度が一点近似動特性方程式に適用できる様に考慮した。即ち、①中性子源を体系の中心に設置する、②中性子源に対して2つの中性子検出器位置を点対称とする、③中性子源からの直接の中性子や高次中性子を除くため、中性子検出器と中性子源との間の距離を十分に確保する、④中性子実効増倍率は得られたスペクトル密度比のうち低周波部分のみを用いる、などの条件でデータが測定された。

#### (b) 実験結果とその解析

低周波成分のスペクトル密度比、及びBreak Frequency Noise Analysis (BFNA) によって体系の実効増倍率が測定され、KENOコードによる計算結果と比較された。表-7に測定値と計算値の比較がまとめられている。表に示されているように、2種類の測定値と計算値は十分な精度で一致することが確認された。

### (2) 各種の未臨界度測定法と未臨界度測定試験施設

#### (a) 未臨界度測定法の検討

核燃料を含む体系の実効増倍率、即ち未臨界度を測定する手法としては、上記のMihalczo法のほかにも、原子炉炉心を対象として各種の測定法が開発されている。現在設計が進められている未臨界度測定試験施設で検討される未臨界度測定の手法として、上記Mihalczo法のほかに、Feynmann- $\alpha$ 法やパルス中性子源法のシステム整備が進められ、重水臨界装置において予備的な実験が実施された。また、未臨界試験体の周囲にドライバー燃料を設置して臨界とした体系の実験値から、未臨界試験体の実効増倍率を求める方法についての理論的検討が行われた。ここに述べた各種の手法による具体的な未臨界度測定は、次期年次計画の課題である。

#### (b) 未臨界度測定試験施設

新型転換炉のための炉物理実験施設である重水臨界実験装置 (DCA) を未臨界度測定試験施設に改造する計画が進められた。本計画では、DCAの炉心の中央部に設けられた直径80cm程度の空洞部に未臨界試験体を設置し、未臨界度測定手法開発のための試験体を供するとともに、未臨界試験体を取り囲む炉心燃料を用いて体系全体を臨界とすることによって、炉物理データを得ることが考えられている。施設の概念を図-8に示す。本試験施設では、主として深い未臨界体系の測定手法を開発する計画であるが、建設、運転、実験については次期年次計画の課題である。

## 3. まとめ

日米共同臨界実験では、これまで実施されたことのない高Pu富化度溶液燃料を用いて、高濃度及び低濃度領域の臨界データが得られたほか、Gd入りのプルトニウム燃料溶液を使用した実験を行い、信頼性の高い実験データを得ることができた。実験値は、SCALEコードシステムを用いて日米それぞれ独立に解析され、共に実験との良い一致が示された。また、原子炉炉心解析用のコード (WIMS、CITATION) によっても解析され、良好な結果を得た。

未臨界度測定手法の開発では、Mihalczo法による測定が日米共同実験の中で実施され、実効増倍率0.7程度までの測定実績が得られた。今後、現在設計が進められている未臨界度測定試験施設において、他の測定手法とともに、より工学的な体系についての測定実験を実施する。

## 参考文献

- (1) Y. HACHIYA, T. KOYAMA(PNC, Japan), G. R. SMOLEN and G. E. WHITESIDES(ORNL), "Joint United States/Japanese Criticality data Development Program Plan", American Nuclear Society Topical Meeting on Criticality Safety and Storage of Fissile Material, P228, Jackson, Wyoming, USA September 8-12, 1985
- (2) R. C. LLOYD, T. MATSUMOTO, "Criticality Experiments with Dilute Plutonium-Uranium Nitrate Solution at Plutonium Fractions of 0.2 and 0.5 in Cylindrical Geometry," Trans. Am. Nucl. Soc., 55, 377 (1987)
- (3) R. C. LLOYD, H. FUNABASHI, "Criticality Experiments with Mixed Plutonium-Uranium Nitrate Solutions at Plutonium Fractions of 0.5, 0.4, and 0.2 in Slab and Cylindrical Geometry," Trans. Am. Nucl. Soc., 57, 127 (1988)
- (4) R. C. LLOYD, T. KOYAMA, "Criticality Experiments with Mixed Plutonium-Uranium Nitrate Solution at Plutonium Fractions of 0.2, 0.5, and 1.0 in Annular Cylindrical Geometry," Trans. Am. Nucl. Soc., 56, 318 (1988)
- (5) S. R. BIERMAN, G. R. SMOLEN, T. MATSUMOTO, "Experimental Criticality Data Comparing Organic with Water Moderation," Trans. Am. Nucl. Soc., 54, 195 (1987)
- (6) R. C. LLOYD, G. R. SMOLEN, T. MATSUMOTO, "Criticality Experiments with a Mixed-Oxide Fuel Pin Array in Plutonium-Uranium Nitrate Solutions," Trans. Am. Nucl. Soc., 58, 171 (1989)
- (7) Staff of Technical Applications, Computing and Telecommunications Divesion at ORNL, "A Modular Code System for Licensing Evaluation," NUREG/CR-0200(Revised June 1986)
- (8) G. R. SMOLEN, T. MATSUMOTO, "Validation Studies Based on Critical Experiments Performed with Fuel Pin Arrays Moderated by Pu+U Solutions," Trans. Am. Nucl. Soc., 58, 172 (1989)
- (9) N. AIHARA, N. FUNAMURA, H. KADOTANI and T. KOYAMA(PNC, Japan) and M. J. HAIRE(ORNL), "Analytical Study of Critical Experiments of Organic and Light Water Moderated Mixed Oxide Fuel Pin Arrays", American Nuclear Society Annual Meeting, Dallas, Texas, June 7-12, 1987
- (10) J. T. MIHALCZO, H. YAMANA, E. D. BLAKEMAN, G. E. RAGAN, R. C. KRYTER, T. MATSUMOTO, H. SEINO, " $^{252}\text{Cf}$  Source-Driven Neutron Noise Measurements of Subcriticality for a Slab Tank of Aqueous Pu-U Nitrate," International Seminar in Nuclear Criticality Safety, Tokyo, Japan, Oct., (1987)
- (11) J. T. MIHALCZO, E. D. BLAKEMAN, G. E. RAGAN, H. SEINO and R. C. ROBINSON, " $^{252}\text{Cf}$  Source-Driven Neutron Noise Measurements of Subcriticality for an Annular Tank Containing Aqueous Pu-U Nitrate," Nuclear Technolgy, 94, 336, (1991)

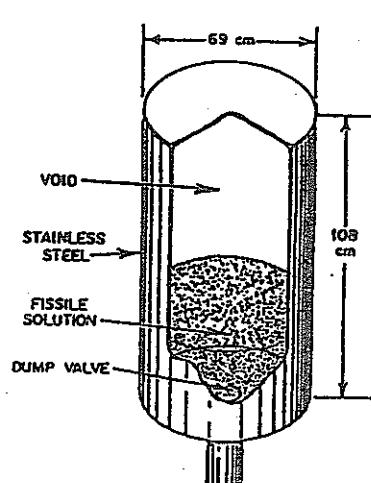


図-1 円筒タンクの概念(69cmφ)

表-1 Subtask 110の実験データの例

Run Date	Pu (g/l)	U (g/l)	Critical Height
11/01/85	11.88	11.05	76.80
11/06/85	11.73	10.78	83.14
12/05/85	12.19	41.04	81.72

表-2 Subtask 120の実験データの例(円筒タンク)

Run Date	Reflector	Pu (g/l)	U (g/l)	Critical Height
01/15/85	Water	59.0	53.12	23.82
01/29/85	Concrete	59.5	54.12	24.88
01/26/85	Bare	59.3	53.27	34.93
03/04/86	Concrete	118.7	174.0	27.03
03/07/86	Water	119.0	174.7	25.26
03/11/86	Bare	118.9	174.5	41.08
08/25/87	Water	76.34	261.7	28.43
08/28/87	Bare	76.41	260.3	50.78
09/01/87	Concrete	76.67	261.5	30.01

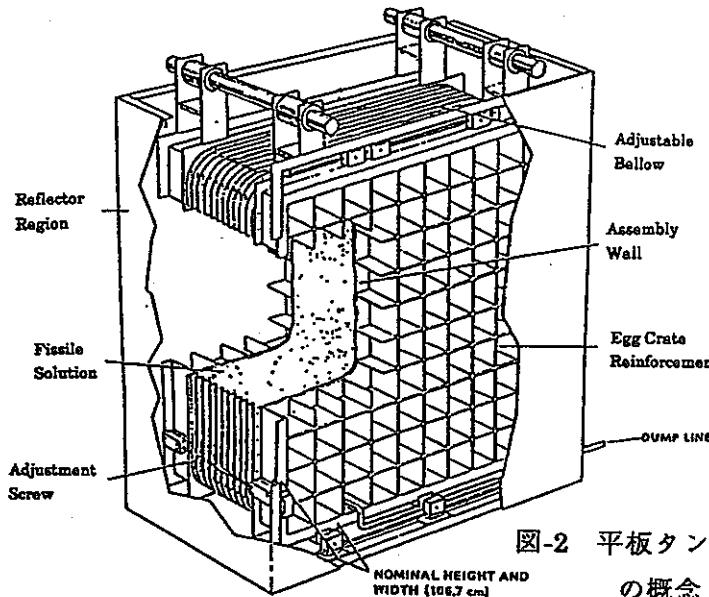


図-2 平板タンク  
の概念

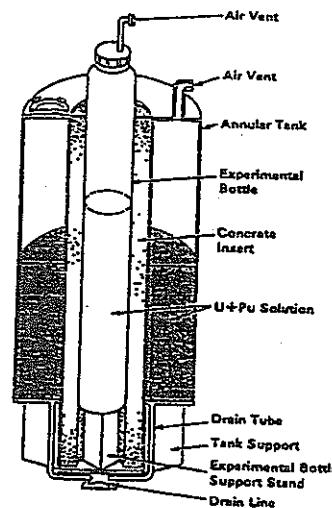


図-3 円環タンクの概念

表-3 Subtask 120の実験データの例(平板タンク)

Run Date	Reflector	Pu (g/ℓ)	U (g/ℓ)	Slab Thick (cm)	Critical Height
04/10/85	Bare	173.6	157.5	18.1	71.88
09/05/85	Water	118.2	108.4	12.19	60.62
04/22/86	Bare	172.8	262.8	19.05	85.38
04/23/86	Water	172.7	262.9	13.46	74.19

表-4 Subtask 140の実験データの例(円環タンク)

Run Date	Insert	Pu (g/ℓ)	U (g/ℓ)	Critical Height
06/20/86	P-26*	102.2	365.2	48.55
07/08/87	B-2	108.3	380.4	32.86
08/06/87	P-29/B-2	73.64	250.3	79.18
08/12/87	P-28	74.25	251.6	104.6

\* P-26 Annular concrete insert with 2wt% B4C  
P-28 Solid polyethylene with Cd cover  
P-29 Annular polyethylene with Cd cover  
B-2 Bottles containing Pu + U nitrate

表-5 Subtask 220の実験データの例

Run Date	Pin Pitch (cm)	Moderator	Critical Number of Fuel Pin
7/17/85	0.761	Water	1048.9
8/5/85	0.761	Organic	1054.8
7/25/85	1.537	Water	199.7
5/14/85	1.537	Organic	199.5

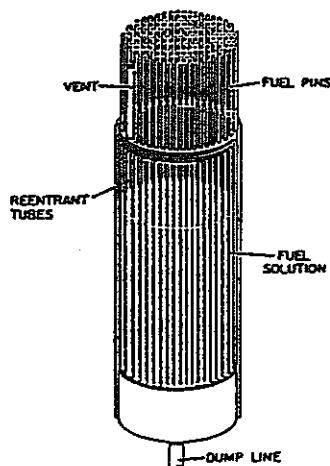


図-4 ボイラーチューブ型槽の概念

表-6 Subtask 320の実験データの例

Run Date	Pu (g/ℓ)	U (g/ℓ)	Solution Critical Height
11/04/87	0.88	2.7	18.41
11/09/87	73.95	254.1	21.34
11/24/87	22.63	77.84	18.90
12/02/87	103.7	364.0	23.87

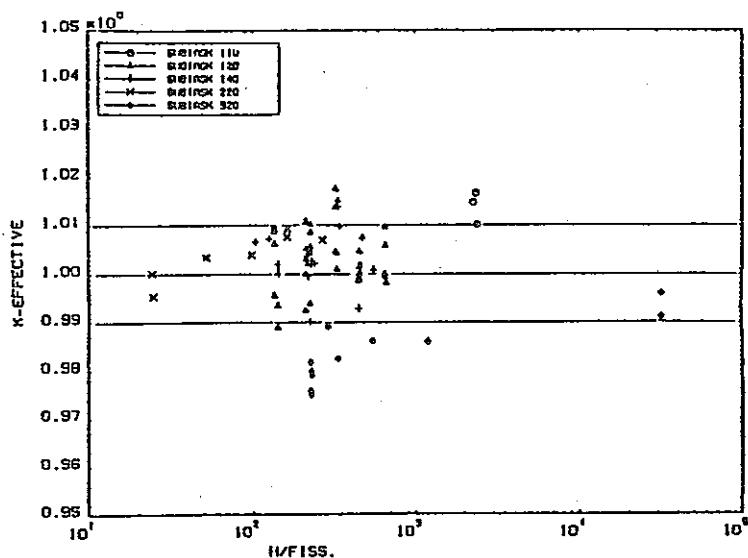


図-5 解析結果

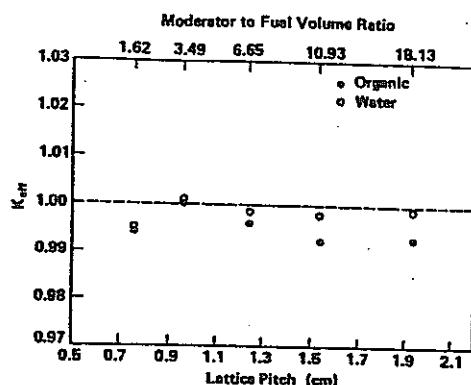


図-6 実験データ解析結果(Subtask 220)

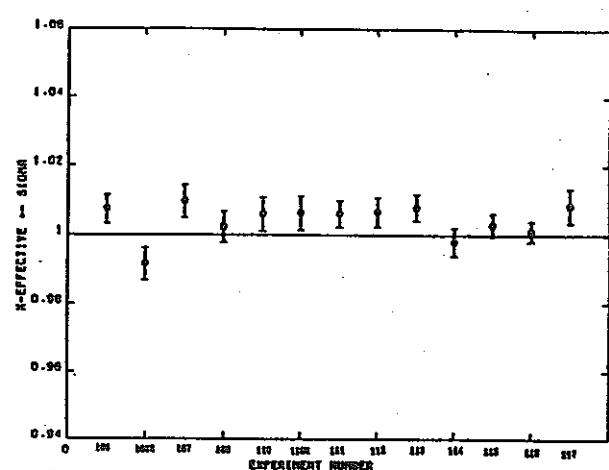


図-7 実験データ解析結果(Subtask 320)

表-7 実効増倍率の測定

Slab Dim. (cm)		Multiplication Factor			KENO Calc.
		Experimental Values			
Thick.	Height	A	B	C	
19.05	71.3	0.9924±0.0002	0.9917	0.990	0.992
19.05	61.6	0.9830±0.0005	0.9828	0.978	0.979
19.05	50.7	0.963±0.001	0.9655	0.953	0.947
19.05	40.6	0.924±0.002	-	0.917	0.924
16.50	71.1	0.924±0.002	-	0.911	0.914
13.97	71.1	0.841±0.004	0.8403	0.835	0.835
11.43	71.0	0.707±0.012	-	0.715	0.720

溶液組成 Pu:172.85g/l U:261.96g/l

実験値 A:Spectral densityの比による値(ORNL)

B:同上(名古屋大)

C:BFNAによる値

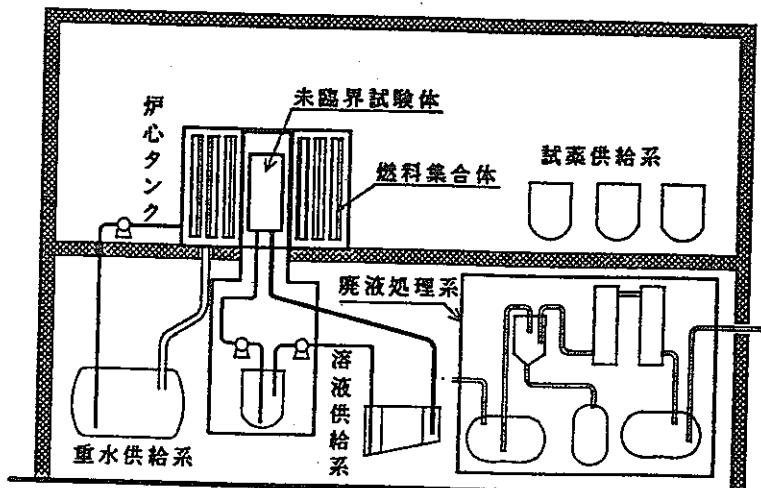


図-8 未臨界度測定試験施設概念

# プルトニウム取扱施設の臨界管理に関する研究

東海・安全管理部

野尻一郎

東海・核燃料技術開発部

山本偉政

## I. 研究の概要

本研究は、プルトニウム取扱量の増大及びプルトニウム同位体の高次化に対応して、プルトニウム取扱施設の臨界安全設計及び臨界安全管理技術の信頼性向上と合理化・効率化を図るため、実施したものである。本研究においては、施設の建設、運転経験に基づき工程毎に実用的な臨界解析評価手法の確立を図るため、従来用いていた臨界解析コード、ライブラリについて、その適用対象、手順の調査及び解析フローの作成を行うとともに、SCALE, JACS等最新の臨界安全解析コード、ライブラリを適宜導入・整備した。また、施設の臨界安全設計、臨界安全管理に反映できるハンドブックの作成のため、国内外の公開ハンドブックの調査、臨界データ計算及びハンドブックの構成検討を行った。

## II. 研究成果

### 1. 臨界解析評価手法の確立

従来プルトニウム取扱施設では、以下に示す臨界解析コード、ライブラリ等を使用していたが、これらについて、その適用対象、手順の調査及び解析フローの作成を行った。

非均質格子系 : GTB2-CITATION

均質系 : Hansen Roach/GGC4-ANISN, GGC4-CITATION

全複雑系 : Hansen Roach/WIMSD-KENO IV

さらに、米国ORNLで開発されたSCALEシステム、日本原子力研究所で開発されたJACSシステムなど最新の臨界安全解析コード、ライブラリを適宜導入・整備し、プルトニウム取扱施設への適用について検討するため、ベンチマーク計算、比較計算等を実施した。ここでは、これらの成果のうち、SCALE等を用いて行ったMOX燃料集合体貯蔵庫を対象とした比較計算並びにPu及びMOX粉末系のベンチマーク計算の結果を示す。

#### (1) 臨界安全解析コード比較計算

##### (a) 計算の概要

本比較計算は、最新の臨界安全解析コードについて、計算結果の傾向、今後の検討課題等を明らかにするために実施したものである。計算には、以下に示す計算コードまたは計算手順を用いた。

- SCALE-4 CSAS25
- SCALE-3 CSASI, SCALE-4 KENO V.a
- MCNP-3B
- SCALE-3 CSAS2

計算の対象は、276個の集合体貯蔵ピット（上部及び下部：コンクリート）を備えたMOX燃料集合体貯蔵庫である。貯蔵する集合体は、3.6本の燃料棒、スペーサー支持管及びスペー

サーで構成され、1体づつ収納容器（SUS304製）に収納後、貯蔵ピットに貯蔵される。

#### (b) 計算モデル

燃料集合体のモデル化にあたっては、燃料ペレット及び被覆管以外の構造物（スペーサーやリッド等）は無視した。また、燃料棒間の隙間（減速材領域）については、乾燥状態から冠水状態までを模擬するため、水（減速材）の密度をパラメータとした。燃料集合体貯蔵庫については、図-1に示す格子を単位格子とし、格子間の境界条件を鏡面反射とした無限配列モデルとした。図-2に単位格子の垂直断面を示す。

#### (c) 計算結果

計算結果を表-1に示す。SCALEについては、CSAS25手順ではSCALE-4とSCALE-3に顕著な差は見られていないが、CSAS2手順は高めの結果を示した。これは、CSAS2での均質化によるものと考えられる。また、将来的に臨界計算の標準値を定めるものと期待される連続モンテカルロコードMCNPについては、収束の速度の改善等、今後の検討課題が明らかとなった。

### (2) Pu及びMOX粉末系ベンチマーク計算

#### (a) 計算の概要

計算に先立ち、国内外の最近の臨界実験の実施状況について文献調査を行い、実験条件と臨界データの整理し、検証計算に使用する臨界実験データとして、Pu粉末系20ケース及びMOX粉末系136ケースを選択した。計算にはSCALEコードシステムの最新版であるSCALE-4を用いた。

#### (b) 計算結果

計算条件は以下のとおりである。

使用ライブラリ	CSRL27群ライブラリ
計算世代数	103 世代
中性子発生数	300 個/世代
スキップ世代数	3 世代
初期中性子発生分布	一様分布

計算の結果、平均の中性子実効増倍率は実験値1.0に対して、Pu粉末系では平均1.01858、標準偏差0.00727となり、MOX粉末系では平均1.01635、標準偏差0.01415となった。また、これらを合わせた156ケースでは平均1.01635、標準偏差0.01347となった。これらから、SCALE-4はPu粉末系及びMOX粉末系に対して安全側の評価を与えることが明らかとなった。さらに、これらの結果を公開されているJACSのベンチマーク計算結果と比較したところ、表-2に示す結果とおり、両者の差はほとんどないことから、SCALE-4はJACSと同程度の信頼性を有するものと考えられる。

## 2. 臨界安全ハンドブックの作成

### (1) 臨界ハンドブックの調査

国内外の公開ハンドブックの調査、データ整理を実施し、各ハンドブックの比較を行うとともに、プルトニウム取扱施設の臨界安全設計の観点から不足しているデータの洗い出しを行った。調査したハンドブックを以下に示す。

TID-7016 Rev. 1 Nuclear Safety Guide, 1961 (米)  
TID-7016 Rev. 2 Nuclear Safety Guide, 1978 (米)  
TID-7028 Critical Dimensions of Systems Containing  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ , 1968 (米)  
AHSB(S) Handbook of Criticality Data, 1967 (英)  
CEA-R3114 Guide de Criticite, 1967 (仏)  
Handbuch zur Kritikalitat, 1970 (独)  
臨界安全ハンドブック (日)

## (2) 臨界データ計算

公開ハンドブックの調査結果を基にして、MOX燃料系、Pu燃料系等について臨界データの計算を行った。計算コードについては、従来使用していたHansen Roach-KENO IVを用いた。計算結果の例として、MOX-H<sub>2</sub>O系の最小臨界データを表-3及び図-3に示す。

## (3) 臨界ハンドブックの構成検討

臨界ハンドブック作成の第1段階として、これまでのプルトニウム取扱施設の臨界管理の考え方、臨界安全設計、評価手法の整理、最新の臨界安全に係る知見等を基にして、ハンドブックとして示すべき項目及び作成にあたって検討すべき事項について明らかにした。これらの検討において、作成するハンドブックは、施設の合理化を目的として、対象をある程度明確にして、各工程及び設備における臨界安全の考え方を、これまでのプルトニウム取扱施設の設計、建設、運転経験を基にして、まとめることとし、今後「臨界安全ガイドブック」とすることとした。

## 3. 成果のまとめ

本研究により、(1)最新のコード類の導入・整備の結果、実用的な臨界安全設計・評価のための解析評価技術の図れしたこと、(2)プルトニウム取扱施設の臨界管理の考え方等の整理、国内外のハンドブックの調査・整理により、ハンドブックとして示すべき事項が明らかになったことは、プルトニウム取扱施設の臨界安全性に係る指針、基準類の策定のために資するとともに、今後の施設の増設、建設等において合理的な臨界安全設計及び臨界安全管理に反映できるものである。

本研究は、今後も「プルトニウム取扱施設の臨界管理に関する研究」として継続し、

- ・より詳細な解析のための計算コード（主にモンテカルロコード）の汎用化整備及び核データライブラリの整備
- ・臨界安全ガイドブックの作成
- ・臨界安全監視システムの開発

を行う計画である。

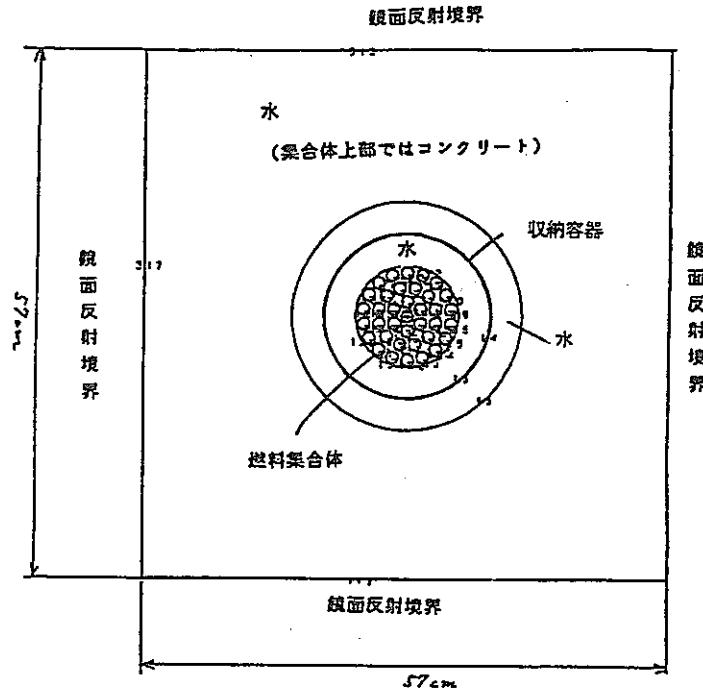


図-1 燃料貯蔵庫単位格子モデル

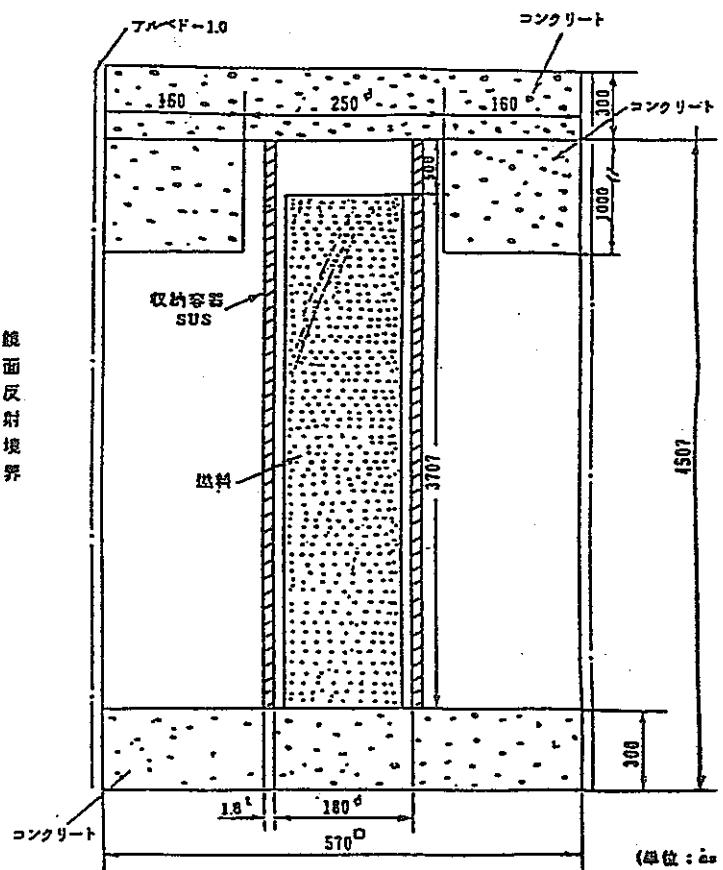


図-2 燃料貯蔵庫単位格子モデル（垂直断面）

表一 燃料集合作体貯藏庫比較計算結果

減速材 密度 ( g /cc)	SCALE-4 CSAS25	SCALE-3 CSASI SCALE-4 KENO V.a	MCNP-3B	SCALE-3 CSAS2
	$k_{\text{eff}} \pm 1\sigma$	$k_{\text{eff}} \pm 1\sigma$	$k_{\text{eff}} \pm 1\sigma$	$k_{\text{eff}} \pm 1\sigma$
0.00	$0.6482 \pm 0.0033$	$0.6470 \pm 0.0031$	$0.6507 \pm 0.0050$	
0.01	$0.8427 \pm 0.0034$	$0.8429 \pm 0.0040$	$0.8307 \pm 0.0048$	$0.8614 \pm 0.0036$
0.03	$0.9585 \pm 0.0043$	$0.9589 \pm 0.0042$	$0.9430 \pm 0.0041$	$0.9628 \pm 0.0033$
0.05	$0.9228 \pm 0.0035$	$0.9206 \pm 0.0032$	$0.9073 \pm 0.0036$	$0.9252 \pm 0.0044$
0.10	$0.7009 \pm 0.0039$	$0.7000 \pm 0.0038$	$0.6991 \pm 0.0044$	$0.7137 \pm 0.0036$
0.40	$0.3773 \pm 0.0037$	$0.3689 \pm 0.0035$	$0.3502 \pm 0.0066$	$0.3708 \pm 0.0033$
1.00	$0.5302 \pm 0.0038$	$0.5313 \pm 0.0037$	$0.5174 \pm 0.0042$	$0.5045 \pm 0.0042$

表-2 SCALE-4ベンチマーク計算結果

	SCALE - 4		JACS	
	平均	(標準偏差)	平均	(標準偏差)
Pu 粉末系	1.02221	(0.00679)	1.02224	(0.00954)
MOX粉末系	1.01647	(0.01128)	1.01683	(0.01114)
全ケース	1.01710	(0.01100)	1.01743	(0.01106)

表-3 MOX-H<sub>2</sub>O系における最小臨界データ (Pu同位体比 : 80/10/10)

Pu富化度	球半径 (cm)	球体積 (l)	円柱直径(cm)	平板厚さ(cm)	質量(Kg MOX)
2.0	14.0744E+00	11.6725E+00	20.4019E+00	11.3701E+00	25.0094E+00
5.0	12.0712E+00	7.3643E+00	17.1270E+00	8.8273E+00	10.7890E+00
6.0	11.8880E+00	7.0342E+00	16.8250E+00	8.5746E+00	9.4097E+00
10.0	11.5740E+00	6.4913E+00	16.2910E+00	7.9468E+00	6.1739E+00
20.0	11.0637E+00	-	5.6700E+00	7.4059E+00	3.3734E+00
30.0	-	-	-	-	2.3395E+00
40.0	-	-	-	-	1.7445E+00

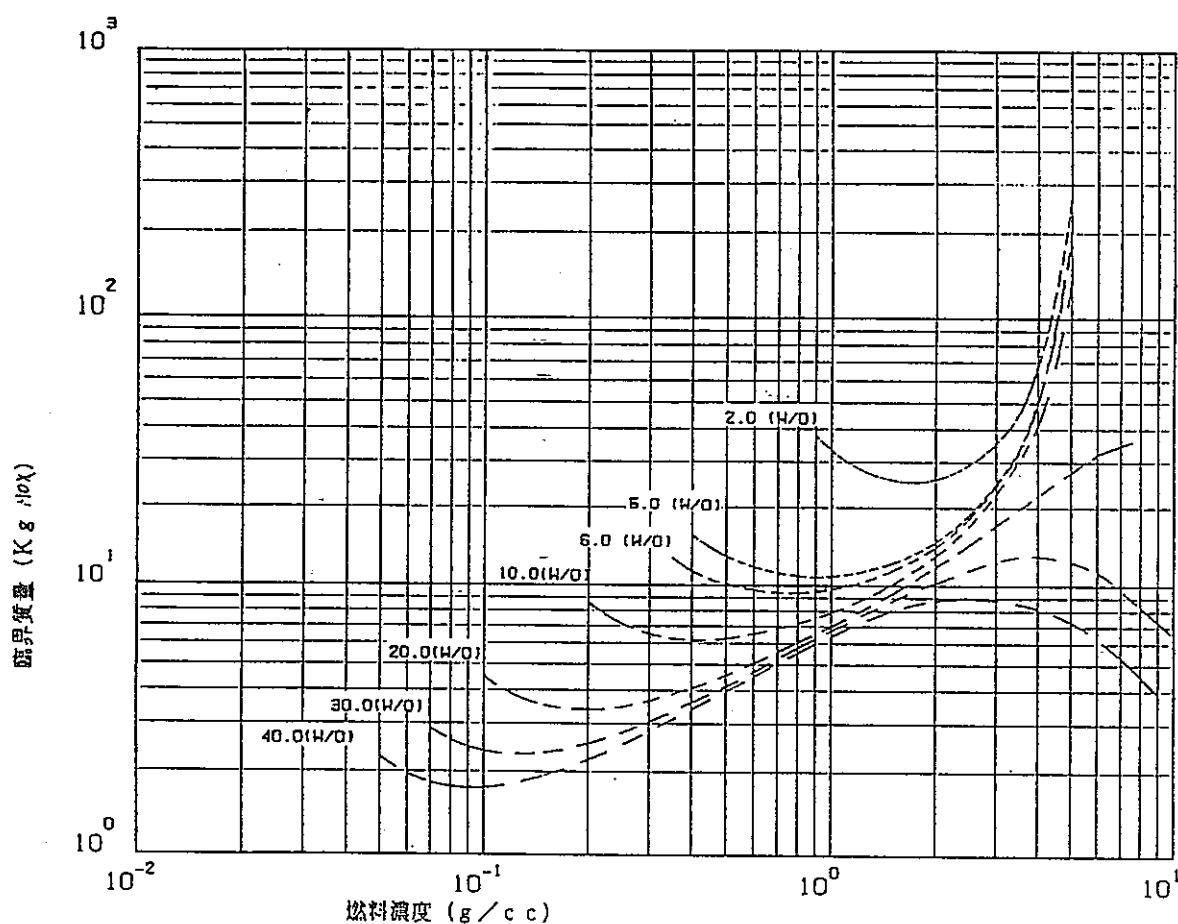


図-3 MOX-H<sub>2</sub>O系臨界質量 (Pu同位体比 : 80/10/10).

# 中性子しゃへい及び中性子被ばく管理に関する研究

東海・安全管理部

野尻一郎

東海・核燃料技術開発部

山本偉政

## I. 研究の概要

プルトニウム取扱量の増大及びプルトニウム同位体の高次化に対応したしゃへい対策及び被ばく低減化に資するため、以下の中性子しゃへいに関する研究を実施した。

- ① 各種中性子しゃへい材のしゃへい性能の評価を行い、施設の具体的な工程に敵した中性子しゃへい方法の検討を行う。
- ② 各種中性子しゃへい材、プルトニウム同位体組成等を考慮した実用的なしゃへい、被ばく評価手法の検討を行うとともに、しゃへい、被ばく管理のためのハンドブック作成を行う。
- ③ 中性子スカイシャイン線量当量率評価コードシステムの整備・評価を行う。

## II. 研究成果

### 1. 中性子しゃへい方法の検討

プルトニウム燃料製造工程における中性子被ばくの実態調査を行うとともに、具体的な被ばく低減方策を提案するため、新しいしゃへい材の候補と成り得る材質についてデータの収集を実施し、プルトニウム燃料加工施設を対象としたしゃへい計算用のライブラリを作成した。

#### (1) 「PSL-50」の作成

既存のしゃへい計算用核断面積ライブラリ（「DLC-23E」<sup>1)</sup>、「DLC-75」<sup>2)</sup>、「DLC-85」<sup>3)</sup>等）を参考に、プルトニウム燃料加工施設を対象とした新しゃへい計算用ライブラリ「PSL-50」を作成した。核種は、今後想定されるGd入りMOX燃料、回収ウラン燃料及びTRU核種（Np, Am）を含むMOX燃料、また新型しゃへい材の開発にも使用することができるよう選定した。

核断面積セットの作成に用いたソースデータは、「ENDF/B-IV」を基にした「VITA MIN-C」<sup>4)</sup>であり、中性子線25群、ガンマ線25群とし、これらを2次ガム線で結合した50群ライブラリセットである。群分割に際して、中性子線に関しては、「Hansen-Roach」の16群構造を基に、燃料体の中性子源強度が1～2MeV付近であることを考慮し、その部分を細分化した。ガム線に関しては、「DLC-23」の群構造を参考にして分割した。

#### (2) 「PSL-50」の検証

PuO<sub>2</sub>原料粉缶を用い、ガム線線量当量率を電離箱式サーベイメーターにより、また中性子線をレムカウンタにより測定し、「PSL-50」を検証した。缶表面からの距離に対する線量当量率の解析値は、図-1及び図-2に示すように実測値と良い一致を示している。

### 2. 実用的なしゃへい、被ばく評価方法の検討

実際の製造工程で使用が予想される各種同位体組成のプルトニウム燃料に対するしゃへい材のしゃへい効果を比較評価した。計算コードは、一次元輸送計算コード「ANISN」及び核データライブラリ「PSL-50」並びに線量評価には「ORIGEN-79」等を用いた。グローブボックス等に使用されているしゃへい材について、核燃料取扱施設の各工程での代表的な放射線源（18

種類)に対する放射線減衰率を求めた。これらの結果を基に、しゃへい設計、被ばく評価の簡便化を図るために、核燃料取扱施設で一般にしゃへい材及び構造材として用いられる物質について、その放射線減衰率をハンドブック形式にまとめ、またしゃへい解析方法をまとめたしゃへい解析マニュアルを作成した。

### 3. 中性子スカイシャイン線量当量率評価コードシステムの整備・評価

#### (1) コードシステムの概要

「SKYRARK」システムは、独立した4つの処理コントロールモジュール、一連の処理を人が介することなく制御するドライバールーチン、3種類の核断面積ライブラリ及び複数の計算コード群から構成されている。4つのコントロールモジュールの評価対象は、以下のとおりである。

- ① SKY 1 モジュール：エネルギー群縮約のための核断面積のFluxに対する感度解析
- ② SKY 2 モジュール：一連のスカイシャイン線量当量率の計算
- ③ SKY 3 モジュール：一次元のしゃへい解析
- ④ SKY 4 モジュール：二次元のしゃへい解析

#### (a) SKY 1 モジュール

このモジュールは、解析条件(体系、物質等)を考慮し、使用する断面積ライブラリの適切な縮約エネルギーレンジを決定するために断面積の感度解析を行うモジュールである。処理手順としては、まず「ANISN」コードを用い、随伴角度束(Adjoint Angular Flux)及び順方向角度束(Forward Angular Flux)、順方向スカラー束(Forward Scalar Flux)を算出する。次に「SWANLAKE」コードにこれらを入力として与えて感度解析を実施し、その結果を出力する。

#### (b) SKY 2 モジュール

このモジュールは、SKY 1 モジュールの結果(断面積の感度解析)を基に、スカイシャイン線量当量率の計算を行うモジュールである。計算手法としては、二次元S<sub>n</sub>輸送計算コードで発生する「Ray-Effect(放射効果)」減少を解消するために、「First Collision Source(初期衝突線源)法」を用いる。

処理手順としては、まず「ANISN」コードを用いて縮約断面積を作成し、この縮約断面積を用いて「DOT3.5」コードで天井壁面でのAngular Fluxを算出する。次に、このAngular Fluxを用いて、「GRTUNCL」コードでFirst Collision Sourceを計算し、これを線源として、「DOT3.5」コードで主辺監視区域でのScalar Fluxを計算する。その後、「DOSE」コードでScalar Fluxを線量当量率に変換する。

#### (c) SKY 3 モジュール

このモジュールは、「ANISN」コードによる通常の一次元しゃへい計算を行うモジュールである。処理手順は、「ANISN」コードによりScalar Fluxを計算し、「DOSE」コードによりそれを線量当量率に変換する。

#### (d) SKY 4 モジュール

このモジュールは、「DOT3.5」コードによる通常の二次元しゃへい計算を行うモジュールである。処理手順は、まず「ANISN」コードを用いて縮約断面積を作成し、この断面積を用いて、「DOT3.5」コードによりScalar Fluxを計算し、「DOSE」コードによりそれを線量当量率に変換する。

## (2) 精度評価

個々の計算コード、ライブラリ及び計算手法の信頼性は、今までの使用経験から、十分確認されている。そこで、コードシステム全体としての精度を確認するために、国内外において報告されているスカイシャインベンチマークデータ（中性子線：1件、ガンマ線：2件）を用いて評価を実施した。以下に3件のベンチマークデータの概要及び実施した評価結果並びに考察について述べる。

### (a) 高速中性子源炉「弥生」からのスカイシャイン線量当量率評価

#### ① 実験の概要

スカイシャインの実験は、東京大学原子力工学研究施設高速中性子源炉「弥生」（93%金属燃料約2.8kg：炉出力2kW空冷）において実施された。実験は、建屋の炉室天井（高さ12.5m）の実験孔（直径60cm）より、垂直方向に漏洩した高速中性子が大気中で散乱され、この中性子スカイシャイン線量当量率を地上1.5mで測定したものである。

#### ② 評価結果及び考察

実験値及び本評価の計算結果を表-1及び図-3に示す。

計算結果から、中性子スカイシャイン線量当量率の計算値は線源に近い位置では実験値と良い一致を示している。しかし、線源からの距離が遠くなるに従い、過大評価の傾向にある。これは、線源である中性子ビームの放出角度を、実験では天井の引き出し孔より垂直方向に $\theta = 2.7^\circ$ 大気中に放出しているが、評価では天井引き出し孔上部に線源領域（1cm<sup>3</sup>）を設け、引き出し孔表面より180°等方に放出していると仮定したため、地面との散乱を過大評価しているためと考えられる。

### (b) Radiation Research Associates (RRA) 野外実験におけるスカイシャイン線量当量率評価

#### ① 実験の概要

この実験は、米国のRadiation Research Associates (RRA) が米国カンザス州立大学の野外しゃへい実験場にて実施した。線源は、<sup>60</sup>Co点状線源で、強度は公称4,000Ci、230Ci及び10Ciの3種類であり、それぞれの線源を用いて実験が行われた。

#### ② 評価結果及び考察

実験値(4,000Ci)及び本評価の計算結果を表-2及び図-4に示す。

計算結果から、<sup>60</sup>Coのガンマ線スカイシャイン線量当量率の計算値は実験値と良い一致を示している。

### (c) 炉外使用済燃料貯蔵施設からのスカイシャイン線量当量率評価

#### ① 計算の概要

この計算は、米国のORNL (Oak Ridge National Laboratory) が行った炉外使用済燃料貯蔵施設を対象としたスカイシャイン線量当量率評価である。

計算条件のうち、線源条件としては、使用済燃料貯蔵プール（長さ=51.28、幅=25.38m、高さ=4.27m）中の冷却水がないものとし、線源としては、燃焼度40,000MWd/Mt、冷却期間1年の使用済燃料からのガンマ線としている。

#### ② 評価結果及び考察

計算値及び本評価の計算結果を表-3及び図-5に示す。

計算結果より、使用済燃料のガンマ線スカイシャイン線量当量率の計算値はORNLの計算結果と良い一致を示している。

### (3) まとめ

今回の「SKYLARK」システムを開発した結果、以下のような効果が得られた。

- (a) 従来は、1つの処理が終了するたびに次の処理のための入力データを作成していたが、入力データを1つにまとめ簡略化したことと、ドライバールーチンが一連の処理の制御を行うことにより大幅な省力化が図れた。また、「SKYLARK」システムにより、スカイシャイン線量当量率評価に精通している専門家以外の人でも容易に評価を行うことが可能となった。
- (b) ベンチマークデータに基づく精度評価の結果、ガンマ線、中性子線ともに報告値と良い一致を示しており、本システムの妥当性を確認できた。このことにより、安全裕度の定量的評価が可能となった。さらに、本システムは、核燃料施設の安全性に関する基準の策定及び安全性向上に資するものと思われる。

### 文 献

- 1) DLC23 /CASK : 40 Group Coupled Neutron and Gamma-ray Cross Section Data, (1974)
- 2) DLC75 BUGLE-80, Coupled 47 Neutron, 20 Gamma-ray, Ps-Cross Section library for LWR Shielding Calculations by the ANS 6.1.2 Working Group on Multigroup Cross Sections, (1980)
- 3) DLC-85 22Neutron, 18Gamma-Ray Group Cross Section Libraries ANISN Format for Nuclear Fuel Cycle Shielding Calculations, QRNL
- 4) 17Neutron, 36 gamma-Ray Group Cross Sections in AMPX and CCCC Interface Formats for Fusion and LMFBR Neutronics, ORNL/RSIC-37(ENDF-296)

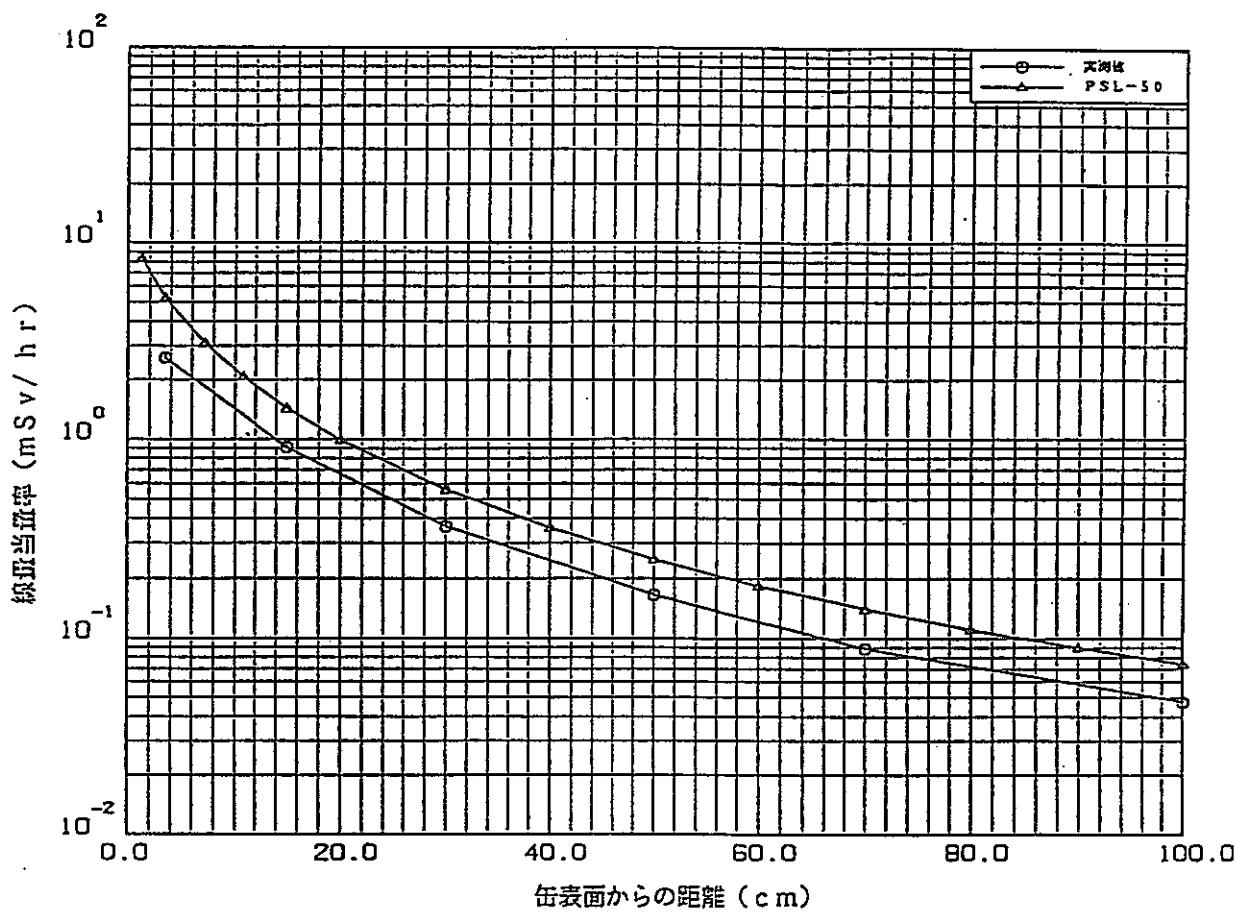


図-1 ガンマ線量当量率の減衰曲線

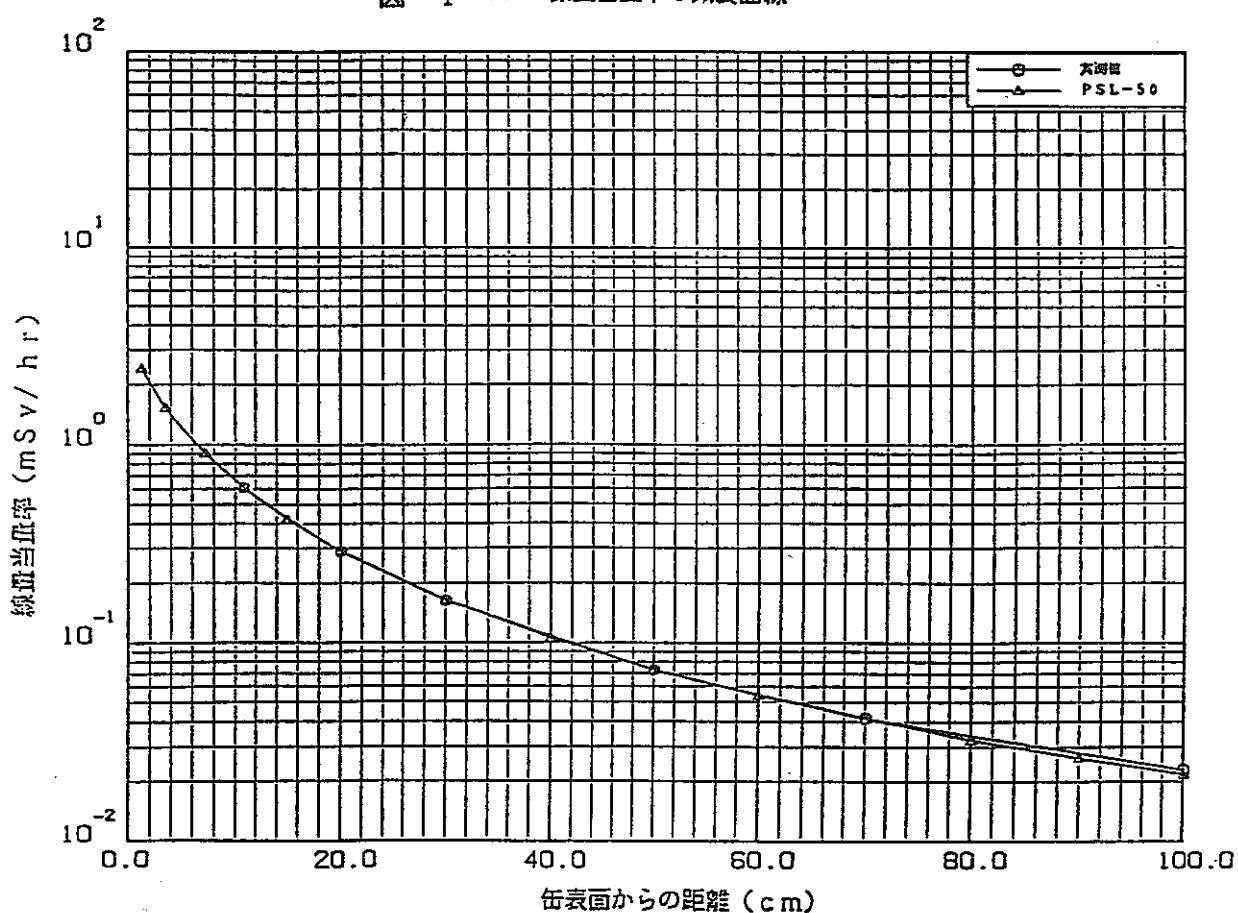


図-2 中性子線量当量率の減衰曲線

表-1 高速中性子源炉「弥生」からの中性子  
スカイシャイン線量当量率

(評価位置: 地上約1.5 m)

距離 (m) (内に実験組)	SKYLARK (mrem/hr)	実験値* (mrem/hr)
31.9 ( 31.2 )	1.54845E-2	1.574E-2
104.1 ( 107.9 )	3.66103E-3	3.245E-3
198.5 ( 195.9 )	1.02163E-3	7.887E-4
327.9 ( 292.5 )	2.77448E-4	2.029E-4
401.5 ( 443.0 )	1.50426E-4	5.227E-5
507.2	6.36107E-5	
604.5 ( 644.6 )	2.58478E-5	9.674E-6
723.0	1.02972E-5	
801.2	5.87685E-6	
898.8	3.21906E-6	
1027.7 ( 999.6 )	1.43247E-6	6.454E-7

\*グラフからの読み取り値

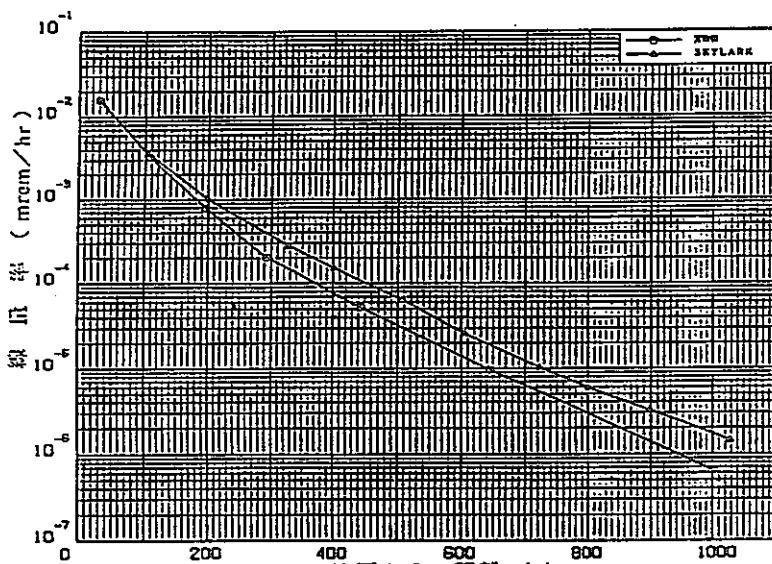


図-3 高速中性子源炉「弥生」からの中性子  
スカイシャイン線量当量率

表-2  $^{60}\text{Co}$  (4,000Ci)線源からのガンマ線  
スカイシャイン線量当量率

(評価位置: 地上約1 m)

距離 (m) (内に実験組)	SKYLARK (mR/hr)	実験値* (mR/hr)
57.0 ( 50.0 )	7.34209E-1	1.0 E + 0
104.1 ( 100.0 )	2.61977E-1	3.0 E - 1
198.5 ( 200.0 )	5.86504E-2	5.0 E - 2
327.9 ( 300.0 )	1.15735E-2	1.3 E - 2
401.5 ( 400.0 )	5.25780E-3	4.0 E - 3
495.9	1.64965E-3	
604.5	4.84942E-4	

\* 文献からの読み取り値

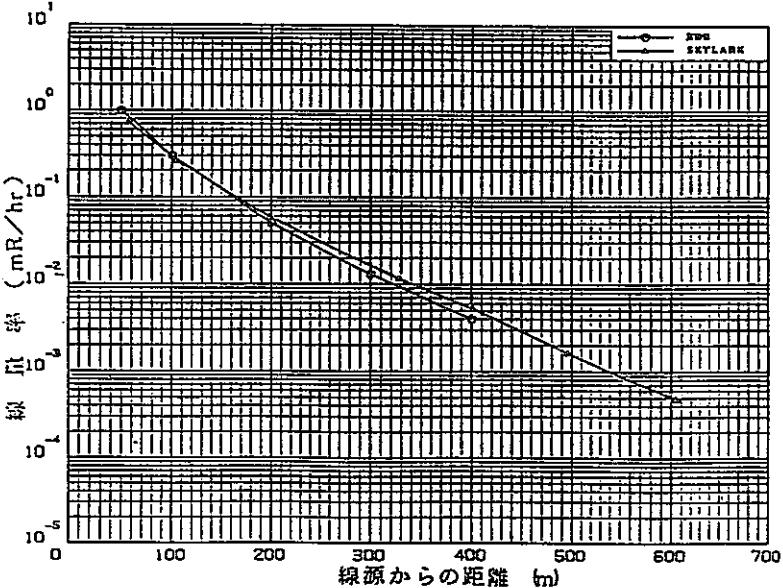


図-4  $^{60}\text{Co}$  (4,000Ci)線源からのガンマ線  
スカイシャイン線量当量率

表-3 使用済燃料貯蔵施設からのガンマ線  
スカイシャイン線量当量率

(評価位置: 地上約1.5 m)

距離 (m) (内にORNL)	SKYLARK (mR/hr)	ORNL (mR/hr)
57.0 ( 59.5 )	9.10074E+1	9.08 E + 1
104.1 ( 121.5 )	4.07358E+1	3.37 E + 1
198.5 ( 200.0 )	1.17566E+1	1.32 E + 1
327.9 ( 316.5 )	1.30402E+0	1.55 E + 0
401.5 ( 400.0 )	1.81839E+0	1.74 E + 0
495.9 ( 505.7 )	7.12922E-1	6.07 E - 1
604.5 ( 625.3 )	2.61482E-1	2.02 E - 1

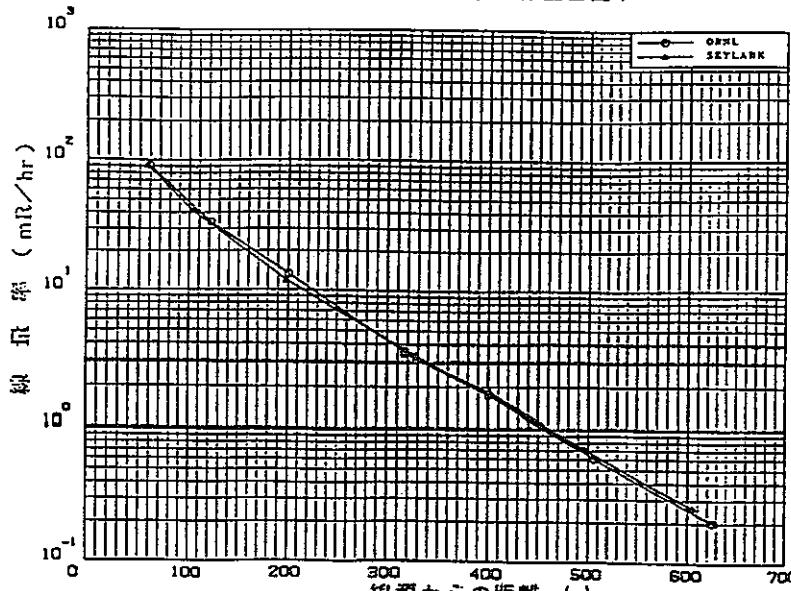


図-5 使用済燃料貯蔵施設からのガンマ線  
スカイシャイン線量当量率

# インライン測定技術の開発

東海・再処理技術開発部 加藤木賢

## I. 研究の概要

従来の核燃料施設においては、主に手動のオフラインの分析手法が用いられている。そこでプロセスセル又はこれに類似する設備内にある塔槽類、配管に対して測定センサーを直接附加して分析を行うインラインの機器分析法を開発することにより作業員の被ばくの低減と併せて、廃棄物の低減、作業員の誤操作の排除をはかることを目的とし、インライン測定を行うための装置及び対象工程毎にインライン化するための方法を確立するため、以下の項目について測定技術の開発を実施した。

1. Pu, Uの分析
2. 酸濃度等の分析
3. 測定装置の保守技術
4. 廃液中のγ核種の分析
5. オフガスの分析
6.  $\text{Pu}^{3+}$ ,  $\text{Pu}^{4+}$ 濃度の分析

## II. 研究成果

### 1. Pu, Uの分析

吸光光度分析システムは、再処理抽出工程液、水相中または有機相中のウラン、プルトニウム及び硝酸濃度を同時分析できる可能性があり非常に有用な手法である。そこで吸収スペクトル（図-1）を測定し、そのスペクトルを解析することにより、ウラン、プルトニウム及び硝酸濃度を同時定量するインライン吸光光度分析法について検討、評価するとともに、その適用性を確認した。<sup>3)</sup>

インライン吸光光度分析システムは、吸光度測定用フローセル、光ファイバー、分光光度計及びデータ処理装置から構成されている。（図-2）この試験装置を使用して、ウラン、プルトニウム及び硝酸濃度をパラメーターにとり、水相、有機相各々のウラン溶液、プルトニウム溶液及びウラン・プルトニウム混合溶液について、複数の波長位置での吸光度を測定し、吸光度からウラン及び硝酸濃度、プルトニウム及び硝酸濃度又はウラン、プルトニウム及び硝酸濃度を定量するための関係式を確立した。

(1) 各溶液系について、吸光度と各濃度との関係式を求めた。また、その関係式の各係数の最適値を得た。

$$\begin{aligned} \cdot \text{ウラン系} & : A_i = a_{i1} + a_{i2}U + a_{i3}H + a_{i4}U^2/H \quad \dots (1) \\ \cdot \text{プルトニウム系} & : B_i = b_{i1} + b_{i2}Pu + b_{i3}HPu + b_{i4}H^2Pu \quad \dots (2) \\ \cdot \text{ウラン, プルトニウム混合系} & : C_i = A_i + B_i + c_{i1}UPu + c_{i2}HUPu \quad \dots (3) \end{aligned}$$

ここで、  $A_i, B_i, C_i$  = 波長  $i$  の吸光度       $a_{i1} \sim a_{i4}$   
 $U, Pu$  = 各濃度 ( $g/\ell$ )       $b_{i1} \sim b_{i4}$  } = 各係数  
 $H$  = 硝酸濃度 (N)       $c_{i1}, c_{i2}$  }

- (2) 測定精度の向上を図るため、多波長測定法においても関係式（(1)～(8)）が適用できることを確認した。また、測定対象試料溶液の吸光度を測定し、各元素濃度（Pu, U）及び硝酸濃度を迅速に精度良く求めるため、多波長解析プログラムを作成した。

(3) 本関係式を適用することにより、水相系については、ウラン又はプルトニウム濃度が $10\text{ g/l}$ 以上であれば $\pm 5\%$ の誤差内で測定できる。一方、硝酸濃度については、 $1\text{ N}$ 以上であれば、 $\pm 15\%$ の誤差内で測定できる。有機相については、プルトニウム濃度が $5\text{ g/l}$ 以上であれば $\pm 35\%$ 、ウラン濃度が $10\text{ g/l}$ 以上であれば $\pm 5\%$ の誤差内で測定できるしかし、硝酸濃度については、精度が十分でなかった。

(4) 再処理施設内でのインライン分析への適用性について、本試験装置のグローブ・ボックス内の各種性能試験及び作動試験により、有機相中の酸濃度を除いて適用可能なことを確認した。

## 2. 酸濃度等の分析

再処理抽出工程液、精製プルトニウム又はウラン溶液中の密度と導電率を計測し、これらの計測値からウランと硝酸濃度又はプルトニウムと硝酸濃度を定量するインライン分析法について試験するとともに、その適用性を確認した。<sup>2)</sup>

本法の開発のため、密度はページ式差圧検出法により、また導電率は白金黒電極法により測定するオンライン試験ループを作成した。（図-3）ウラン、プルトニウム及び硝酸濃度及び液温をパラメータにとり、密度、導電率及び液温を測定し、密度に対するウラン濃度及び硝酸濃度又はプルトニウム濃度及び硝酸濃度との関係式を、また、導電率に対するウラン濃度及び硝酸濃度又はプルトニウム濃度及び硝酸濃度との関係式を求めた。これらの関係式を用いて密度、導電率からウラン、プルトニウム及び硝酸を定量する手法を確立した。

- (1) 各溶液系について、密度及び導電率からウラン濃度と硝酸濃度又はプルトニウム濃度と硝酸濃度との関係式を定め、また、その関係式の各係数の最適値を得た。

$$\bullet \text{U}-25^\circ\text{C換算密度式} : \rho_{25} = C_0 + C_1 H + C_2 U \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (1)$$

• U-25°C換算導電率式 :  $L_{25} = d_0 + d_1 H + d_2 U + d_3 HU + d_4 H^2 + d_5 H^2 U \dots \dots \dots \quad (1)$

•  $Pu - 25^\circ\text{C}$ 換算導電率式 :  $L_{25} = d_0 + d_1 H + d_2 P_{11} + d_3 HP_{11} + d_4 H^2 + d_5 H^2 P_{11} \dots \dots \dots \quad (1)$

ここで、 $\rho_{25}$ ：25℃時の密度（g/cm<sup>3</sup>） P<sub>u</sub>：プルトニウム濃度（g/l）

$L_{25}$ : 25°C時の導電率 (S/cm)  $c_0 \sim c_2$ ,  $d_0 \sim d_5$ : 係 数

H : 硝酸濃度 (N) U : ウラン濃度 (g/l)

また、この関係式より求めた、液温 25°Cにおける密度及び導電率から網目校正グラフ(図-4)を作成した。

- (2) 測定対象試料溶液の密度、導電率及び液温を測定し、関係式（(1)～(2)）より、各濃度を求めるための解析プログラムを作成した。
  - (3) 本関係式を適用することにより、ウラン又はプルトニウム濃度が  $10 \text{ g/l}$  以上であれば  $\pm 5\%$  の誤差内で測定できる。また、硝酸濃度についても  $0.5 \text{ N}$  以上であれば  $\pm 5\%$  の誤差内で測定でき、工程管理分析に十分適用可能なことを確認した。
  - (4) 再処理施設内でのインライン分析への適用性について、本試験装置のグローブ・ボックス内の各種性能試験及び作動試験により十分適用可能なことを確認した。

### 3. 測定装置の保守技術

再処理施設において、セル及びグローブ・ボックス内分析装置の保守・補修、交換等の技術開発を図ることは装置の信頼性向上及び作業員の被ばく量低減等の観点から重要である。このため検出部とそれに係わる必要最小限のものをセルあるいはグローブ・ボックス内に設置することとし、計測部等はセルあるいはグローブ・ボックス外に設置し、セル内等での分析装置の保守、交換が極力少なくまた、交換も容易な分析装置の開発を進めた。

例えば吸光光度分析システムでは、セル内には石英製のフローセルのみとし、セル外の光源部、受光部とフローセル部との光の伝送は、光ファイバーを介して行うようにした。また、セル内のフローセル、光ファイバーとの脱着等がマニュプレーターで容易に操作できる構造とした。これら遠隔保守・校正等の技術開発は各種インライン分析装置の評価試験等より抽出した問題点の改良により今後も保守技術の開発を進める。

### 4. 廃液中の $\gamma$ 核種の分析

再処理施設の中・低レベル廃液中に含まれる $\gamma$ 核種を放射能測定によるインライン分析装置開発として、各種評価試験を実施した。<sup>4)</sup>

本分析装置は、エアリフトにより各貯槽からサンプリングされた廃液試料をセル内に設けられたサンプリングポットに集められ、高低差により廃液 $\gamma$ 線インラインモニタ試料容器に送られ、 $\gamma$ 線検出器にて測定するものである。計測情報は、 $\gamma$ 線インラインモニタ監視盤に伝送され、放射能濃度を表示する。（図-5  $\gamma$ 核種インラインモニタ概念図）

本分析装置のインライン化を図るために試料容器内壁面に付着する放射能が廃液中 $\gamma$ 核種濃度測定に影響を与えることの少ないNaI(Tl)検出器を組合せたインラインモニタ試料容器の形状、コリメーターの形状及び試料容器の洗浄方法等について検討し、インライン分析装置として必要なデータを取得した。

- (1) 試料サンプリング系及び計測系によるシステムの構成及び施設内配置を検討し、検出器として2インチNaI検出器を選択し、インラインモニタ試料容器の形状（図-6）及び検出器の配置を決定した。
- (2) 試料容器下面より廃液を入れ、試料容器の途中に設けられた配管を通してオーバーフローさせ、液面が試料容器上面内壁と接触しないように保ち、放射性汚染を防止する機能をもつフローセル型試料容器が有効であることがわかった。
- (3) 試料容器の洗浄方法として、加圧式洗浄ノズルの形状及び洗浄配管の検討を行った。また1N-NaOHによる洗浄が、再処理施設の除染実績を考慮して、妥当であることがわかった。
- (4) 検出器の校正方法として、電気信号による方式及び校正用線源による方法を比較検討した結果、線源による方式は廃液自体からの計数率寄与が大きく、線源からの寄与分との弁別が困難で $\gamma$ 線の遮へいを置かないと線源自体のバックグラウンドの上昇を招くことや、取扱いの安全性からも電気信号方式が妥当であることがわかった。

### 5. オフガスの分析

再処理試験施設の燃料溶解工程等で発生するオフガス中のヨウ素-129をインラインで測定することは、燃料溶解時におけるオフガス挙動の把握及び安全管理上重要である。本測定装

置は、溶解工程等で発生するオフガス成分中に含まれるヨウ素-129を吸着させるヨウ素補集材とヨウ素-129からの低エネルギー $\gamma$ 線を測定するホスウィッチ型検出器から成る。

(図-7)

本研究では、フィルタ状T E D A添着炭素纖維フィルターを補集材として選定し、放射性ヨウ素の捕集及び測定が連続して行えるインライン分析装置を試作し、装置の性能評価試験、妨害核種等の影響試験を行い、次に示す成果を得た。

- (1) フィージビリティスタディを行い濾紙状フィルターを使ったインライン分析装置の概念を固めた。
- (2) ヨウ素補集材は4種類について、物性試験及びヨウ素吸着性試験を行い、インライン分析装置に使用可能な2.5 wt% T E D A添着活性炭纖維フィルターを選定した。
- (3) 本装置の性能試験の結果、無機ヨウ素について、98%以上の捕集効率が確認された。
- (4) 検出部はヨウ素-129の低エネルギー $\gamma$ 線を効率よく、測定できるホスウィッチ型検出器(図-8)及び演算システムを試作し、検出器の使用電圧、測定時間や波高弁別器の測定条件など最適な設定値を決定した。

## 6. $Pu^{3+}$ , $Pu^{4+}$ 濃度の分析

再処理試験施設では分配工程中のウラン及びプルトニウムの原子価測定は、プロセス内の抽出挙動の把握、プロセス運転の最適条件及び制御を行う上で重要となる。工程溶液中のウラン及びプルトニウムの原子価は経時変化が著しい。このため原子価別濃度を正確に分析するには試薬を必要とせず試料を直接実時間で分析可能なフロークロメトリ法を選定し、再処理工程等への適用性を検討した。<sup>11)</sup>

本インライン分析システムは試料溶液を通流させながら定電位電解を行い、その時に流れる電気量から測定イオン濃度を求める手法であり、試料送液部、フロークロメトリによる検出部及び測定制御部から構成されている。(図-9) 本検出器の性能試験及びインライン分析装置の確証試験を行い、次に示す成果が得られた。

- (1) 電解隔膜によって形成される被検液流路内に作用電極(炭素纖維)及び流路外に対極(白金)と参照電極から成る2段フロー型式の検出器を開発した。(図-10) 本検出器は、U(VI)及びPu(IV)を同時に測定できることを確認した。
- (2) 本分析装置の試験からU(VI)及びPu(IV)測定時の酸化還元電位、電位走査速度、測定時間、試料流量、硝酸濃度及び作用電極の洗浄条件等を決定した。
- (3) Pu(IV)を模擬したFe(III)及びU(VI)の混合溶液における各原子価別濃度を測定した結果、Fe(III)及びU(VI)の検出効率は約100%であり、工程分析に適用可能などを確認した。
- (4) 本装置をグローブ・ボックス内に設置し、硝酸系の試料溶液中に共存するU(VI)及びPu(IV)をインラインで測定し、吸光光度分析法による分析値と比較した。その結果U(VI) 0.05~15 g/l, Pu(IV)は0.05~1.5 g/lの濃度範囲において±10%以内で一致しており、インライン分析装置として、十分な性能を有することを確認した。

## III. 結 言

開発したインライン分析装置により良好な試験結果が得られたことで、作業員の被曝及び廃棄

物発生量が低減され、分析上の誤操作も排除される。これらの技術は今後リサイクル機器試験施設等において実証を進め、施設の安全運転向上のため本技術を適用していく。

## 文 献

- 1) 秋山, 和田, 市毛, 他 : インラインPu, U原子価分析用フロークローメーターの開発, 日本原子力学会(1987年10月) M51
- 2) 富樫, 大内, 田山, 他 : 密度-導電率組合せ法によるウラン, プルトニウム, 酸濃度インライン分析, 日本原子力学会(1990年10月) L39
- 3) 富樫, 田山, 加藤木, 他 : 吸光光度法によるウラン, プルトニウム, 酸濃度のインライン分析, 日本原子力学会(1991年3月) M20
- 4) 秋山, 和田, 市毛, 他 : 汚染抑制方式による廃液中の全γモニタの開発, 日本原子力学会(1987年4月) J35

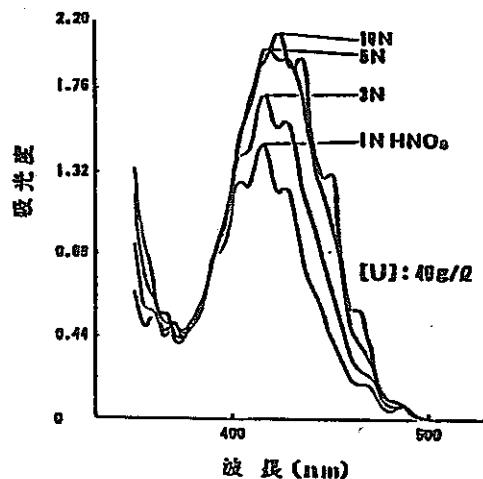


図-1 酸濃度変化によるウラン63の吸収スペクトル

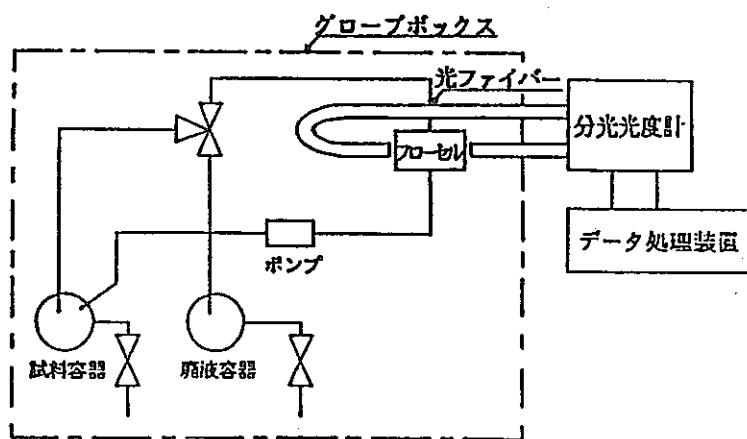


図-2 試験装置構成

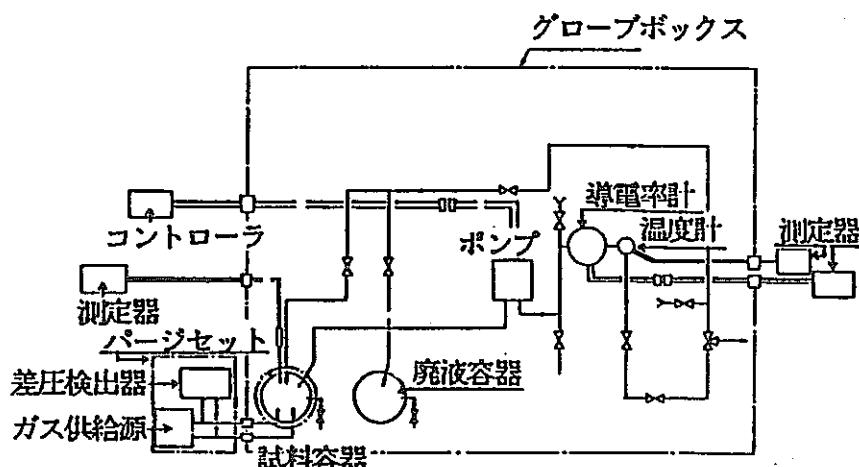


図-3 試験ループ及び計測器系統図

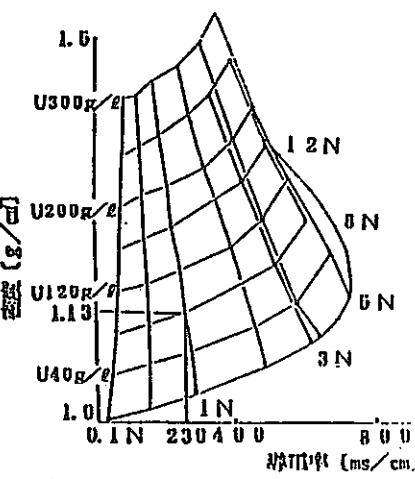


図-4 硝酸ウラニルの相図校正グラフ

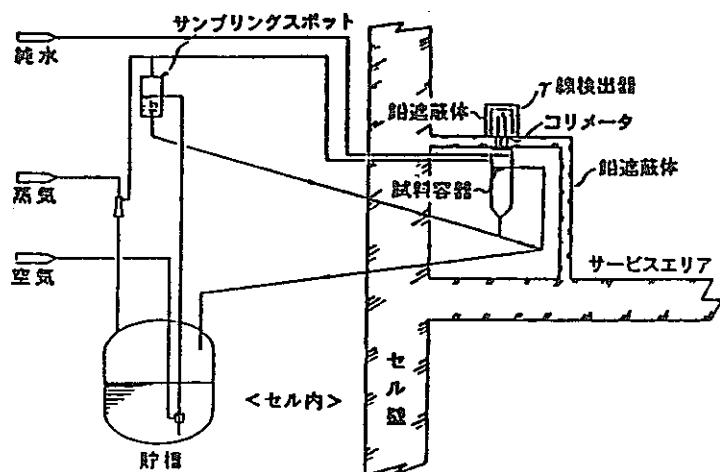


図-5 ア核種インラインモニタ概念図

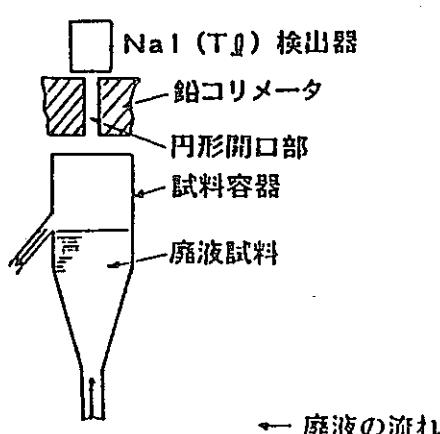
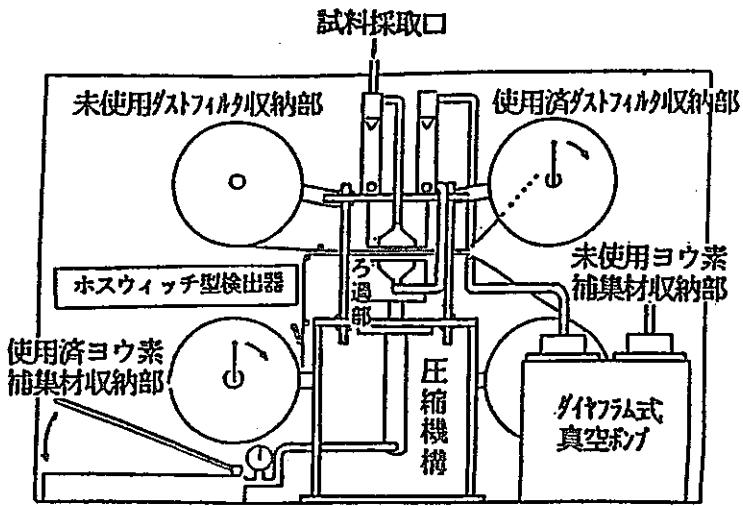


図-6 インライン試料容器の基本構成



#### 図-7 試験装置構成

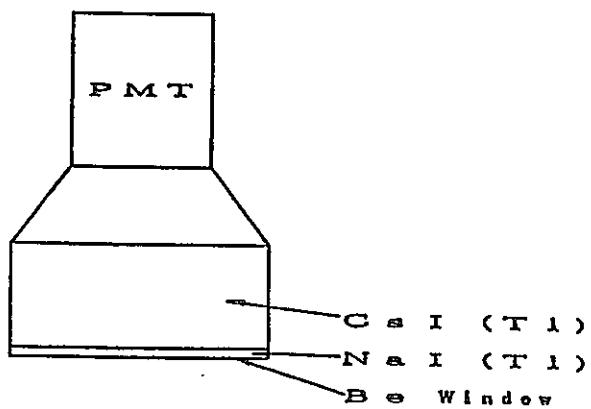


図-8 ホスウィッチ型検山器の概要

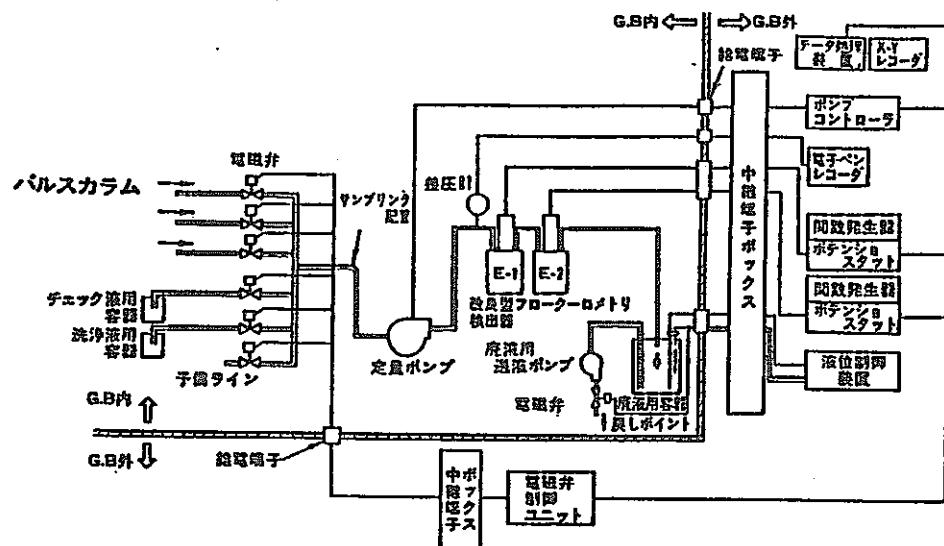


図-9 インライン原子炉分析装置構成図

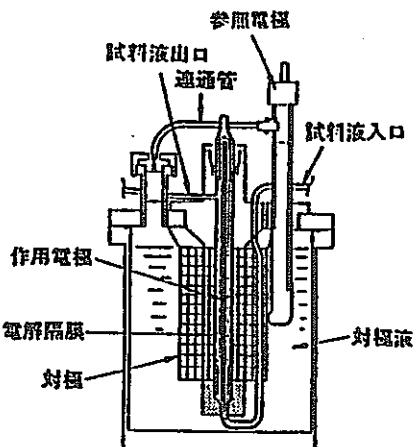


図-10 フローカーロメトリ検山器

## センサー及び耐放射線性材料の研究

東海・再処理工場技術開発部 山本隆一

### I. 研究の概要

再処理関連施設のセル内設置機器類保守の簡略化をめざした大型遠隔セル内には、両腕型バイラテラルサーボマニピレータ（以下BSM）等で代表される遠隔保守機器が設置されている。これらの遠隔保守機器に使用される、センサー・光通信装置・ITV等には通常環境下で使用される機器と比較し、放射線による劣化の少ないと（耐放射線性）が要求される。

再処理関連施設で使用するためのBSMの実用化のために、センサー、光通信装置、ITVカメラの耐放射線性化を行い、これらの機器が集積線量で $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^6 \text{ R}$ ) 以上の放射線照射（大型遠隔セル内で約1年分の集積線量に相当）に耐える事を試験で確認した。また、これらの機器に使用される部品で最も放射線劣化の激しい半導体部品の耐放射線性向上のために化合物半導体素子及び素材の照射試験を行い、化合物半導体素子が従来のシリコン材料の素子に比べ耐放射線性に優れていることを確認した。

照射試験によって得られた部品・材料の放射線劣化のデータは、将来のセル内機器開発のための貴重な情報源と成ることから、「耐放射線性機器・材料データベース」を構築しデータベースに蓄積するとともに、文献からの材料・部品の放射線による劣化データの蓄積を行った。

本報告では、BSMシステムのための光通信装置及びセンサーの開発の概要とその結果について述べる。

### II. 研究成果

#### 1. BSMの概要

BSMは、作業員に代わり放射線環境下で保守・点検作業を行うために開発されたロボットである。図1にBSMのスレーブアームの鳥瞰図を示す。

本BSMの開発に当たっては、スレーブアームを含むセル内設置部分が長時間放射線環境下に置かれても性能の劣化が最小限に抑えられる様にするために、その材料、部品の選定に関しては耐放射線性の実績を有する物かあるいは照射試験により耐放射線性が確認された物を選定した。特に、光通信装置やセンサー回路等の部位は、一般的に放射線劣化しやすいと言われる半導体素子を多用しているため、耐放射線性化の開発を実施した。（図2に光通信ターミナルのブロック図を示す。）

#### 2. BSM用光通信装置の開発

BSMはスレーブアームからのセンサー信号及びトランスポータと呼ばれるスレーブアーム移動装置からのセンサー信号を合わせて約150本の信号線を使用している。このような多数の信号を通信するために光ファイバーを用いた通信装置の耐放射線性化を実施した。

##### (1) 光ファイバー

光ファイバーは、コアに純粋石英を、クラッド材にフッ素ドープ石英を使用し、S I型（Step

Index Type) と G I 型 (Graded Index Type) の 2 種類を供試体として試作した。試作した光ファイバーは照射試験を行い、伝送損失の増加を測定した。

S I 型ファイバーの伝送損失増加は  $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) 照射後、波長  $1.3 \mu\text{m}$  の場合で  $87 \text{ dB/km}$  波長  $0.85 \mu\text{m}$  の場合で  $120 \text{ dB/km}$  であった(図 3 参照)。伝送損失増加の波長依存性は G I ファイバーについても同様の傾向を示し、波長の長い光の方が伝送損失の増加は少ないことが分かった(図 4 参照)。G I 型ファイバーの伝送損失の増加量は波長  $1.3 \mu\text{m}$  の場合で  $123 \text{ dB/km}$  であり、S I 型ファイバーの方が耐放射線性に優れている事が分かった。

S I 型光ファイバーについては、別途高集積線量での照射試験を行い、 $2.06 \times 10^5 \text{ C/kg}$  ( $8 \times 10^8 \text{ R}$ ) 照射後の伝送損失の増加量は約  $140 \text{ dB/km}$  であった。

本試験では、照射終了後もファイバーに光を通すことにより伝送損失が回復する事を確認した。この回復は光源によるフォトブリーチング効果によるものである。光源の波長により回復の程度が異なるのは、光源の出力が異なるためである。

(波長  $1.3 \mu\text{m}$  :  $1 \mu\text{W}$ ,  $0.85 \mu\text{m}$  :  $12 \mu\text{W}$ )

## (2) 光伝送ターミナル

光ターミナルの送信側機器は放射線環境下に置かれるため、耐放射線性を要求される。この様な環境で使用できる送信機を開発するために数種類の電子デバイスの照射試験を行い、耐放射線性に優れるデバイスを選択した。電子デバイスの内、最も高い集積度である A D コンバータを除く電子デバイスに  $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) の耐放射線性が有ることを確認した。A D コンバータについては、放射線の影響を  $1/10$  程度にする遮蔽体を設けることで、 $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) の耐放射線性を担保した。この結果、集積線量で  $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) までの耐放射線性を有する光ターミナル送信機を開発することができた。

## (3) その他の機器

実施設への光通信システム適用のために光ケーブル、遠隔着脱式光コネクタの試作・照射試験を行い、 $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) までの耐放射線性を確認した。また、遠隔での操作を必要とする部品については遠操作性試験を行い遠隔保守性を確認した。

# 3. B S M 用センサーシステムの開発

## (1) 位置検出回路

B S M は、その位置検出のためのセンサーとしてポテンショメータを用いている。ポテンショメータは高集積線量 ( $\approx 2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ )) での照射試験を行い、耐放射線性に優れている事を確認した。

図 5 に位置検出回路のブロック図を示す。ポテンショメータの出力は、ボルテージフォロア回路を通じて光通信装置へ入力される。この際、放射線によるトランジスタの増幅率の低下により電源電圧が変動し、結果として位置検出回路の出力が変動するという現象が見られた。対策として、電源回路の電力増幅用トランジスタを複数のトランジスタでカスケード接続し、高い増幅率を得ることでトランジスタ単体の増幅率の低下を補償した。対策実施後、再度照射試験を行い、電源電圧の変動及び位置検出回路の変動が減少していることを確認した。

対策実施後的位置検出回路の出力を図 6 に示す。

位置検出回路用電源回路の電力増幅用トランジスタの放射線劣化の影響をなくすために、トランジスタのカスケード接続を行うことで、 $2.58 \times 10^4 \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) の放射線を照射

されても出力変動の少ない位置検出回路が実現できた。

## (2) トルク検出回路

BSMはマスター・アームにかかる力を操作員に伝えるためにロードセルを用いたトルク検出回路を有している。図7にトルク検出回路のブロック図を示す。

本回路では放射線の影響により、位置検出回路と同様の電源回路の電圧変動と差動増幅器にオフセット出力が発生する事が判明した。

電源電圧の変動に対しては、位置検出回路と同様の電力増幅用トランジスタをカスケード接続した電源を用いることで対処した。差動増幅器に関しては電気的なメモリーを持つ補償回路を付加した。補償回路は、オフセット量を電気的なメモリーに入力し増幅器の出力から差し引くことで、オフセットの発生を低減する機能を有している。補償回路を付加する前後のトルク検出回路の放射線による出力変動を図8に示す。トルク検出回路の電源回路にトランジスタのカスケード接続を採用し、差動増幅回路にオフセットを補償するためのメモリー回路を設けることで、 $2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$  ( $10^8 \text{ R}$ ) の放射線を照射されても出力変動の少ないトルク検出回路が実現できた。

## 4. 成果の反映

本研究で開発した光通信装置及び位置検出回路・トルク検出回路により大型セルで使用可能なBSMシステムが完成できた。このことにより、大型セル内への作業者の立ち入りは全く不要となり、セル内作業に伴い発生が予測される放射性廃棄物の大幅低減と作業員の被曝低減化に大きく寄与できた。当該成果は既に動燃事業団東海事業所に建設中の東海ガラス固化技術開発施設に反映されている他、現在設計中のリサイクル機器試験施設へも適用されることとなっている。

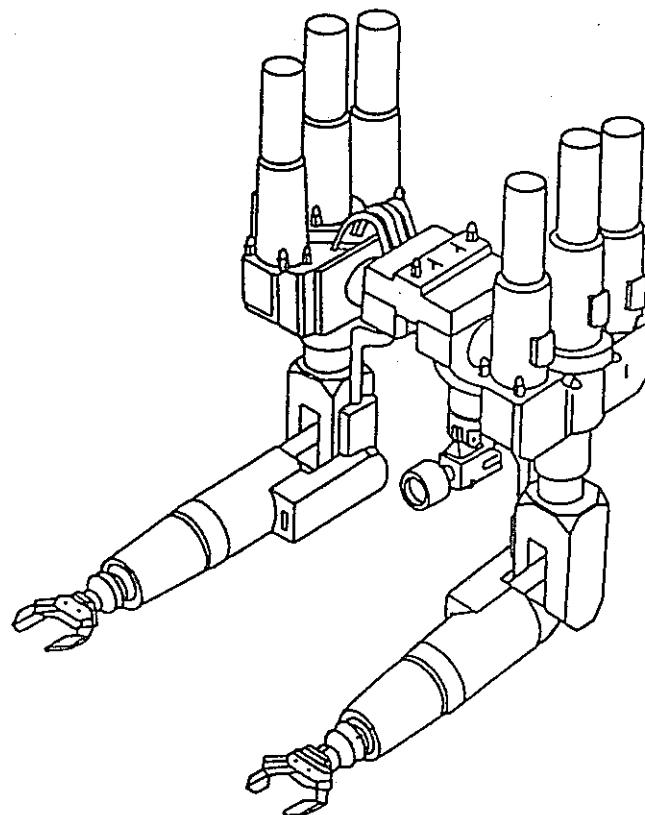
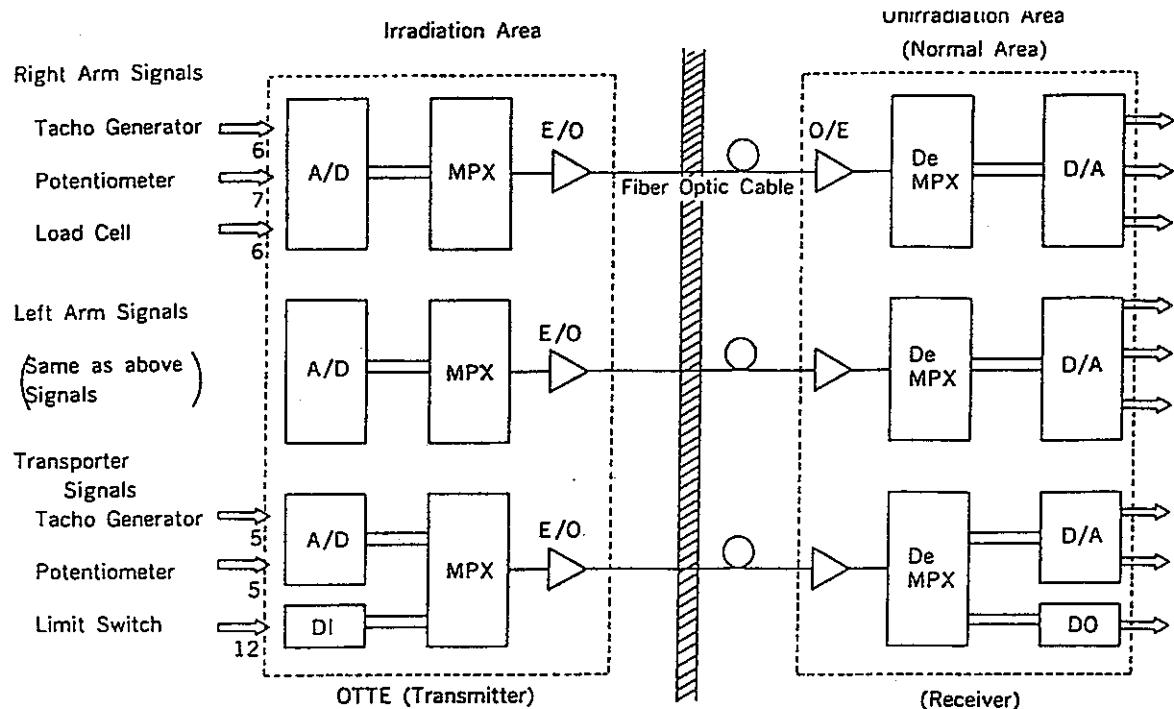


図1 スレーブアーム鳥瞰図



A/D : Analogue to Digital Converter

D/A : Digital to Analogue Converter

MPX : Multiplexer

DeMPX : Demultiplexer

図2 光通信ターミナルのブロック図

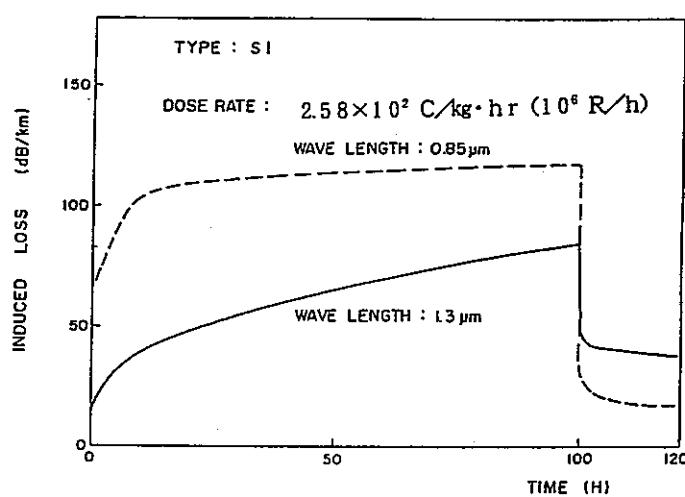


図3 SIファイバーの照射による伝送損失の増加

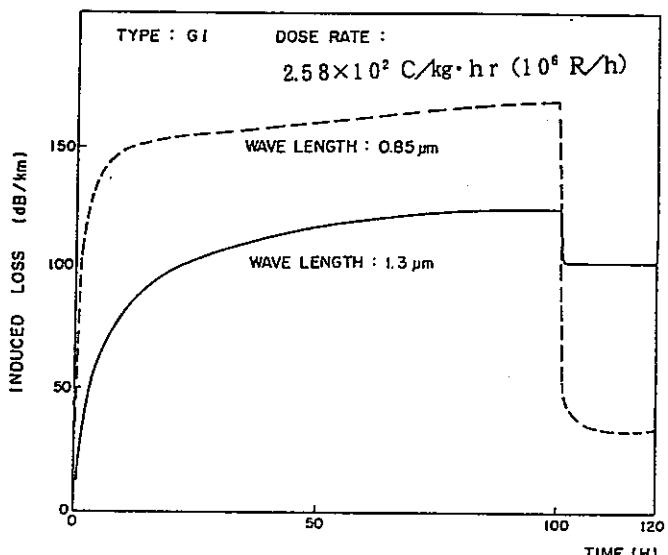


図4 GIファイバーの照射による伝送損失の増加

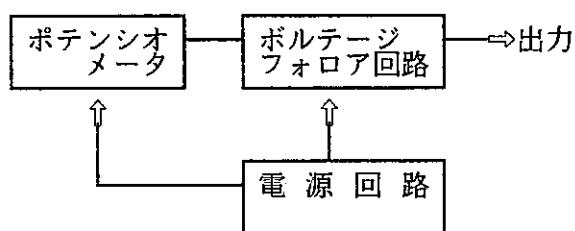


図5 位置検出回路ブロック図

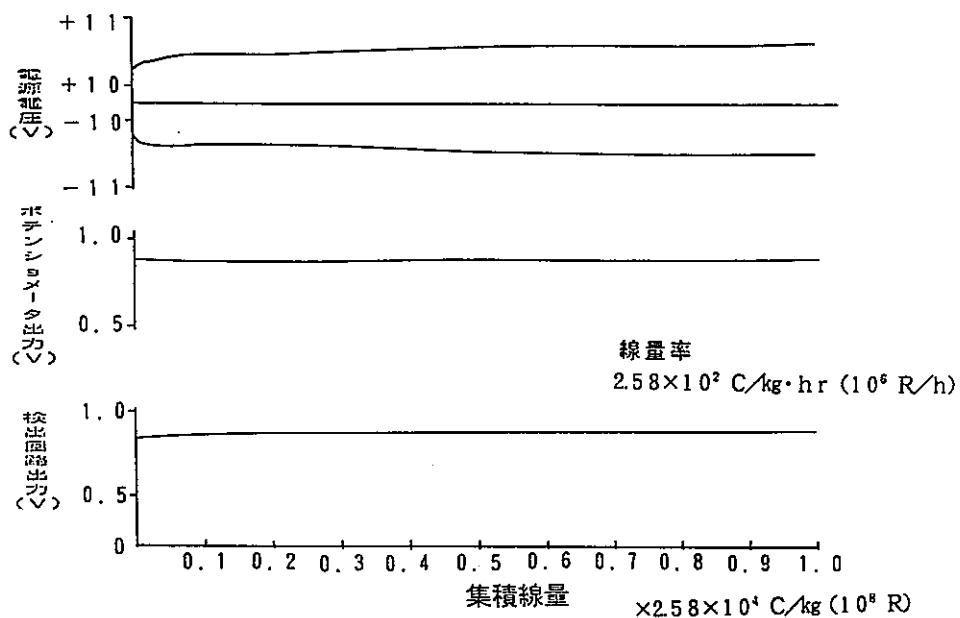


図6 位置検出回路の出力変動

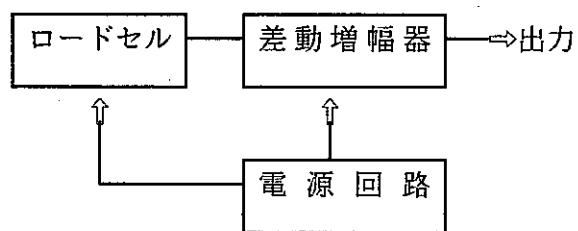


図7 トルク検出回路ブロック図

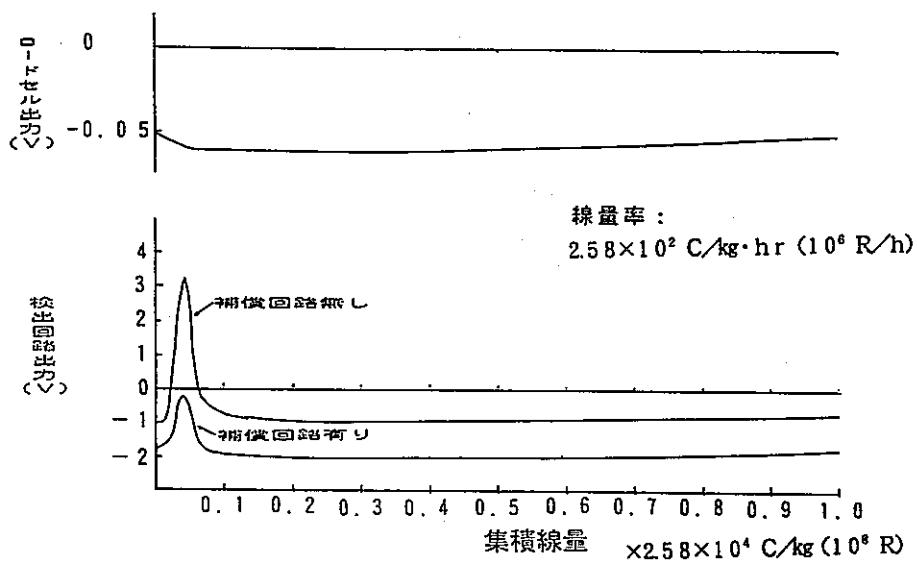


図8 トルク検出回路の出力変動

# 遠隔作業技術の信頼性に関する研究

東海・再処理技術開発部 安 隆 己

## I. 研究の概要

再処理工場では、高放射性物質を取扱うため、主要なプロセス機器類はコンクリートのセル内に設置され、多数の配管が接続されている。これらのプロセス機器の交換に伴う補修・交換作業は人手による直接作業になり、このような作業は多数の作業者と長期間を要し、また溶接作業等に係る熟練者の確保が必要とされる。この結果として被ばくの増加、施設稼働率の低下やメンテナンス費用の増加などが生じることになる。本研究は、プロセス機器類の交換に不可欠な配管類の切断・溶接作業を対象とした遠隔操作型の作業システムを開発し、補修作業における作業員の被ばくの低減及び作業の安全性と信頼性の向上を図ることを目的とする。

配管工事作業は種々の作業要素からなるが、そのうち主な要素について遠隔操作化を図りシステムを構成した。即ちシステムの構成は基本作業ユニット（切断装置、溶接装置、検査装置等）、補助作業ユニット（作業アーム、視覚装置等）及び遠隔操作ユニット（遠隔操縦装置、作業ビジョン等）から成り、これらを順次、設計、試作し、性能及び信頼性の確認、評価を実施してきた。

セル内配管のうち25A～50Aの管径を対象に、狭い配管間隔（約100 mm）に適用できるように特に基本作業ユニットは小型・軽量で機能性や信頼性のあるシステムとした。

## II. 研究成果

### 1. システムの構成と各構成要素

本システムは図-1に示すような各作業要素から構成される。これらの要素は、作業工具の組合せからなる基本作業ユニット、作業工具の作業部への移動、取付け及び監視のための補助作業ユニット、各作業要素の操作、監視用モニタなどの遠隔操作ユニットに分類される。

配管工事作業項目と作業時間の関係は、切断・開先加工、足場組立分解、溶接、PT、RT、サポート取付け・取外し作業が配管工事作業の主要な所を占めている。従って、配管工事作業の安全性と信頼性向上のため、開発の効果の観点から上記の主要な作業を対象とした遠隔作業システムを構築することとした。

#### (1) 構成要素の主要仕様と機能

対象とするセル内配管は8A～100Aの管径が多く、装置開発に係わる実現性、適用性などの面から25A～50Aの配管を主対象としたが、狭い配管間隔（約100 mm）や壁際、天井近くに施工されている配管列に適用出来るようなシステム構成要素とする必要もあり、特に作業工具に相当する基本作業ユニットは小型・軽量化を図った。

構成要素の主な仕様と機能を表-1に示す。

---

注）： 本開発は動燃事業団と東京電力㈱を幹事会社とした電力9社及び日本原電㈱との共同研究「長期安定運転に係わる再処理技術開発研究」として実施したものである。

## 2. 遠隔作業システムの評価

設計・試作した装置類は、実セルを模擬した配管配列の条件下で基本作業ユニット、補助作業ユニット、遠隔操作ユニットを組合せて、操作性、機能性、信頼性等について評価した。

### (1) 評価試験

以下の項目について評価試験を実施し評価と確認を行った。

- ・各作業装置毎の性能評価
- ・ステーション（装置の置き台）上での作業工具の装着、交換
- ・ステーションからの取出し、収納
- ・配管への取付け、取外し
- ・配管作業全体に係る組合せ作業

上記評価試験から以下に示すような結果を得た。

- (a) 各作業装置の機能性は概ね良好であり、切断、溶接、検査などの作業を機能通りに行うことができ各種条件下で配置された配管との干渉もなく、また、クランプ機構による姿勢保持も概ね良好であった。  
基本作業ユニットの各構成要素は、重量が22kg以下で小型・軽量化が図られた。
- (b) 作業アームにより連結器を介してステーション上での各作業工具の装着、交換、ステーションからの取出し、収納性は良く、TVカメラによる監視操作で行えた。
- (c) 配管への作業工具の取付け、取外し作業は視覚モジュール（セル内の監視用）、視覚専用アーム（配管近接作業の監視）で監視しながら実施できた。しかし、操作の習熟、視覚システムの視認性の良否が操作性へ大きく影響することがわかった。
- (d) 各構成要素を組合せた作業は、操作を習熟することで操作性、作業時間はより改良が図られると共に、必要な機能が確保されることを確認した。作業アーム、リフタと組合せて水平方向約2m、高さ方向約3.8mの作業可能範囲が得られた。  
クランプユニットと切断ユニット等組合せて使用する時に、クランプ部の視認性が劣ること、狭所への視覚専用アームの挿入操作が難しいなどが課題とされた。
- (e) 組合せ作業の例として、作業アームを用いてステーション位置から配管取付け位置までの作業に要する所要時間を測定した所、表-2に示す結果を得た。

### (2) システムの信頼性、安全性

設計・試作した遠隔作業システムは以下の面から安全性、信頼性の向上が図られている。

- (a) 各作業装置の機能は設計仕様通りの性能を有しており、特に、精度を出すために溶接装置については管軸方向のトーチ位置の調整、クランプユニットには突合せ機構を遠隔で可能なようにするなど、配管施工の信頼性を確保できるよう考慮している。
- (b) また、各作業工具は小型で軽量化が図られ、ケーブルのコネクター化等により取扱性や可搬性を良くしている。
- (c) さらに、各作業工具は表面の凹凸を少なくし、表面を覆うなどしてできる限り単純な構造とし除染性を良くしている。
- (d) リフタは配管作業時の最大荷重に耐え、切断作業時の振動荷重にも耐えられるように設計されている。作業アームは各作業工具の重量を十分上回る可搬重量25kgを有しており

また、配管等との接触に対し損傷を生じない保護機能を有している。

- (e) 連結器は安全ピンをつけて、作業時に停電や圧空もれ等の異常時においてピンが誤作動により抜けないシステムとしてある。
- (f) ケーブルモジュールは、基本作業ユニットをステーションから取り出し、または収納する時ケーブル及びホースをスムーズに送出し、巻取ることができ、余分なテンションがケーブルにかかるないようにになっている。
- (g) 停電及び圧空遮断時には切断装置、開先加工装置、溶接装置等のクランプが外れないよう考慮されている。

### 3. 結論

これまでの研究において、遠隔作業システムを構成する主要な要素技術を設計・試作し、装置単体及び組合せによる機能確認試験を実施して、本遠隔作業システムの適用性と信頼性を確認することができた。試作の対象とした要素技術は、配管作業の主要作業であり作業時間の大部分を占めるので、本システムの適用により、作業時間の削減、ひいては作業員の被ばくの低減を図ることができる。

また、狭所における視覚機能の改善や、個々の作業工具のさらなる小型、軽量化により、遠隔操作性の改善及びシステム全体の小型、軽量化が図られ、結果として狭いセル内への本システムの適用が可能となり、作業時間の削減に比した被ばくの低減が見込まれる。

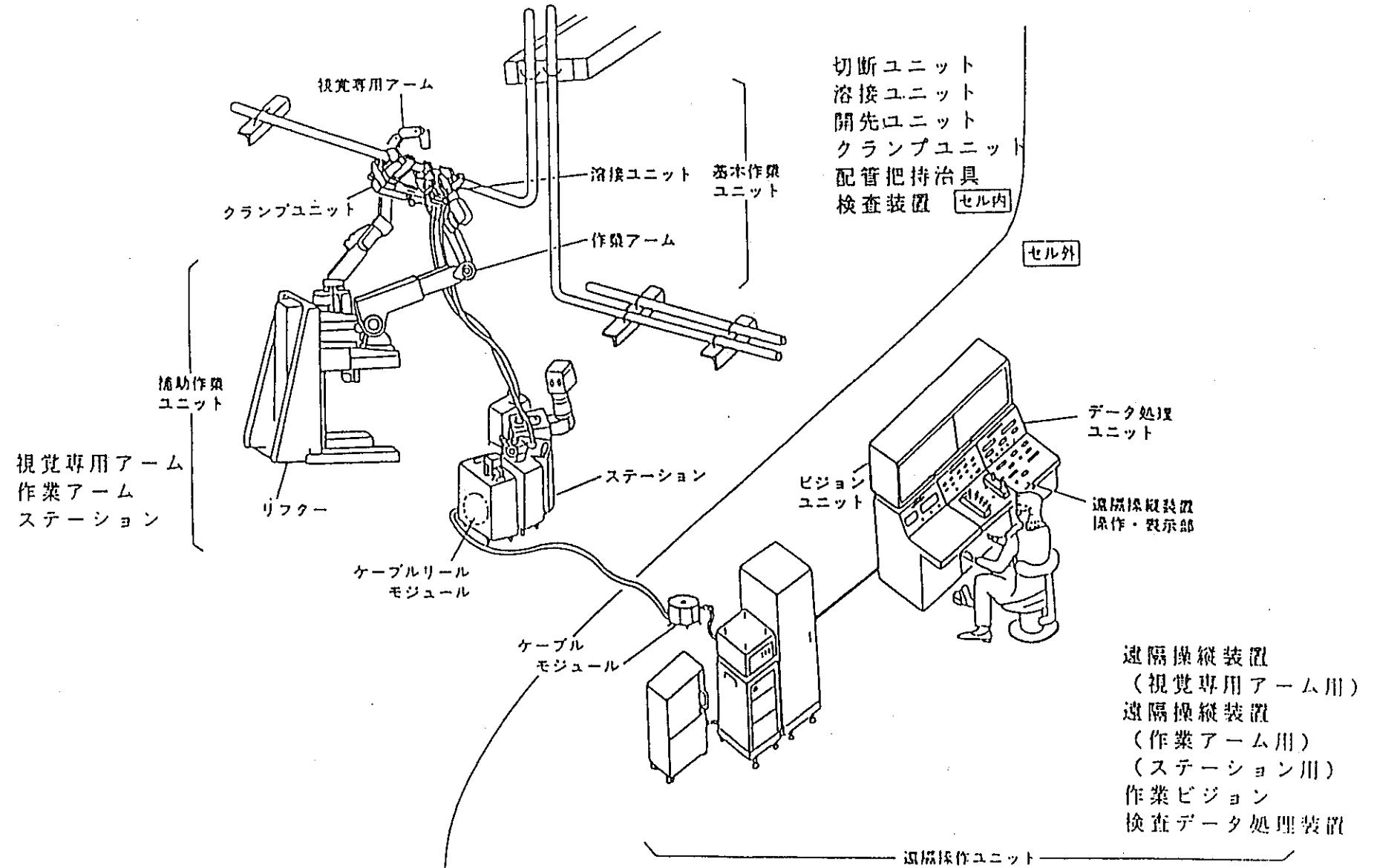


図-1 遠隔作業システム概要図

表-1 主な構成要素の仕様と機能

作業ユニット	主要仕様	機能
切断ユニット	寸法(mm) 451×220 ×180 重量(kg) 約 14 ハクソー(mm) 250 × 13	適用管径は 10A~50A 配管を 2か所でクランプ 50A 配管を約 9 分で切断
開先加工ユニット	寸法(mm) 291×210 ×322 重量(kg) 約 22 バイト 高速度鋼製	適用管径は 25A~50A U, V, I 開先加工が可能 連動三ツ爪チャック方式クランプ
溶接ユニット	寸法(mm) 365×208 ×140 φ 重量(kg) 約 10 全姿勢配管用TIG 自動溶接	適用管径は 20A~50A トーチ回転駆動、位置調整機能 25A 配管を約 8 分で溶接
検査装置	寸法(mm) 430×315 ×230 重量(kg) 約 16 ノンカプラント型アレイセンサ	適用管径は 25A~50A 肉厚 2.0 ~3.9mm へ適用 8chアレイセンサの180° 対向型
視覚専用アーム	アーム部寸法(mm) 全長 1805 重量(kg) 約 70 視覚ヘッド部径(mm) 52 φ	自由度 8 関節 作業部局所の観察に使用 焦点 10 ~50cm, 画角 34°
作業アーム	寸法(mm) 697×975 ×2072 (伸縮) 重量(kg) 約 460 水平極座標式、伸縮アーム	自由度 7 基本作業ユニットを連結器で扱う 可搬重量 約 25kg

表-2 遠隔作業所要時間

作業内容	作業時間(最短~最長)
作業アームの待機位置からステーション上の基本作業ユニットの連結位置への作業アームの移動	1分 ~ 2分
連結操作	3分 ~ 6分
基本作業ユニットの取出し~配管上の作業位置への移動(逆も同じ)	5分 ~ 15分
基本作業ユニットの配管への取付けと連結切離し(取外しも同じ) (配管上に他の基本作業ユニットがない場合)	5分 ~ 30分 (5分 ~ 15分)
(配管上に他の基本作業ユニットがある場合)	(10分 ~ 30分)
視覚専用アームを配管上の観察ポイントへ導く作業	30分

# 供用期間中の検査技術の開発

東海・再処理技術開発部 山本隆一

## I. 研究の概要

本研究は再処理関連施設における設備の健全性確保、安全性向上に資することを目的として着手したものであるが、昭和61年度から平成2年度の5年間においては、遠隔継手部、特にフランジ式継手からの漏洩を検知する手法として、主として下記の方法について実施した。

### 1. 電気抵抗導通法

### 2. NO<sub>x</sub>ガス分析法

## II. 研究成果

### 1. 電気抵抗導通法

本方法は、セラミックス織布（絶縁性、耐放射線性を考慮して洗濯した。ガラス繊維でも使用可能と考える）に導線を編み込んで作ったセンサに液滴を付着させ、その結果としての電気抵抗の変化を検出することを基本原理としている。

本件では、セラミックス織布としてアルミナ繊維を、導線としてはステンレスまたは銅を検討した。

また、漏洩検出対象のフランジについては漏洩位置を限定する目的で漏洩液をフランジ外に導出するための溝をフランジ面に追加した（図-1参照）。

#### (1) センサの検討

##### (a) ステンレス導線によるセンサ

ステンレス導線を用いた場合の概念図を図-2に示す。この場合では、直径0.14mmのステンレス導線2本をセラミックス織布に3mm間隔で編み込み、末端を適当な抵抗（終端抵抗器；本件では100kΩ）を介して接続したセンサに抵抗測定器を接続している。ここで、このセンサ上に液滴が落下または付着すると近傍の2つのステンレス導線が短絡する。即ち、センサ上の液滴は抵抗測定器により電気抵抗の低下として検出されることとなる。この測定例を図-3に示す。

図-2及び3から分かるように、このセンサの長所は、

- ① 短絡を検知する方式であることから比較的応答が早い
- ② 微量な漏れに対応できる
- ③ 強腐食性の液でない限り繰り返し使用できる。

等があげられ、逆に短所としては、

- ① セル内の湿度コントロールを厳密にし、結露等を排除し誤報を防止する必要がある
- ② セル内に硝酸ヒューム等が存在する場合には誤報が出やすい

等があげられる。

##### (b) 銅導線によるセンサ

この場合では、直径0.1mm程度の銅導線をステンレス導線センサの場合と同様にセラミック織布に折り込み、末端を接続する。ここで、このセンサ上に腐食性の液滴が落下または付着すると、腐食性の強さにも依存するが、比較的短時間で銅が溶解し、断線する。即ち、センサ上の液滴は抵抗測定器により電気抵抗の上昇として検出されることとなる。

このセンサの長所としては、

- ① 断線を検知する方式であることから、結露等による誤作動を生じにくい
- ② 腐食性の強い液であれば微量な漏れにも対応できる

等があげられ、逆に短所としては、

- ① 腐食による断線と同時に液による短絡現象が生じ、結果として漏洩が検出できなくなる恐れがある
- ② 断線を検知するものである以上、一回使い捨てとなり、廃棄物の問題がある
- ③ 検知のシーケンスに化学反応が入ることから、特に腐食性の弱い液では応答性に問題がある

等があげられる。

### (2) 遠隔操作性の確認

漏洩検知装置は遠隔保守セルでの使用を前提としたものであることから、センサ部取扱用フレームを4種類試作し、実規模開発試験室に設置されている両腕型バイラテラルサーボマニピレータ（BSM）による遠隔保守試験を実施した。図-4、及び図-5にその例を示す。

試験の結果、フレーム単体としてはいずれも十分な遠隔操作性を有しているが、電源及び信号伝送のためのケーブルについては遠隔操作上の工夫、具体的には本件の枠外ではあったが、ケーブルリール等ケーブルを遠隔で扱うための器具の工夫、セル内外の電源／信号の授受のためのセル貫通プラグの追加等の措置が必要となることが明確になった。

### (3) 耐放射線性の確認

当該漏洩検知装置のうち、セル内で使用する部分であるセンサー部については照射試験を実施し、 $1.29 \times 10^4$  C/kg ( $5 \times 10^7$  R) (線源は $^{60}\text{Co}$ ) 照射後においても問題がないことを確認した。なお、センサー部との電源／信号の授受のためのケーブルについては本件の枠外ではあるが、別途照射試験を実施し、十分な耐放射線性を持つケーブルが共用化可能であることを確認している。

## 2. NO<sub>x</sub>ガス分析法

本方法は硝酸を含む漏洩液が銅、アルミニウム等と反応する際に発生するNO<sub>x</sub>ガスに着目し、その濃度を計測することにより漏洩を検知することを基本原理としている。

本研究で試作したシステムは、図-1及び図-6に示すように、

- (1) フランジ式継手の漏洩液収集溝（図-1参照）に取り付けた銅片
  - (2) 漏洩により発生するNO<sub>x</sub>を吸引するためのノズル、配管及びガスサンプリングユニット
  - (3) 吸引したNO<sub>x</sub>を分析するためのガス分析ユニット
  - (4) ガス分析ユニットからの信号を処理し、表示する漏洩監視盤
- とで構成される。

本システムによる測定例を図-7に示す。

図-6、7より分かるように、このシステムの長所は、

- (1) セル内のシステムが単純であり、耐放射線性やセンサー部の腐食の問題がない
- (2) 酸濃度が比較的高い（5 N程度）液であれば0.01ccという微量漏洩が検知できる等があげられる。逆に短所としては、
  - (1) 銅片と硝酸の反応生成物を検出するシステムであることから予想外（銅片を取り付けていない箇所）の漏洩には対応できない
  - (2) 吸引ノズルと配管は監視対象部分の数だけ必要となり、セル内配管の数が増加する。場合によってはセル容積の増大にもつながる
  - (3) 検出感度が液の腐食性に依存する
  - (4) セル内に硝酸ヒューム等が存在する場合には検出感度が低下する
  - (5) セル内の空気を吸引することとなるのでセル外設備の汚染対策が必要等が考えられる。

### 3. 今後の展開

本研究において取り扱った「液漏洩の検知」は前記のような問題点が見出されたことから、実用には至らなかったものの、今後具体的な適用施設が出てきた段階で実用化研究を進めるための貴重なデータが得られた。これをもって漏洩検手法に関する検討は終了し、次期5か年計画ではセル内機器の遠隔検査手法等に移行する。

以上

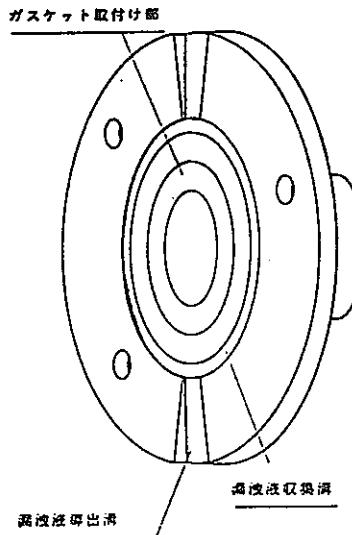


図-1 漏洩検出用溝の概念

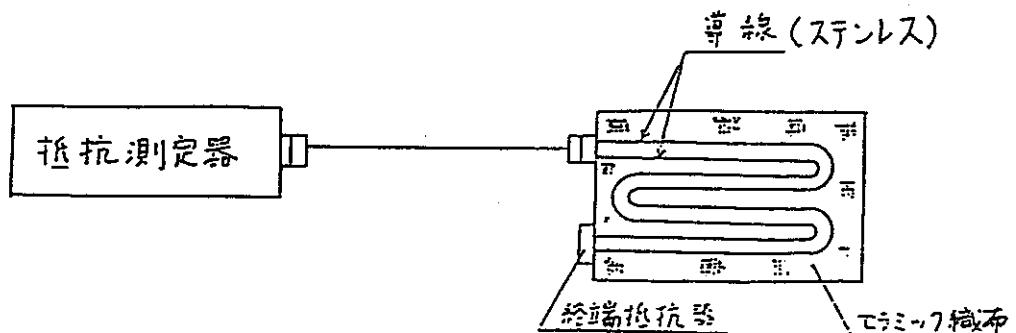


図-2 ステンレス導線センサを用いた漏洩検知システム

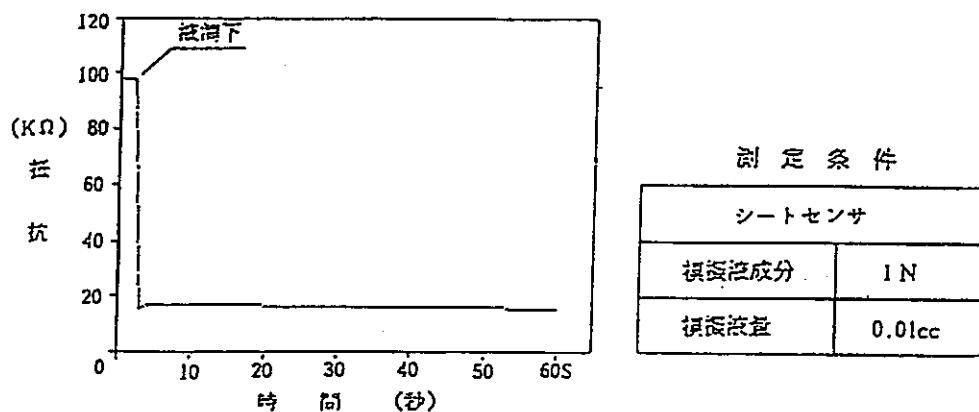


図-3 ステンレス導線センサを用いた漏洩検知システムによる測定例

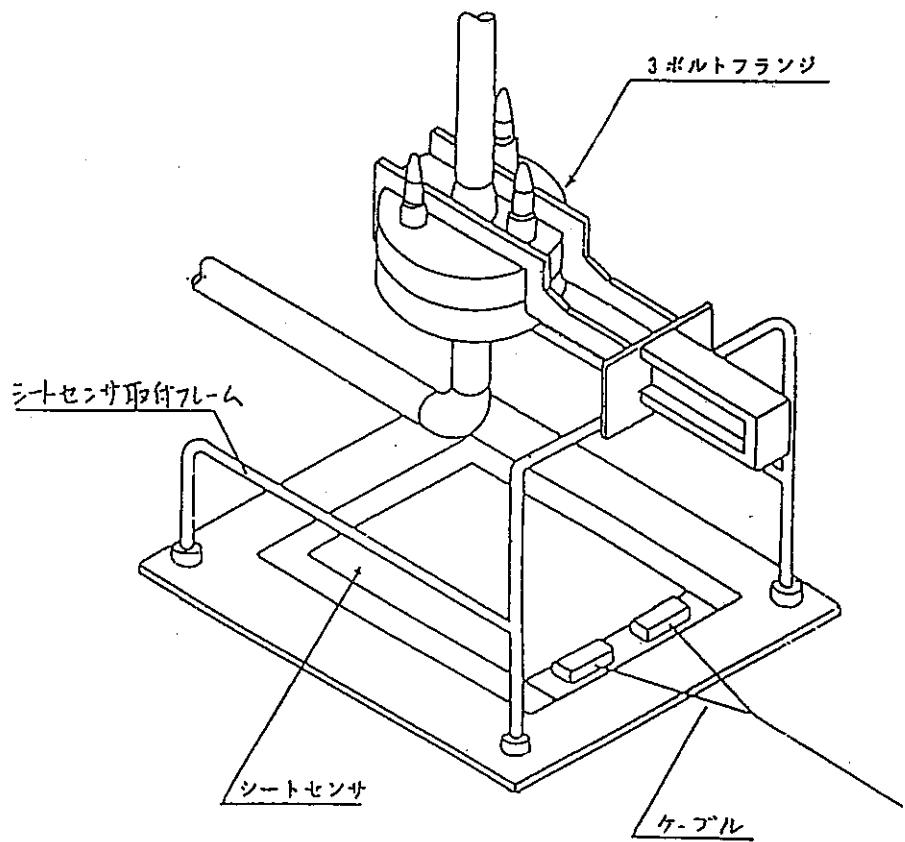


図-4 センサ部取扱用フレームの例（その1）

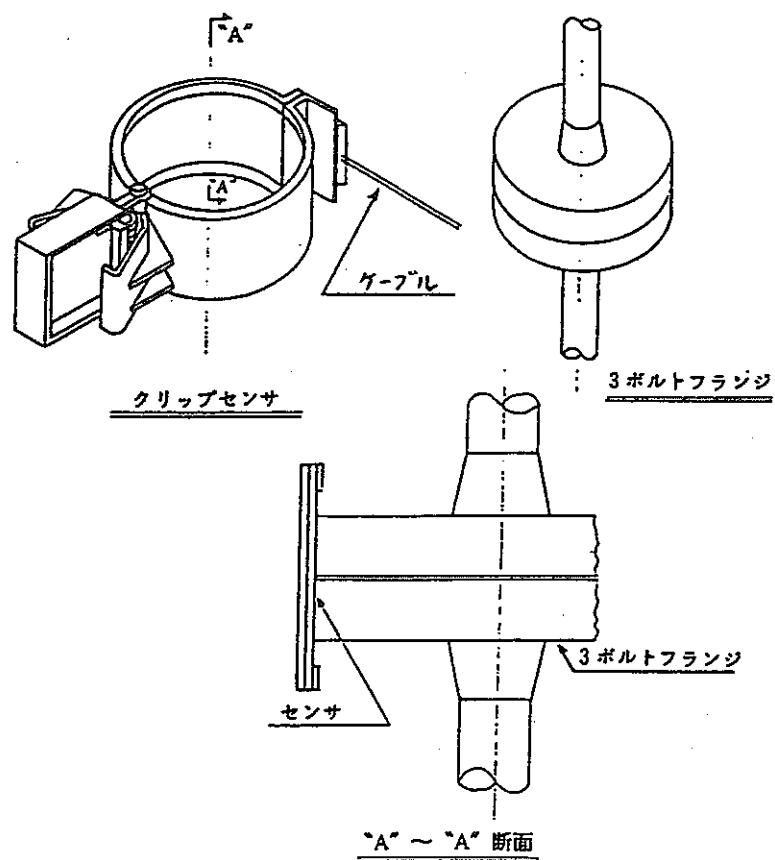


図-5 センサ部取扱用フレームの例（その2）

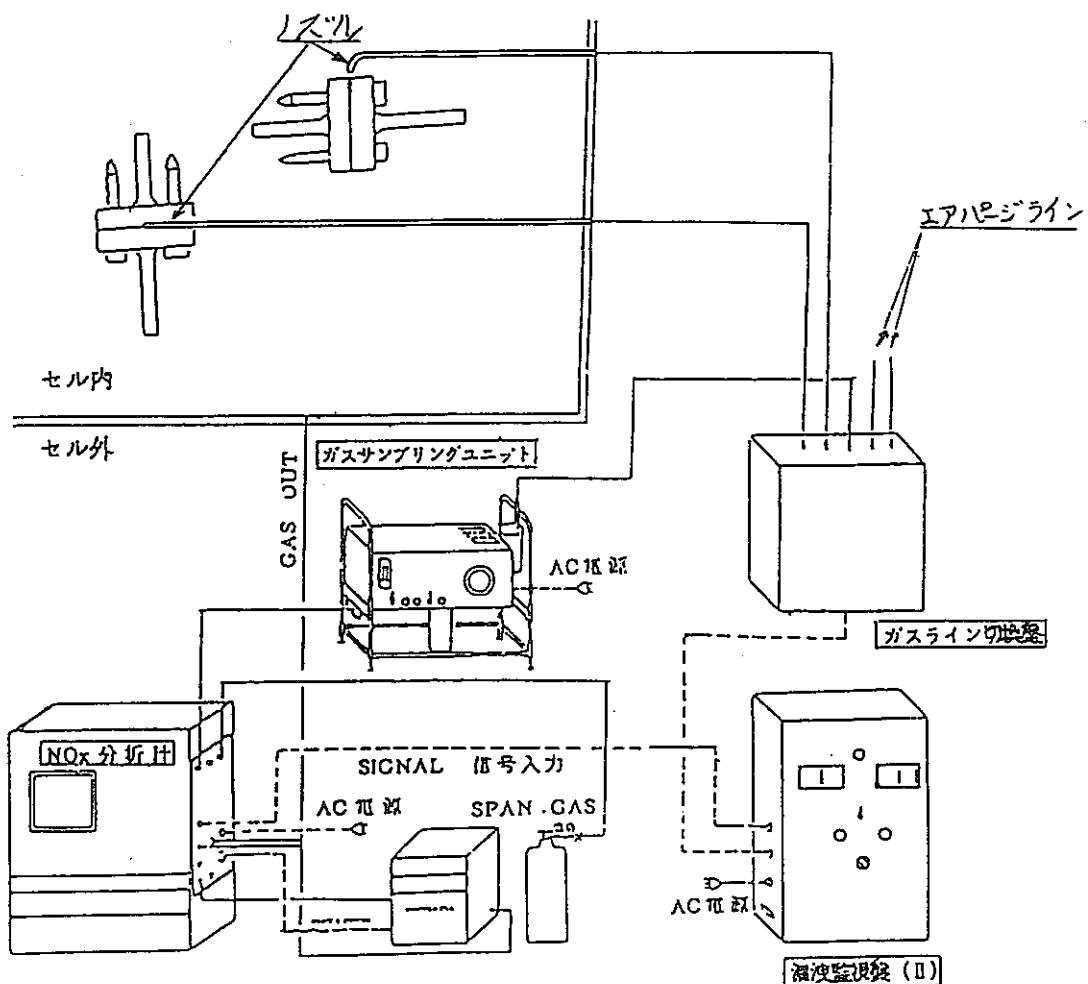


図-6 NO<sub>x</sub>ガス分析法のシステム構成例

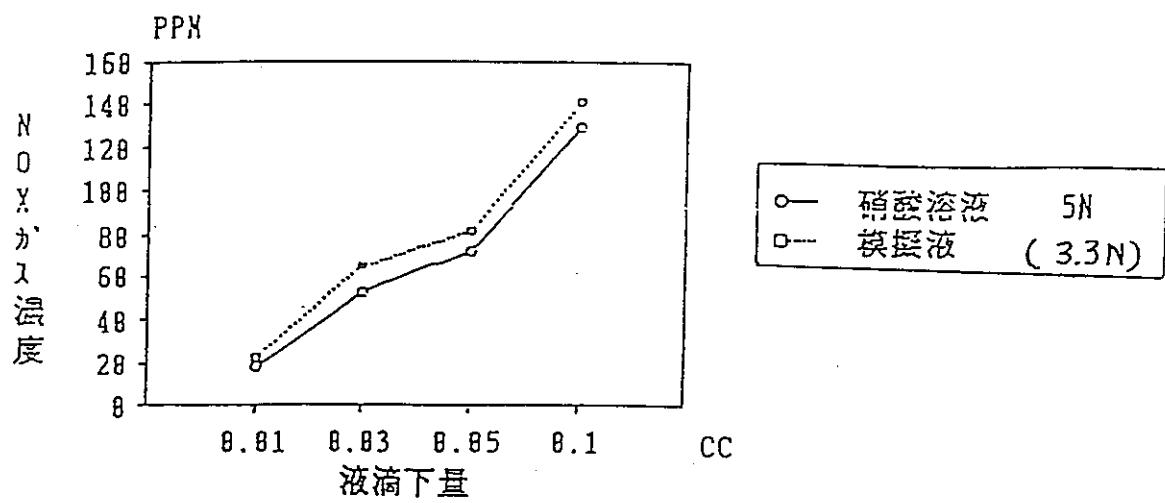


図-7 NO<sub>x</sub>ガス分析法による測定例

# ラックシステムによる新型遠隔保守技術に関する研究

東海・再処理技術開発部 山本隆一

## I. 研究の概要

本研究は再処理関連施設の高放射線環境下に於ける保守作業時に、作業員が受ける放射線被曝を低減する目的で実施されたものである。

従来の再処理プロセス機器は各機器別にセルと呼ばれるコンクリート製の小部屋に収納され、保守作業が必要な時には、機器およびセル内の除染作業を行った後、作業員がセル内に立ち入って保守作業を実施する。除染により、セル内の放射線レベルを通常値まで下げることは難しく、その為作業員の被曝増大が予想される。また施設の停止期間や二次廃棄物の増大という問題もある。

本研究は前述の問題点を解決する為、図-1に示す様な大型セルの中に設置されるラック（寸法・形状・重量等が規格化されたフレーム構造体）上に機器を搭載し、セル内に常時設置される保守作業用マニプレータシステム（操作室よりTVモニターを通じて操作する）で機器の保守を行い、万が一それが困難な場合にはラックごと取り外した後、ラックは除染保守セルに持ち込み、別途補修しようというものである。この様なシステムを導入する事により、放射線被曝の低減と同時に除染期間の削減による施設の稼働率の向上、二次廃棄物の削減が期待できる。

本研究は次に示す3項目からなる。

### 1. ラックシステムの開発

セル内の保守作業を、容易、確実且つ安全に行える配慮をした、ラックおよびラック搭載機器の開発。

### 2. 高性能マニプレータシステムの開発

セル内の保守作業を作業員に替わって、容易、確実且つ安全に行うため、セル内を自由に移動でき、ヒューマンエラーを極力排除出来るマニプレータシステムの開発。

### 3. 遠隔配管継手の信頼性試験。

セル内の塔槽類をマニプレータ等の遠隔保守装置により取外しを可能とするための遠隔配管継手の信頼性試験の実施。

## II. 研究成果

### 1. ラックシステム

ラックは再処理プロセス機器の遠隔保守を容易ならしめるものであり、寸法・形状・重量等を規格化したフレーム構造体である。このラックは比較的保守頻度の高い搭載機器については離壇状に配置して、マニプレータやクレーンがアクセスし易い様にする一方、保守頻度が低い大型の機器についてはラック内部に収納して、ラック毎取外せる構造となっている。ラック毎取外すため、ラック-ラック間およびラック-壁間の配管および電気配線は全て遠隔で操作可能な継手を介して接続する。このシステムを開発するため、遠隔対象機器の各要素（配管・電気継手、遠隔固定方法等）の試作試験を行うとともに、フルスケールラックを製作して、遠隔操作性の評価を行った。

また、ラックは耐震性も兼ね備えていなければならない。20～50t程度のラックを剛構造とするとフレームの断面積が大きくなり、マニプレータ等のアクセス性に影響がでる。そのためラックはフレームサイズを極力小さく押さえ、解析計算コードにて地震時にフレームに生ずる応力を求める事とした。解析計算コードに使用した解析モデルの妥当性を検証する為に、フルスケールの加振試験を実施した。

図-2にガラス固化技術開発施設(TVF)用ラックスистемの外観図を示す。

## 2. 高性能マニプレータシステムの開発

高性能マニプレータシステムは・両腕型バイラテラルサーボマニプレータサブシステム(BSM)、・視聴覚サブシステム、・トランスポーターサブシステム、・電力信号伝送サブシステム、・マンマシンインターフェイスの5つから構成される。システムの構成図を図-3に示す。

このBSMは以下のような特徴を持つ。

- (1) 高レベル放射線環境下での使用に耐えられる $2.58 \times 10^4 \text{C/Kg}$ ( $10^8 \text{R}$ )の耐放射線性を有する
- (2) 故障の際にはセル内にあるもう1セットのマニプレータシステムで修理が可能。
- (3) 操作員がシステムを監視しながら次に行うべき事を判断しつつ操作する、典型的なマン・マシンシステムであり、操作し易くかつヒューマンエラーを起こしにくいためのインターフェイスを持つ。
- (4) 操作員がセル内にあるスレーブ腕に働く外力を操作室のマスター腕を介して感じるバイラテラル機構を持っていることから、セル内のスレーブ腕が何かにぶつかった場合でもその感覚を操作員が知る事により、無理に操作してマニプレータを壊す事を防止できる。
- (5) 人間と同様に上下振り、左右振り、回転が一関節で出来る、小型3自由度手首を有することから、人間と同程度の器用な作業ができる。
- (6) スレーブ腕の動作速度、動作範囲、取り扱い荷重は、人間のそれと同等としたことから、操作員が操作し易い。

本研究ではこれまでにプロトタイプI、片腕モデル、プロトタイプIIを試作し各種試験に供してきた。本節では昭和61年末に完成したプロトタイプIIを用いて平成元年までに実施した試験結果について説明する。

表-1にプロトタイプIIの仕様を示す。セル内で使用する場合を想定して、(1)模擬ラックおよび模擬ラック搭載機器の遠隔操作試験、(2)マニプレータ自身の保守試験を実施した。その結果、セル内で想定される作業はマニプレータ自身の保守も含めて全て実施可能である事を確認すると共に、マニプレータ自体の操作性をより良するために必要な改良ポイントを摘出することができた。改良ポイントとしては以下の3点が挙げられた。

- (1) マスターアームを操作するのに必要な力(操作力)を減少させる為、バイラテラル機構により操作員へかかる力(反力)を小さくする(力フィードバックのゲインを小さくする)とともに、マスターアームの自重補償方式を電気(モータ)式から機械式に変更することで、モータ、ギヤの小型化を図り、スレーブアームを動かす際の摩擦力、慣性力を削減する。
- (2) スレーブアームがマスターアームを追従する際の遅れ、誤差を少なくする為、制御アルゴリズムの簡素化と高速プロセッサーを採用し、制御周期の高速化を図る。
- (3) より器用な作業を短時間で実施する為、手首の動作範囲を拡大して、工具や対象物を取り扱う際の持ち替える動作を減少させる。

この様に抽出された改良を実施した後、改良効果確認試験を実施した結果、図-4に示す様に操作時間が短縮されると共に、エラーの頻度が著しく減少した。

### 3. 遠隔配管継手の信頼性試験

遠隔配管継手としては3ボルトフランジ、TRU継手等の気密性、遠隔操作性、耐震性等について試験を行い、適切なガスケットの材質、操作手順等を選定した他、これらの継手が耐震上問題無いことも確認した。

## III. 開発の効果

本研究の成果として、作業員をセル内に立ち入らせる必要がなくなり、作業員の被曝削減に大きく寄与できることが期待できる。また遠隔作業を行うマニピレータ、被保守側のラック及びそこに搭載される配管継手の操作性ならびに信頼性等の改良の結果、セル内作業が確実に達成できる見通しが得られた上、遠隔継手の信頼性が確認できた。

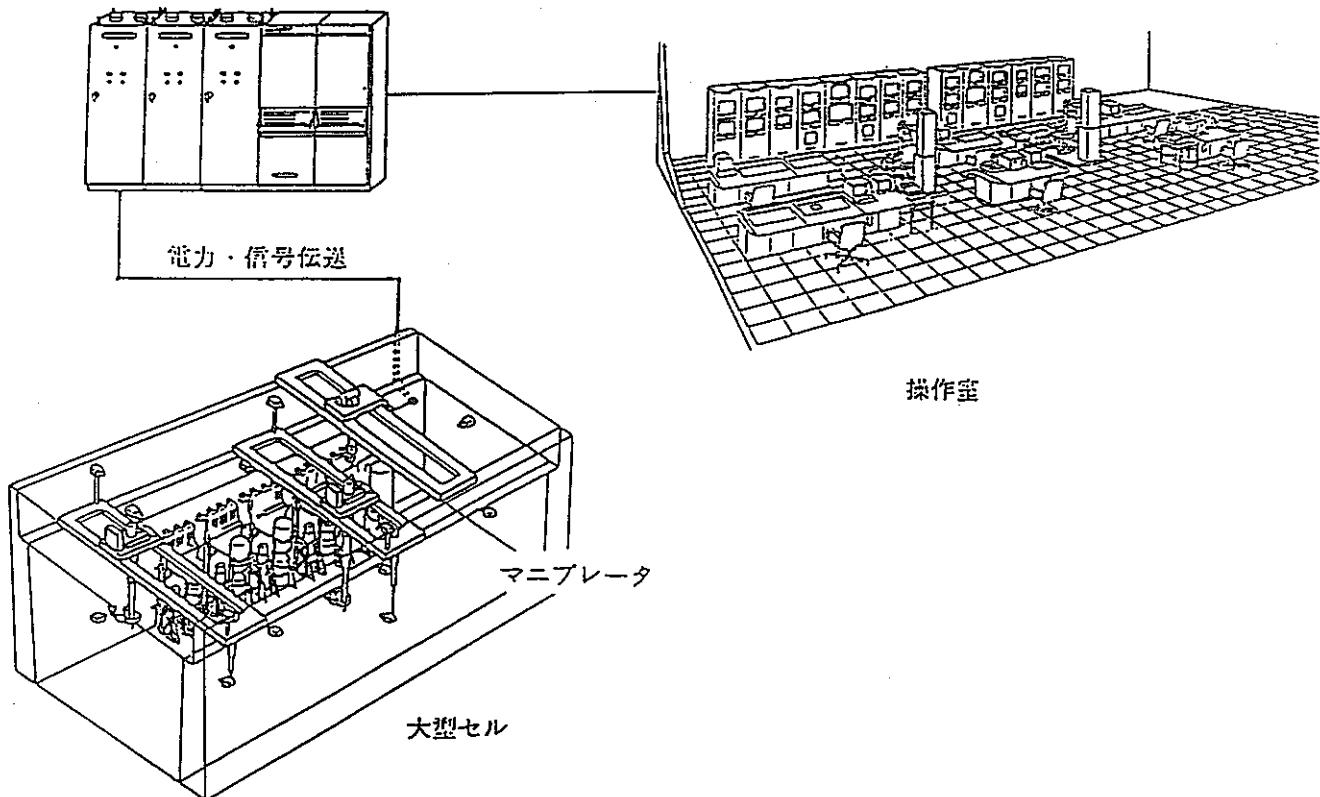


図-1 保守型遠隔保守の概念

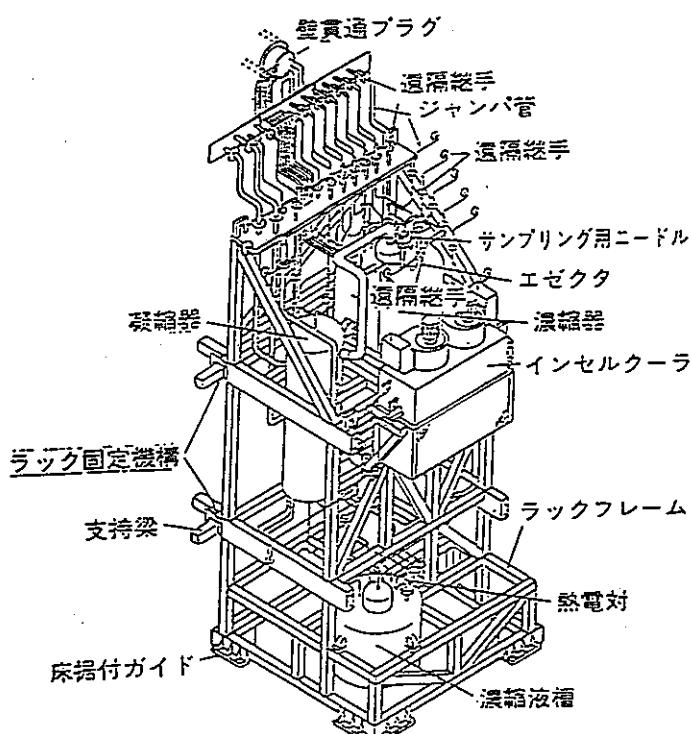


図-2 ラック概念図

表1 プロトタイプⅡ仕様(改良前)

項目	
形状	多関節型
駆動方式 肩・肘 手首	トルクチューブドライブ ギヤダイレクトドライブ
取扱荷重	15 Kg
握力	20 Kg
動作範囲・速度	
肩ピッチ	+135°, -45°, 40d/s
肘ヨー	+45°, -60°, 60d/s
肘ピッチ	+35°, -215°, 60d/s
手首ピッチ	+45°, -45°, 160d/s
手首ヨー	+45°, -45°, 160d/s
手首ロール	+45°, -45°, 160d/s
手先開閉	0~100mm, 100mm/s
制御方式	力覚遠型 (デジタル処理)

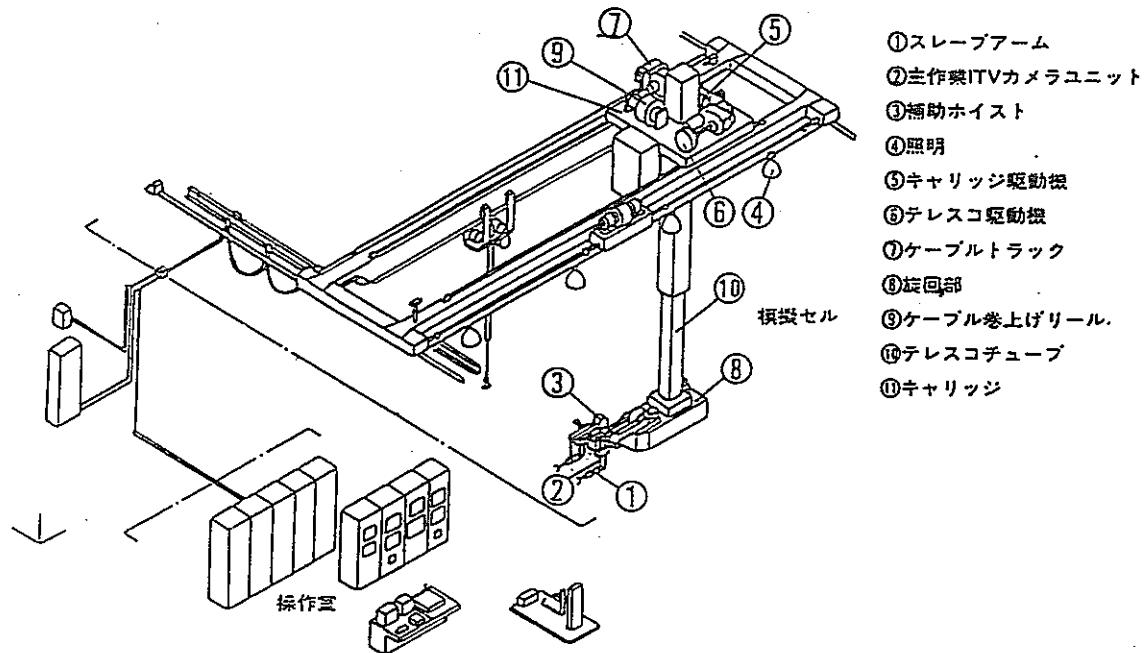


図-3 (a) 高性能マニピュレータシステム構成図

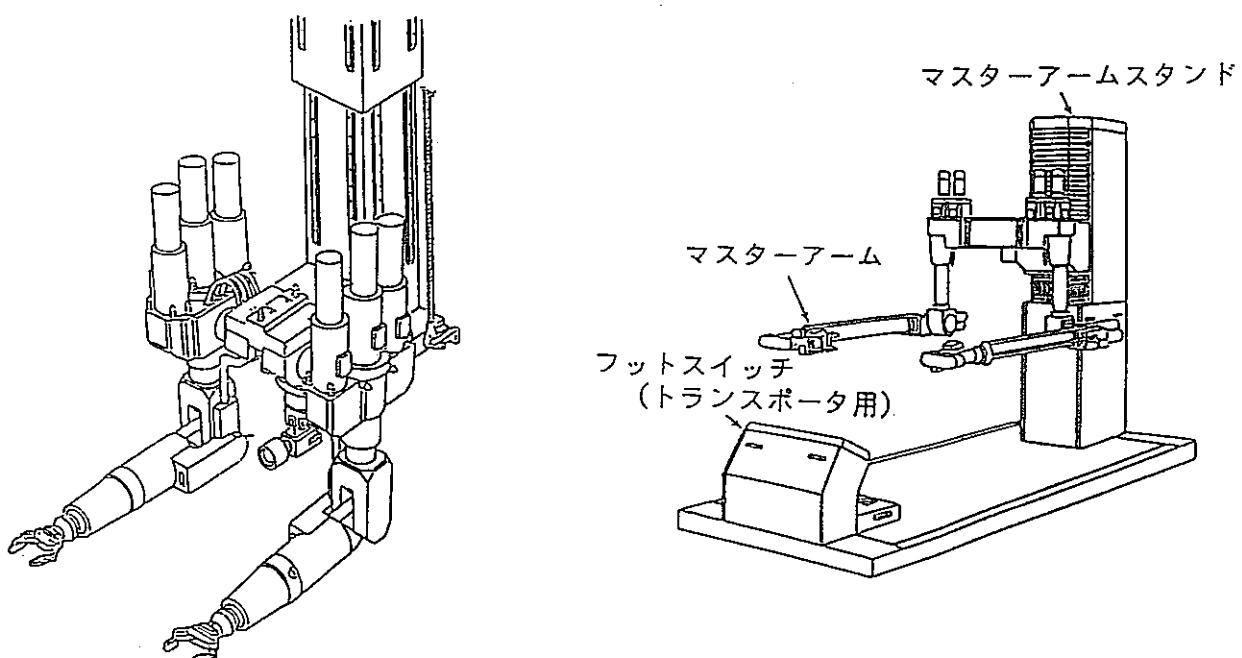
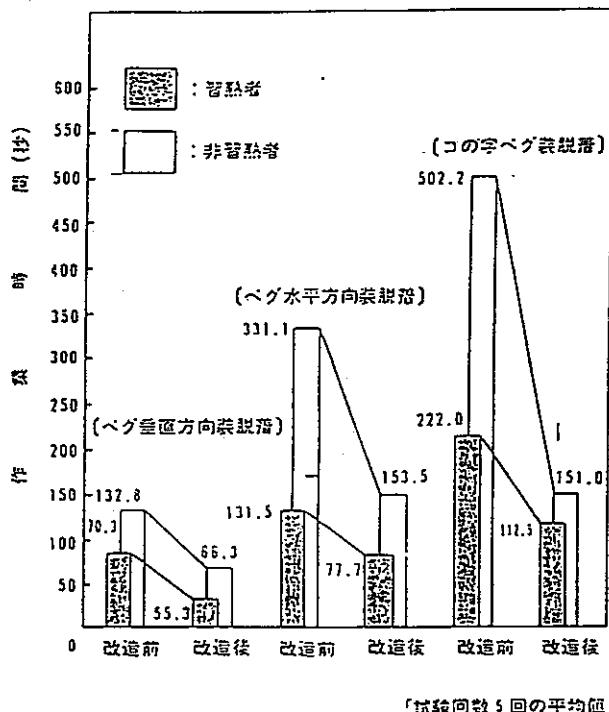
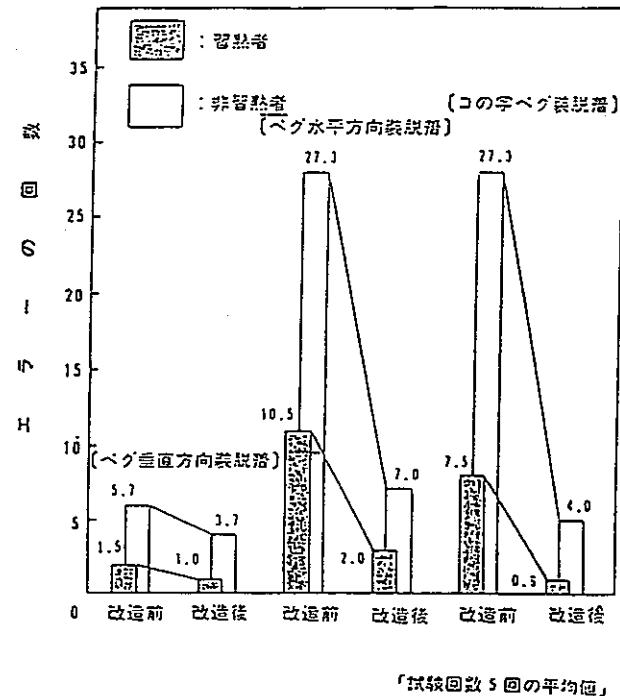


図-3 (b) スレーブ腕

図-3 (c) マスター腕



(イエニスル寺尾上ヒリ交)



(エラ一タ文上ヒリ交)

図-4 マニプレータの改造効果確認試験結果

# 材料及びその加工法の耐食安全性に関する研究

東海・再処理技術開発部 武田誠一郎

## I. 研究の概要

本研究は、「再処理施設のプロセス機器のうち、使用環境の特に厳しい機器について、材料及びその溶接施工法を中心とした加工法の耐食安全性に関する研究を行い、それら機器の健全性及び信頼性の向上に資する」ことを目的に、以下の具体的な項目について実施された。

### 1. 材料及び溶接部の耐食性評価法に関する研究

### 2. 使用環境下における腐食試験

### 3. 新材料の寿命評価についての研究

### 4. 異材継手技術の開発

## II. 研究成果

### 1. 材料及び溶接部の耐食性評価法に関する研究

ステンレス鋼を対象に、その溶接部の腐食挙動を調べる目的で、310Nb 及び 304ULC 鋼の母材、溶接金属試験片を用いて、高速炉燃料模擬溶解液による伝熱沸騰腐食試験を行った。その結果、図-1<sup>1)</sup>に示すように、溶接金属自体の腐食量は母材の腐食量に比較して決して大きくなことが知見として得られた。

### 2. 使用環境下における腐食試験

再処理プラントでは、通常高密度の中性子束の存在は考えられないため、原子のはじき出し等による材料そのものの損傷は考慮する必要はない。反面、現在のプロセスの主流である湿式ピューレックスプロセスの場合、塩析剤として硝酸を用いることから化学的な腐食性が厳しく、これに伴う材料の損傷を考慮しなくてはならない。従って材料劣化のプロセスは原子力施設とはいうものの、照射損傷あるいは材料強度に重点を置く原子炉施設とは異なり、電気化学理論で整理することのできる湿食が重要な問題となり、むしろ一般の硝酸化学プラントに類似していると言える。

しかし再処理プロセスではそれに加えて放射線、核物質、核分裂生成物等特有の環境因子が存在しており、硝酸化学プラントと全く同様に材料問題を論じるわけにはいかない。そこで再処理施設でのプロセス機器の実際の腐食挙動を推定するため、試験片規模で実液によるホット試験及び対応する模擬液によるコールド試験を行い以下の結論を得た。

#### (1) 放射線の影響

再処理工場で取り扱う放射性物質からの放射線は  $\alpha$  線、 $\beta$  線、 $\gamma$  線が主なものであり、それらが材料の損傷に与える結晶学的影響は特に問題となるものではない。溶液側の液性変化の追

跡のため、密封線源（32000Ci,  $^{60}\text{Co}$ ）を用いて硝酸溶液に $\gamma$ 線を照射した時の、溶液中に浸漬した白金の電位（溶液の酸化還元電位とみなす）を図-2<sup>21</sup>に示す。10<sup>3</sup>、10<sup>6</sup> R/h の照射線量率では $\gamma$ 線の照射に対応して電位がless noble側に変化していることが確認できる。このことは詳細な機構については不明の点が多いものの、 $\gamma$ 線と材料の腐食挙動とに何らかの関係があることを示唆するものである。

## (2) 核物質 (U, Pu) の影響

ウランはその酸化還元反応の標準単極電位が+334mV(vs NHE)と硝酸に比べかなり低くUO<sub>2</sub><sup>2-</sup>が材料の腐食電位を上昇させるカチオンとは考えにくい。一方、プルトニウムはその酸化還元反応の標準単極電位が+970mV(vs NHE)と硝酸のそれに近く、材料の腐食への影響が懸念される。

図-3<sup>31</sup>に硝酸プルトニウム溶液中での304ULC、Ti-5TaおよびZrの腐食速度のプルトニウム濃度依存性を示す。304ULCの場合、プルトニウムの存在が材料の腐食を促進していることが明白である。また、これには濃度依存性もあり~50gPu/l のものではPuが共存しないものに比べ、10倍以上の腐食速度を示している。この現象はPu<sup>4+</sup>がCr<sup>6+</sup>同様、腐食電位を上昇させるカチオンとして働いているためと考えられる。

一方Ti-5TaおよびZrの場合は、プルトニウムイオンの存在下では有意な腐食速度を示さず、Cr<sup>6+</sup>イオン共存環境同様、良好な耐食性を示した。これは高電位域においても不働態を維持する材料固有の分極特性に基づくものと考えられる。

## (3) 溶解液中の腐食挙動

再処理の工程には例えば溶解槽のように化学反応を伴いつつ、かつ種々雑多な因子が共存するような複雑な系も存在する。図-4<sup>21</sup>にCPFで行った常陽で照射した高速炉使用済燃料(MK-II)の溶解反応進行時における電位追跡の結果を温度及び溶解率の変化と合わせて示す。各材料の腐食電位はいずれも硝酸単独の場合と比べるとかなり高く特にステンレス系材料への影響が懸念される。図-5<sup>41</sup>に英国ドンレイ高速炉使用済燃料溶解液を用いたCPFでの浸漬腐食試験の結果を示す。ステンレス鋼(310Nb, 304ULC)は非鉄系のTi、Ti-5Ta、Zrに比べ比較的大きな腐食速度を示しており、図-4<sup>21</sup>に示した腐食電位測定結果を裏付ける結果と言える。

## 3. 新材料の寿命評価についての研究

東海再処理工場の酸回収蒸発缶を模擬した小型蒸発缶をTi-5Ta及びZrにより各々製作し、模擬溶液を使用した合計13000時間までの連続運転試験を行うことにより両蒸発缶の長期耐食性の評価を実施した。試験設備は東海再処理工場の酸回収蒸発缶の1/27の蒸発能力を有し、Ti-5Ta製及びZr製の蒸発缶本体(加熱部、蒸発部、連通管)及び付帯設備(配管、ポンプ類、タンク類、冷却機器)から構成され、閉ループによる連続運転を行った。運転条件に関しては、濃縮液流量を一定とし、蒸発量は加熱用蒸気の流量により、蒸発缶内の液面は供給液の流量により制御した。また、缶内液の組成、温度及び流量は実機設備と同等とした。13000時間までの運転試験により以下の結果が得られた。

- (1) 蒸発缶内温度及び流量とも非常に安定し、設定した運転条件を満足したことから、Ti-5Ta製及びZr製蒸発缶の蒸発性能における運転上の問題はないと考えられる。
- (2) 蒸発缶の内面の目視観察及びファイバースコープ観察より、両蒸発缶ともに著しい腐食、クラック等の損傷は認められず、健全な状態を維持していた。

- (3) 超音波肉厚測定結果より、伝熱管の減肉量はともに 0~0.15mm の範囲にあり、非接触型測定法の誤差 ( $\pm 0.2\text{mm}$ ) から伝熱管の有意な減肉はないと考えられる(図-6<sup>5)</sup>)。
- (4) 蒸発部シェルと塔部、加熱部チャンネル、連通管及び気相配管における顕著な肉厚減少は Ti-5Ta 製及び Zr 製蒸発缶とともに認められなかった。したがって以上の結果から、13000 時間の運転試験では、Ti-5Ta 製及び Zr 製蒸発缶とともに寿命に直結する損傷は認められず、装置としての良好な耐食性を確認することができた。

#### 4. 異材継手技術の開発

再処理工程に非鉄金属製機器を組み込む場合には、周辺ステンレス鋼製機器との配管接続の上で、保守作業の軽減を図る意味から漏れに対する信頼性の高い金属接合継手の採用が望ましい。本研究では金属学的に直接溶融接合の不可能な Ti、Ti-5Ta および Zr とステンレス鋼との接合を、固相接合法により実現するための種々の検討を行い、以下の結果を得た。

- (1) 固相接合材接合部の耐食性を、ステンレス鋼と直接界面を形成する材質(インサート材)について比較評価した結果、Ta と SUS304L との界面には選択的な腐食が発生せず他の材料構成の継手に比べて格段に優れた耐食性を示した(表-1<sup>6)</sup>)。Ta インサートの有効性は、Ta/SUS304L 人工金属間化合物の高耐食性により側面的に裏付けられ、妥当なものであることがわかった。
- (2) 接合強度は爆発圧着と熱間圧延継手が安定して高く、他の方法は、相対的にやや劣り、不安定だった。

#### 5. まとめ

- ① 溶接による材料の腐食速度への顕著な影響はないことがわかった。
- ② 実使用環境下での材料の腐食挙動は放射線、核物質の存在等により、純硝酸溶液中と異なることがわかった。
- ③ Ti-5Ta、Zr ともに長期間良好な耐食性を示すことが分かった。
- ④ ステンレス鋼と非鉄金属製機器は、熱間圧延法、爆着法等の固相接合法により、漏れに対する信頼性の高い接続が可能であることがわかった。

### III. 参考文献

- 1) 林正太郎、小島久雄、川口勝之、篠原正朝、河野隆之：日本原子力学会誌、31, 1273 (1989)
- 2) 小泉務、上窪文生、武田誠一郎、林正太郎：日本原子力学会「昭63秋の大会」, L30(1988)
- 3) 小泉務、永井崇之、武田誠一郎、武田宏：日本原子力学会「1989秋の大会」, H19(1989)
- 4) 小泉務、林正太郎、武田誠一郎、上窪文生：日本原子力学会「昭63年会」, H21(1989)
- 5) 山口英俊、武田誠一郎、河田東海夫：日本原子力学会「1991秋の大会」, K11(1991)
- 6) 武田誠一郎、板橋靖、林正太郎：日本原子力学会「1989年会」, L48(1989)

表-1 腐食試験結果の代表例<sup>6)</sup>

材 料 構 成	接合方法	SUS304Lとの界面における局部的侵食の有無(程度)
Ti/SUS304L Ti-5Ta/SUS304L	爆発圧着	有(Ti系…大) (Zr…小)
Zr/SUS304L	摩擦圧接	有(大)
Ti(Ti-5Ta)/Ta/SUS304L Zr/Ta/SUS304L	熱間圧延	無
Zr/Ta/SUS304L	爆発圧着	無
Ti-5Ta/Au系/SUS304L	HIP	有(大)
Zr/Au系/SUS304L	ホットプレス	有(大)
Ti-5Ta(Zr)/白金族/SUS304L	HIP	有(大)
Zr/Ti/Nb/SUS304L	爆発圧着	有(小)

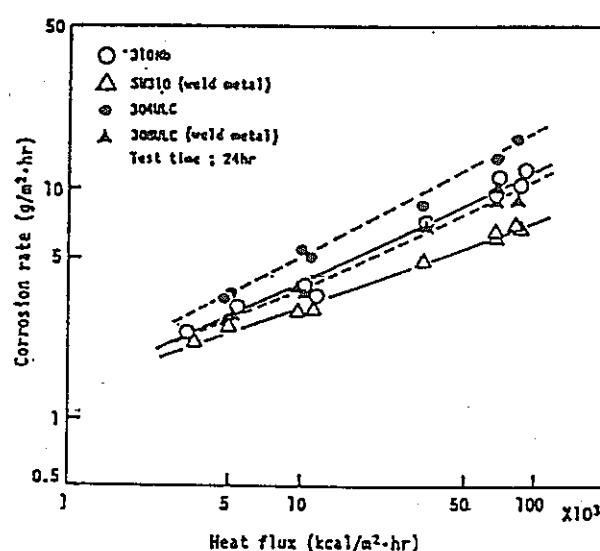


図-1 ステンレス鋼母材及び溶接金属の腐食速度と熱流束の関係<sup>1)</sup>

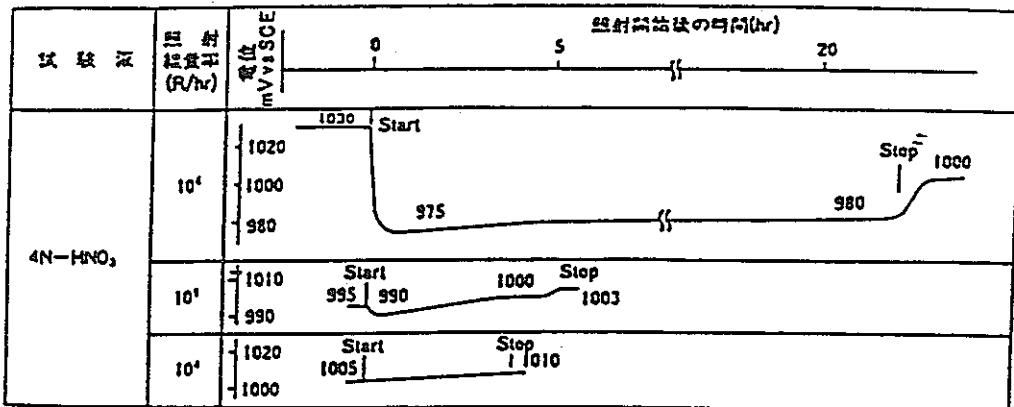


図-2 Ptによる酸化還元電位の経時変化(沸騰)<sup>2)</sup>

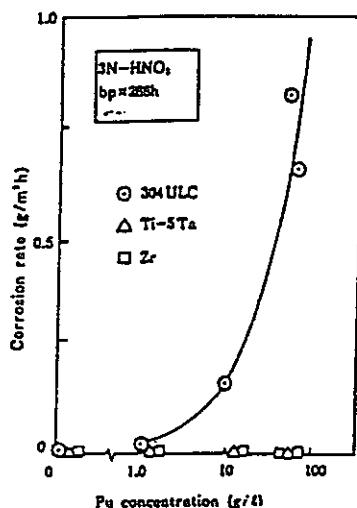


図-3 硝酸Pu溶液中の各種材料の腐食速度とPu濃度との関係<sup>3)</sup>

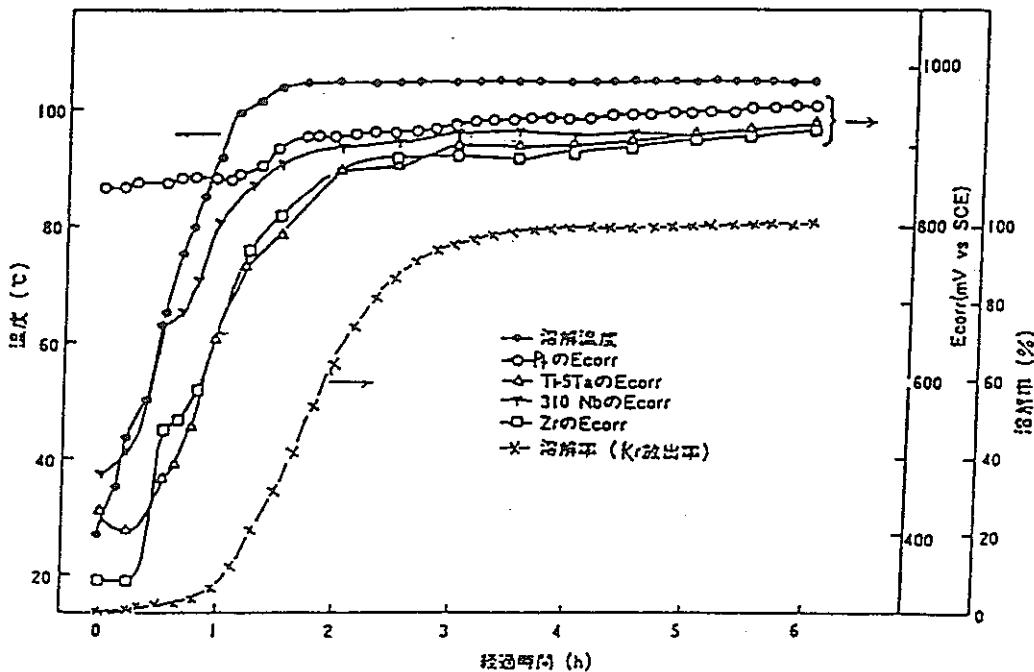


図-4 溶解進行過程における各材料の腐食電位変化<sup>2)</sup>

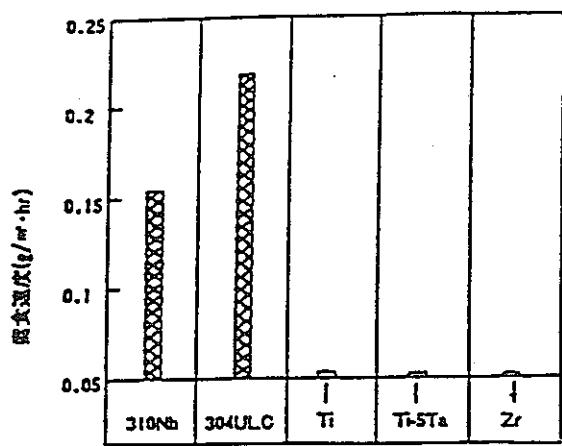


図-5 高速炉使用済み燃料溶解液中での浸漬腐食試験結果<sup>4)</sup>

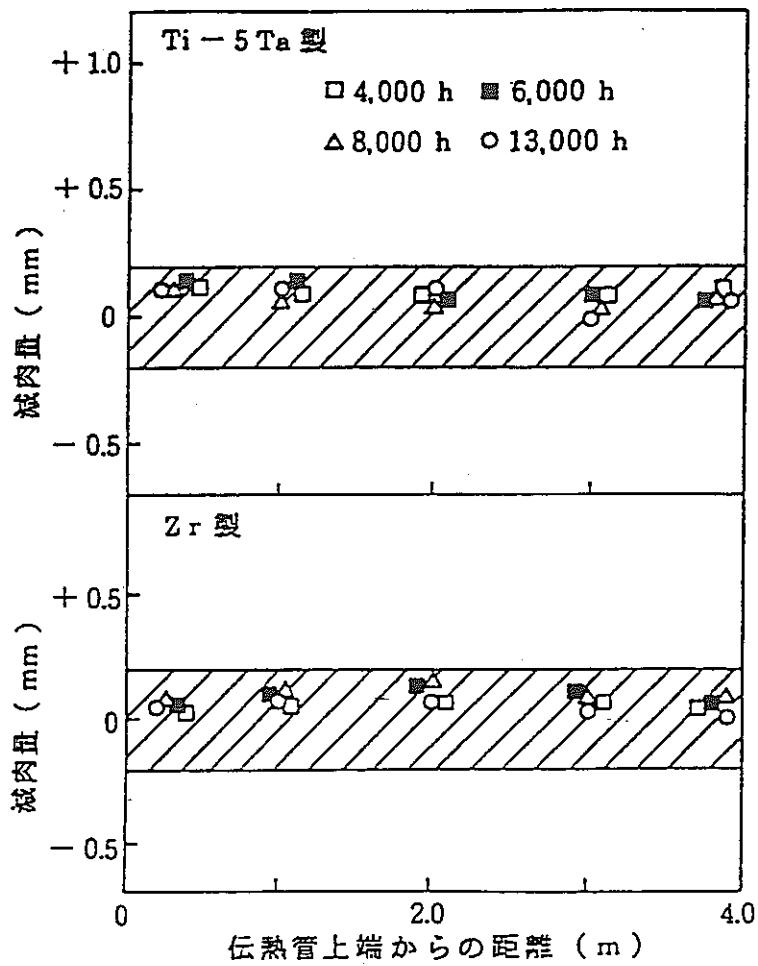


図-6 伝熱管の減肉量分布<sup>5)</sup>

# 使用済燃料の溶解に関する安全性研究

東海・再処理技術開発部

算用子 裕孝, 豊田 修, 滑川 卓志

## I. 研究の概要

高速炉燃料の再処理技術開発において、高速炉燃料の特徴である高プルトニウム富化および高燃焼度燃料の溶解特性を把握することは、再処理施設の安全性評価を行う上で重要な基礎データとなる。本報告書は、高放射性物質研究施設（CPF）において昭和61年度～平成2年度に7回実施した「常陽」MK-I, MK-IIおよび海外高速炉のPhenix炉等で照射された燃料の溶解試験で得られた、溶解速度、不溶解性残渣の性状およびオフガスの発生挙動についての知見をまとめたものである。

## II. 研究成果

### (1) オフガス発生挙動

核分裂生成ガス（FPガス）は、一部は燃料ペレットから燃料ピンガスプレナム部に放出移行し、一部は燃料内に保持される。せん断時のプレナム部FPガスの放出割合は、せん断の開始位置により異なる。燃料ピン上部プレナム部からせん断した場合は、ほぼ100%放出される。逆に燃料ピン下部からせん断を開始した時は通常は最初のせん断で大部分が放出されるが、プレナム部せん断に至るまでに約60%しか放出されないものが見られた。燃料中に保持されたFPガスは、燃料部せん断時によるマトリクス破壊によっても放出されるが、ごく僅かであり、大部分は溶解時に放出される。放出FPガス中の<sup>85</sup>Krをモニターして、全放出量に対して燃料中に保持されていた割合を調べたところ、燃焼度が高くなる程保持率が減少することが分かった（図-1）。

### (2) 燃料溶解速度

#### (a) 溶解速度の測定方法および反応表面積

燃料中に保持されたFPガスは、燃料の溶解に伴って徐々に放出される。図-2は溶解途中のU・Puの化学分析値と<sup>85</sup>Krガス放出挙動を比較したものである。両者にはよい一致が見られ、<sup>85</sup>Krガスマニタ法は、燃料溶解率のモニターとして有効であることが確認された。

図-3は、Pu富化度30%の照射済燃料を硝酸濃度2.5～8.7M, 100°C条件下で溶解した時の<sup>85</sup>Krモニタ法による溶解量をプロットしたものである。溶解の極く初期と終期を除いた範囲ではほぼ直線に近似できる。この直線の傾きを反応表面積で割ることにより、一般的な次元を持つ反応速度定数[mg/cm<sup>2</sup> min]を得ることができる。

燃料の溶解速度は反応表面積の変化に伴って増減し、溶解開始からある時期までは、硝酸が燃料内に浸透していくことにより反応表面積が増大し、極大を経て減少に転ずると考えられている<sup>11</sup>。 CPF試験においては工学的な評価式を得る上で、この曲線変化部を含む部分を直線

近似している。したがって、この範囲では反応表面積（S）は初期値（ $S_0$ ）に等しく一定であるとして、 $S_0$ として便宜的に燃料ピン両端面の開口面積値を採用することとした。図-4は、1～20片の試料片を溶解した時の反応速度の変化を、反応速度（r）が反応表面積の変化率（ $R_s = S/S_0$ ）に比例して変化すると仮定した場合の溶解率（ $\phi$ ）と $R_s$ の関係を示したものである。Taylorらによる未照射のUO<sub>2</sub>ペレットを溶解した場合の文献報告<sup>1)</sup>を合わせて示した。

C P F 試験結果から、反応表面積の変化率 $R_s$ として以下の近似式を得た。

$$R_s = 1.02 - 0.62\phi + 2.75\phi^2 - 3.11\phi^3$$

但し、溶解率 $\phi$ が0.6以下では、 $R_s = 1$ とする。

#### (b) せん断燃料片の開口率による溶解速度の変化

C P F での燃料ピンのせん断は、押し切り型のせん断機によりピン一本毎に行っており、製作試料のせん断端面は真円に近いものが得られる。リサイクル機器試験施設（R E T F）等ではピン束せん断が行われるので、ピン開口端はつぶれて偏平が生ずる。P N C に於けるピン束せん断コールド模擬試験結果では、完全閉塞のものは観察されずに、ほとんどが開口率約40%以上であったと報告している<sup>2)</sup>。照射済燃料の開口端を強制的に偏平化させた時の溶解挙動の測定例を図-5に示した。開口率が約20%以下になると溶解速度が極めて低下することが分かっている。

#### (c) 硝酸濃度による燃料溶解速度の変化

「常陽」MK-IIおよびPhenix燃料（Pu富化度約30%）を対象に硝酸濃度2.5～8.7M, 100°C条件下で溶解した時の硝酸濃度と溶解速度の関係を図-6に示す。溶解速度は硝酸濃度の影響する項について1.7乗<sup>3)</sup>に比例することが分かった。

#### (d) 溶解温度による溶解速度の変化

「常陽」MK-IおよびMK-II燃料を対象に温度変化による溶解速度への影響を図-7に示す。C P F に於ける溶解試験装置は、標準溶解液容積約3.2lの小型溶解槽と約0.5lのビーカースケールの溶解フラスコの2種類を用いている。前者は一回の燃料溶解量が200g程度の溶解に用いており、また後者は数グラム程度の少量溶解に用いている。両者の条件でのArrhenius プロットは明らかに異なる傾向を示しており、小型溶解槽では6 kcal/mol、溶解フラスコでは約11 kcal/molの活性化エネルギーが得られた<sup>3)</sup>。

#### (e) 燃焼度による溶解速度の変化

「常陽」MK-IIおよびPhenix燃料（Pu富化度約30%）を100°Cで溶解した時の燃焼度と溶解速度の関係を図-8に示す。硝酸濃度8M以下の溶解では、燃焼度の増大に伴

って溶解速度が低下する傾向が見られるが、8M硝酸濃度では、燃焼度の違いによる溶解速度の変化は見られない。

以上の知見について、溶解速度反応式<sup>3)</sup>としてまとめると以下のようになつた。

$$r = \kappa [S] [HNO_3]^{1/2} \exp [-E/RT]$$

$$S = S_0 \cdot R_s$$

$$R_s = S/S_0 = 1.02 - 0.62\phi + 2.75\phi^2 - 3.11\phi^3$$

但し、溶解率 $\phi$ が0.6以下では、 $R_s = 1$ とする。

$\kappa$	反応係数	S	見掛けの反応表面積 [cm <sup>2</sup> ]
$S_0$	初期反応表面積 [cm <sup>2</sup> ]	$HNO_3$	硝酸濃度 [mol/l]
E	活性化エネルギー [cal/mol]	R	気体定数 [cal/deg mol]
T	温度 [deg]	$\phi$	溶解率

### (3) 不溶解性残渣

溶解終了後、溶解液をろ過、洗浄して得られた残渣を不溶解性残渣として回収した。不溶解性残渣の主成分はMo(15~30%)、Ru(5~15%)、Rh(約20%)、Tc(5~10%)であり、燃焼度の増大に伴いその発生量が増大することが分かった(図-9)。

[( )内%は、不溶解性残渣中の重量%を示す。]

### (4) 成果のまとめ

照射済の高速炉燃料の溶解について、硝酸濃度、温度等のパラメータに対する溶解挙動、オフガス発生に関する知見が得られた。

### 参考資料

1) R.F.Taylor et al, J. Appl. Chem., Vol. 13, P32(1963)

2) 中川ほか、1986年日本原子力学会年会 G5

3) H.Sanyosh, T.Kawata et al

DISSOLUTION OF MIXED OXIDE SPENT FUEL FROM FBR

The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management RECOD '91

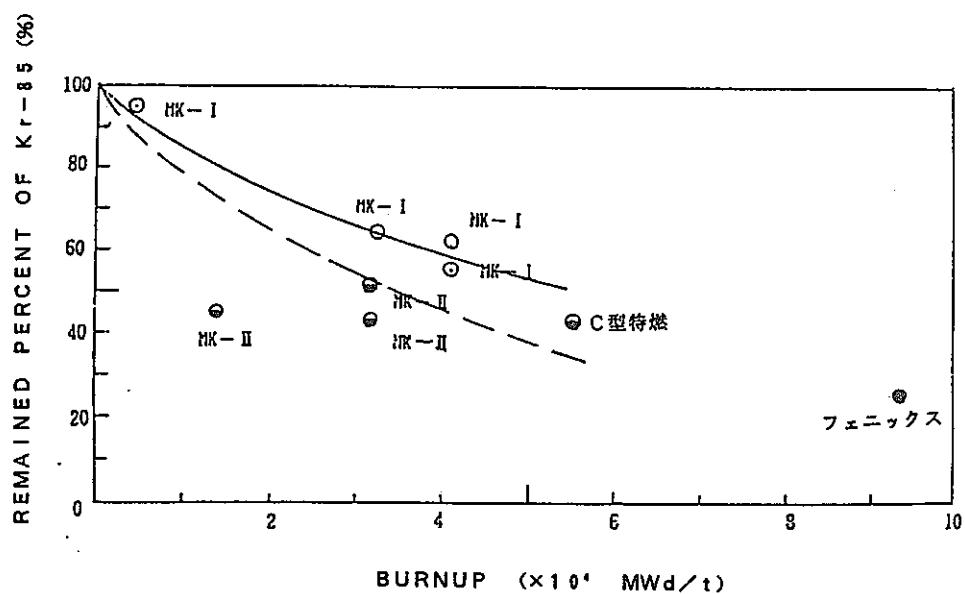


図-1 燃料ペレット中の $^{85}\text{Kr}$ 保持率

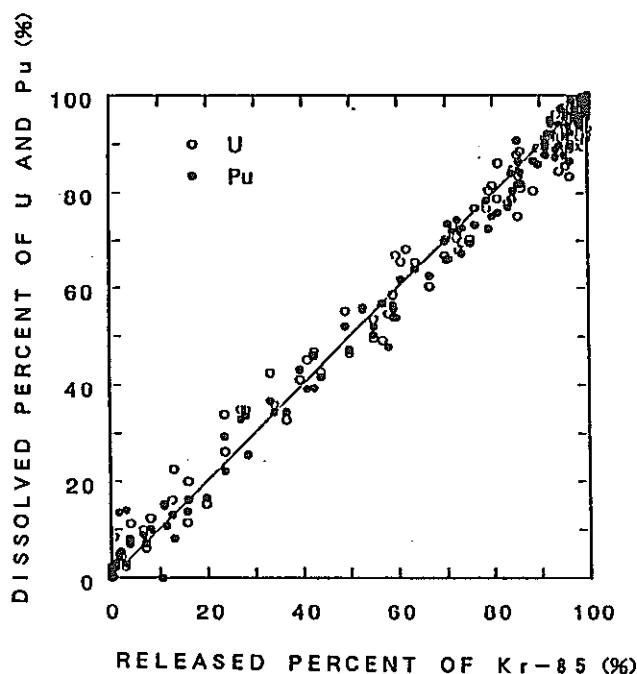


図-2 燃料溶解挙動と $^{85}\text{Kr}$ 放出挙動の比較

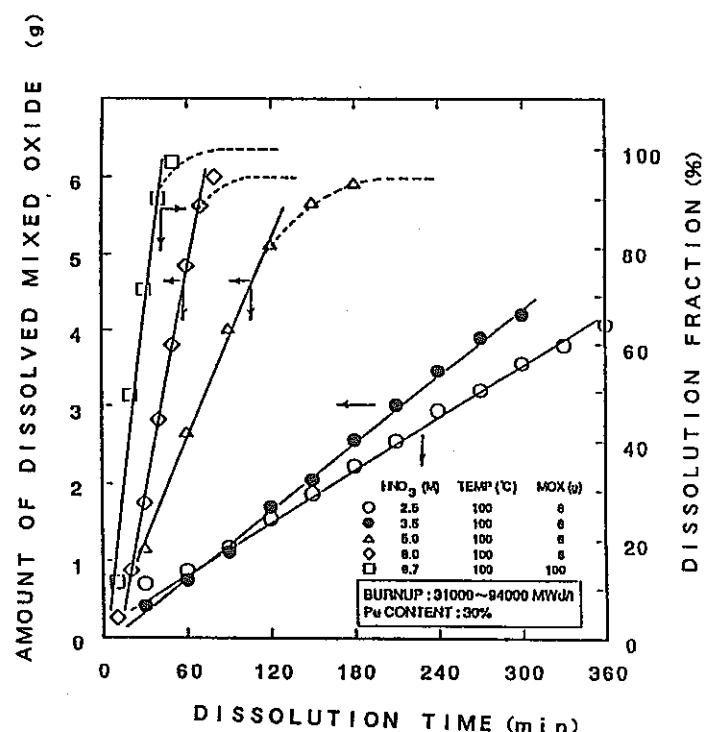


図-3 燃料の溶解挙動

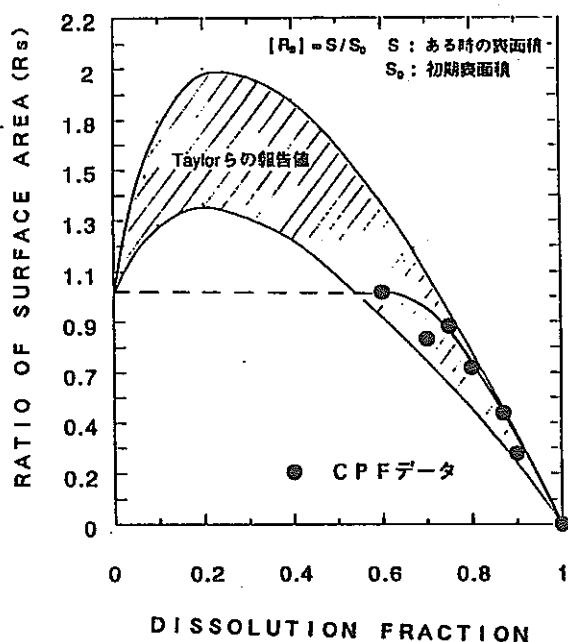


図-4 溶解の反応表面積変化

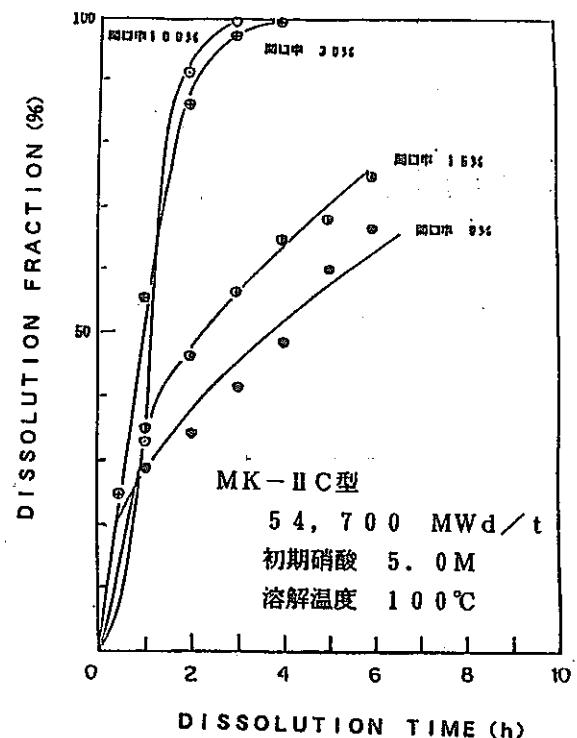


図-5 試料開口率による溶解挙動の変化

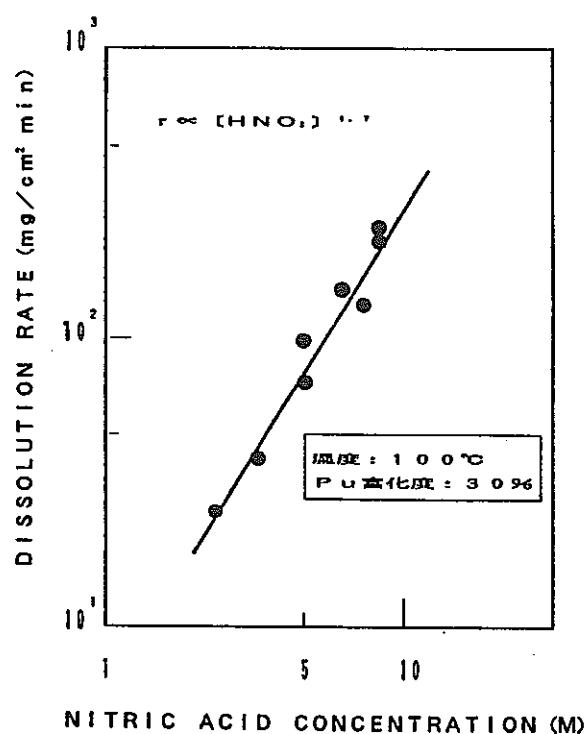


図-6 硝酸濃度による溶解速度の変化

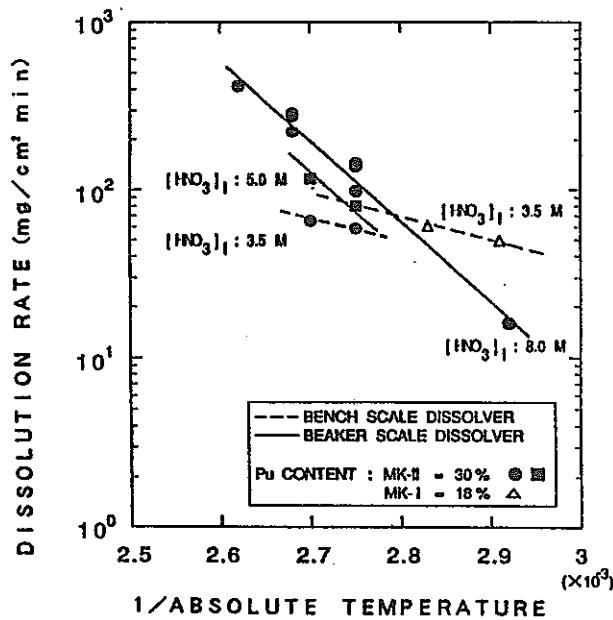


図-7 溶解温度による溶解速度の変化

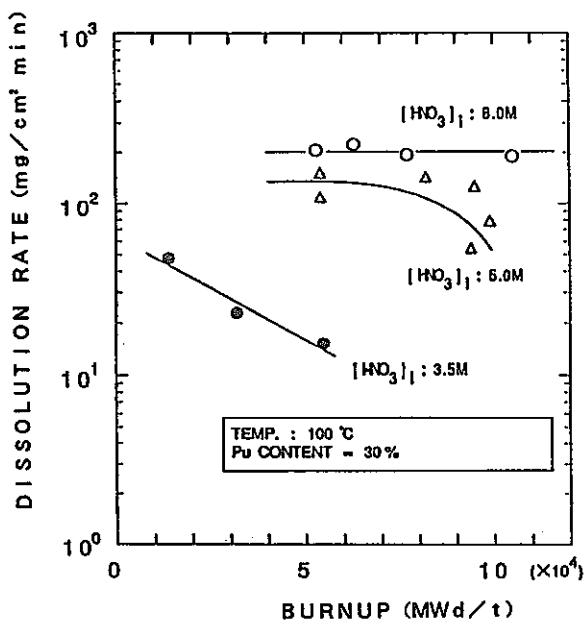


図-8 燃料燃焼度と溶解速度の関係

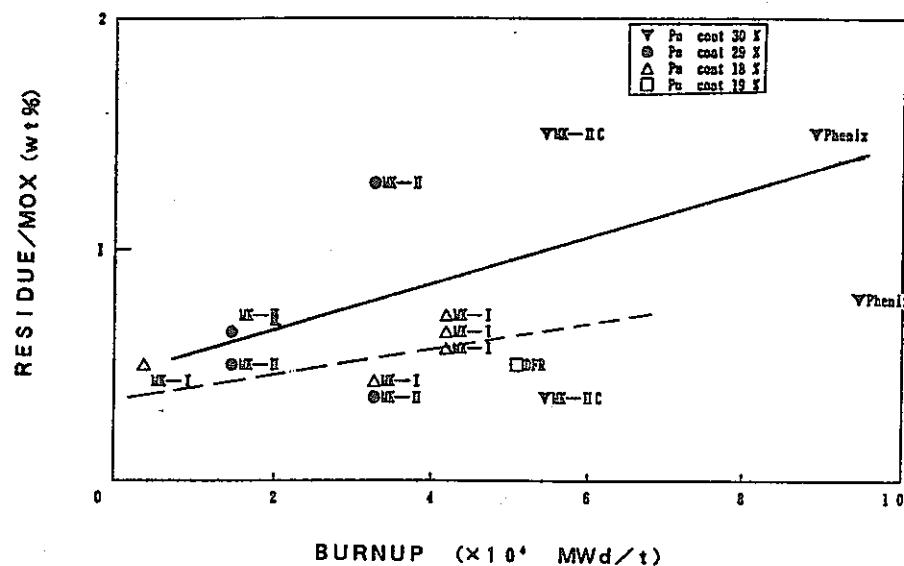


図-9 燃料燃焼度と不溶解残渣発生量の関係

# 抽出工程の異常運転時に関する安全性評価試験

東海・再処理技術開発部 上田吉徳

## I. 研究の概要

再処理施設抽出工程の安定運転時及び異常運転時におけるウラン、プルトニウムの挙動を把握することは、工程・機器の安全設計及び安定運転を維持するプロセス条件決定のために必要である。

これまで、工学規模のパルスカラムシステムを用いたウラン試験実施の後、これを引き継ぐ形でプルトニウム抽出パルスカラム試験装置を据付け、同装置によるウラン試験実施の後、プルトニウム試験として、①共除染工程、②電解還元分配工程、③共除染工程での過渡応答の各試験を順次実施した。また、これらの試験データをパルスカラム抽出シミュレーションコード（PULCO）の計算値と比較した。

## II. 研究成果

### 1. 試験装置の概要

図-1に装置概略図を示す。本装置は約25m<sup>3</sup>のグローブボックス2基（5m×5m×1.1m 2m×10m×1.4m）内に抽出塔、洗浄塔、電解還元塔、逆抽出塔、希釀剤洗浄塔、アルカリ洗浄塔及び酸洗浄塔等のパルスカラム12基と蒸発濃縮槽等の液処理機器が配置され、グローブボックス外の試薬調整機器及びこれらの機器の制御、運転監視を行う中央監視装置から構成されている。この装置により、ウラン約14kg、プルトニウム約2.4kgを使用し共除染、分配（電解還元法、HAN還元法）、精製工程を模擬した各々約8時間の試験が実施可能である。

### 2. 試験結果

#### (1) 共除染工程

図-2に共除染工程試験のフローを示す。共除染工程試験では、供給液の組成、溶媒流量及びパルス条件を一定とし、抽出-洗浄塔内でPuの蓄積が起こらないと予測される範囲で供給液流量をパラメータとして、ウラン及びプルトニウムの抽出挙動を調べた。

図-3に3種類のフローシート条件下での逆抽出塔プロダクト中のU、Pu濃度経時変化を示す。プロセス全体（抽出-洗浄-逆抽出塔）は、約3～5時間で濃度平衡に達している。

また、抽出塔1塔目からの抽出廃液へのPuのリーキ率は最大約0.03%であり、廃液への損失量として良好な結果を得た。

抽出-洗浄塔の運転条件設定に際し考慮すべき項目としてPuの蓄積があるが、本試験条件における運転では、濃度平衡後の抽出-洗浄塔内のPu濃度プロフィルはほぼ一定であり、条件設定時の予測通り、抽出-洗浄塔でのPuの蓄積は起こらなかった。

さらに、ウラン、プルトニウム、硝酸の濃度プロフィルについて、実験値とパルスカラム抽出シミュレーションコード（PULCO）の計算値とを比較した結果を図-4に示す。抽出・洗浄塔のウラン及び硝酸濃度は、両者が比較的よく一致しているが、プルトニウム濃度は、計算値の方が高い結果となっている。逆抽出塔については、ウラン、プルトニウム濃度が、比較的よく一致している。

## (2) 電解還元分配工程

図-5に電解還元分配工程試験のフローを示す。電解還元分配工程試験では、供給液（装荷溶媒）中の重金属（U、Pu）の飽和度及びプルトニウム全量還元に要する理論電気量（プルトニウム還元の電気化学当量）に対する実際の印加電気量の比（ $F/E_q$ ）を変えた2ケースの試験を実施し、プルトニウムとウランの分離性能、還元率、電流効率を確認した。

表-1に電解還元分配工程試験結果を示す。ここでPu除染係数は、電解還元塔のUプロダクト流中のPu量に対する装荷溶媒中のPu量の割合、Pu還元率は、装荷溶媒中のPu量に対する生成したPu3価の量の割合、総括電流効率は、塔全体にかけた供給電流に対するPu3価とU4価の生成に要した電流の割合で示される。2ケースとも、電解還元塔Uプロダクト流中のPu濃度は検出限界以下であり、Puはほぼ全量Puプロダクト中に回収され、良好なPu除染係数を得た。またPu還元率はほぼ100%であった。

図-6に表-1 Run No. IIの場合のウラン、プルトニウムの濃度プロフィルについて、実験値とPULCOの計算値とを比較して示す。ウラン6価、プルトニウム3価については、両者が比較的よく一致しているが、ウラン4価は、1塔目下部で差が生じている。

## (3) 共除染工程での過渡応答試験

共除染工程において一定時間運転した後、異常運転として想定される①抽出溶媒流量減少、②洗浄液の硝酸濃度低下の2ケースの運転条件変動による過渡応答試験を実施し、各々、ウラン及びプルトニウムの抽出挙動を調べた。

運転条件変動後、①のケースでは、抽出塔内のウラン及びプルトニウムの高濃度領域が塔下段へ移行した。②のケースでは、洗浄塔内のウラン及びプルトニウムの濃度が増加した。

但し、両ケース共、本試験条件において2~3時間以内の範囲では、Puリーク率は運転上大きな支障をきたす変化はなく、この時間内であれば定常状態に十分復帰できるものと考えられる。

## 4. 結論

本装置による各種試験により、パルスカラム抽出器内のプルトニウムの抽出挙動、電解還元法によるウラン、プルトニウムの分離性能等を把握した。これらのデータは、再処理施設抽出工程におけるパルスカラムシステムの設計、安定運転を維持するプロセス条件の決定に反映できる。また、パルスカラム抽出シミュレーションコードのフィッティングデータとして資することができる。

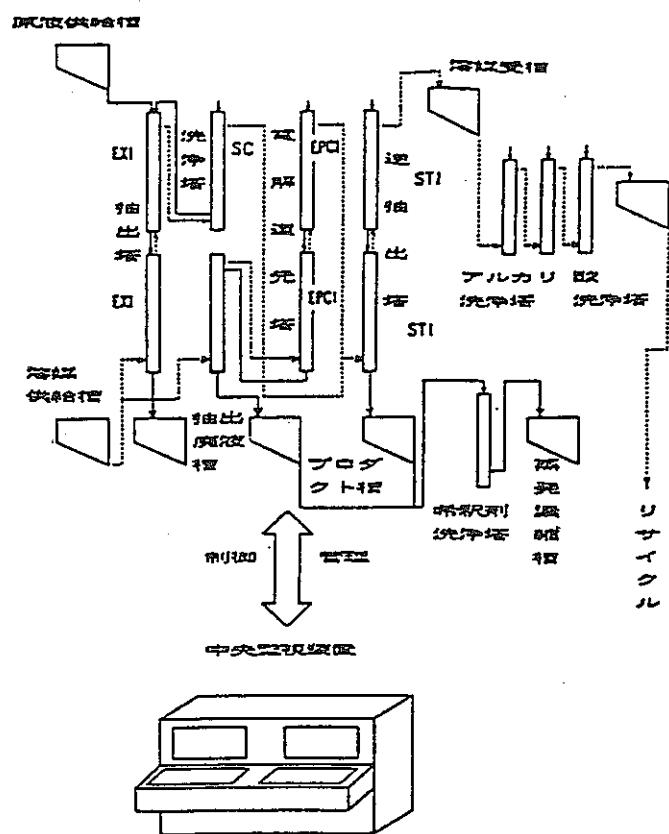


図-1 装置概略図

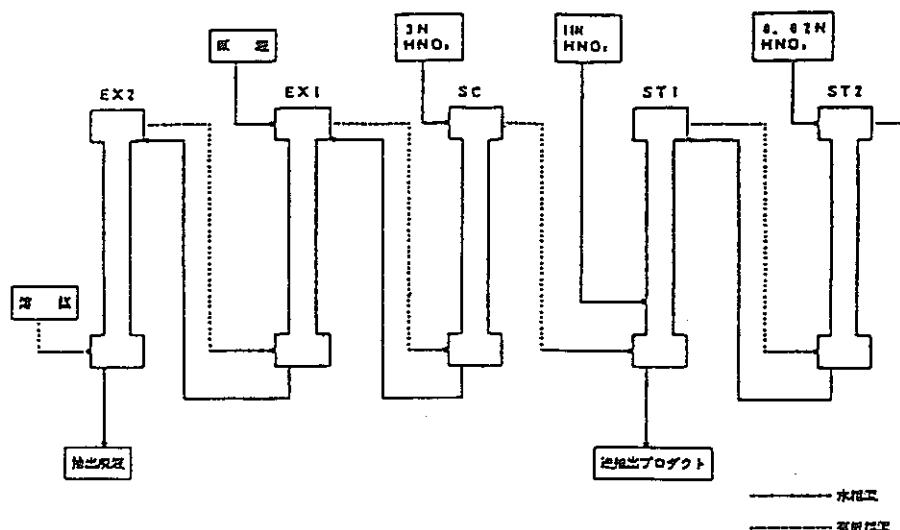


図-2 共除染工程試験フロー

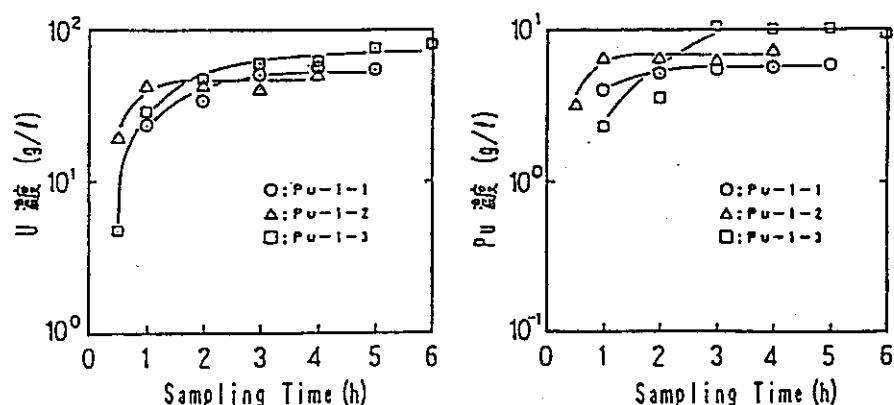


図-3 U、Pu濃度経時変化(逆抽出塔プロダクト)

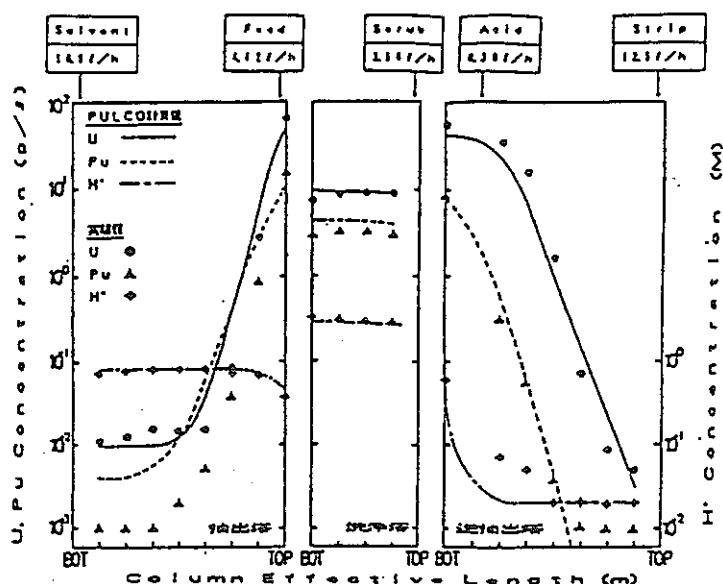


図-4 U、Pu濃度プロファイル

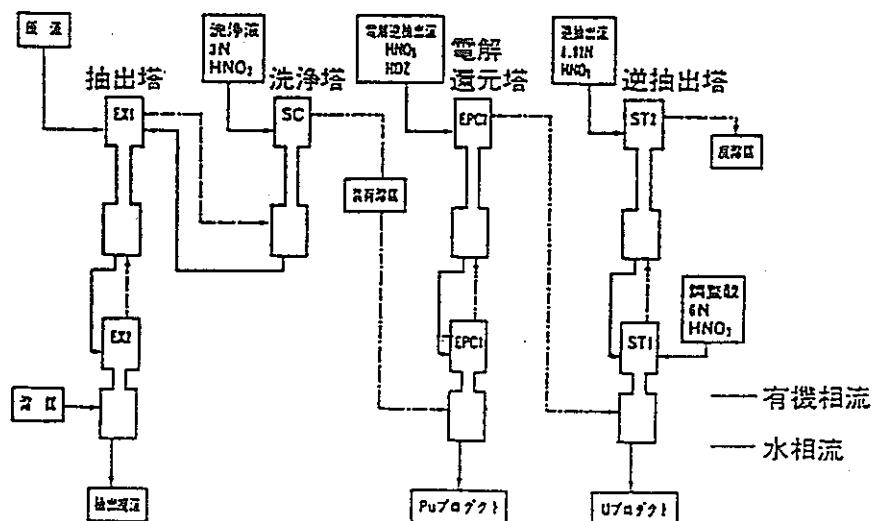


図-5 電解還元分配工程試験フロー

表-1 電解還元分配工程試験結果

Run No.	装荷溶媒 HM飽和度(%)	F/E q	Pu 除染係数	Pu 還元率(%)	総括電流 効率(%)
I	38	2.24	$6.6 \times 10^3$ 以上	92	46
II	67	2.82	$1.0 \times 10^4$ 以上	100	55

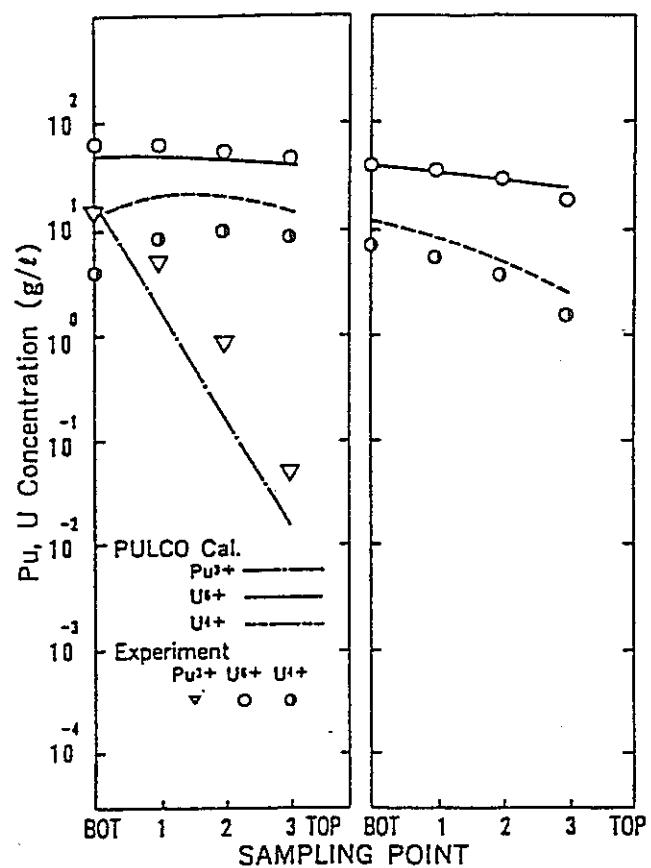


図- 6 電解還元塔濃度プロファイル

# よう素除去・貯蔵技術の開発

東海・再処理工場 伊波慎一

## I. 研究の概要

東海再処理工場の換気系に設置されているよう素フィルタは、ろ材によるよう素吸着材の銀ゼオライト( $\text{AgX}$ )を使用している。しかし、近年では、 $\text{AgX}$ 以外にもよう素吸着材として $\text{AgZ}$ ,  $\text{AgS}$ ,  $\text{AgA}$ 等の各種吸着材が開発され、その有効性が報告されている。

しかし、吸着材の性能は実オフガス中の $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}, \text{NO}_2$ ), 水蒸気等による影響や、換気系に長期間設置されることによる性能劣化及びろ材自身の劣化から生じるよう素脱離等が考えられることなどの不明な点が多く、各種の吸着材の性能評価の報告は実オフガスには、必ずしも当てはまらない。

放射性よう素の放出量低減化においては、このような実オフガス条件を考慮して、再処理工場の実オフガスに適したろ材の選定と、使用する吸着材の最適な運転条件の調査が必要である。

このため、東海再処理工場では  $\text{AgX}$ 等の各種吸着材の性能比較試験（吸着試験、保持能力試験）を、再処理工場の実オフガスを用いて実施してきたので、その試験の概要と結果について以下に報告する。

## II. 研究成果

### 1. 試験概要

#### (1) 吸着材

試験に供した吸着材は、銀ゼオライト( $\text{AgX}$ )、銀モルデナイト( $\text{AgZ}$ )、銀シリカゲル( $\text{AgS}$ )及び銀アルミナ( $\text{AgA}$ )の4種類である。

銀ゼオライト( $\text{AgX}$ )は、合成ゼオライトフォージャサイトX型担体の $\text{Na}^+$ を $\text{Ag}^+$ にイオン交換した吸着材であり、現在、東海再処理工場換気系のよう素フィルタのろ材として使用されている。銀モルデナイト( $\text{AgZ}$ )は、合成ゼオライトモルデナイト型担体に $\text{AgX}$ と同様に $\text{Na}^+$ を $\text{Ag}^+$ にイオン交換した吸着材である。 $\text{AgX}$ と違う点は、ゼオライト構造が基本的に違うこと、アルミニノケイ酸比が高いことである。

銀シリカゲル( $\text{AgS}$ )は、多孔質の非結晶シリカ( $\text{SiO}_2$ )に硝酸銀を添着したものであり、AC6120の名称で商品化されている。

銀アルミナ( $\text{AgA}$ )は、活性アルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )に硝酸銀を添着した吸着材である。

これらの吸着材の仕様を表-1に示す。

#### (2) 通気オフガス

試験は、せん断オフガス(SOG), 溶解オフガス(DOG), HAW貯槽オフガスと一般塔槽類オフガス(VOG)が合流したところからオフガスを分取して各吸着材に通気した。

これらのオフガスは、いずれもアルカリスクラバで処理され、一般塔槽類からのオフガスは槽類オフガス用よう素フィルタが設置されている。

オフガス換気系のフロー及びオフガスを採取した箇所を図-1に示す。

表-1. 吸着材仕様

	A g X	A g Z	A g S	A g A
銀担持法	イオン交換法		添着法	
活性成分	銀イオン ( $\text{Ag}^+$ )		硝酸銀 ( $\text{AgNO}_3$ )	
銀含有率(wt%)	38.7	11.4	12	24
充填密度(g/mℓ)	1.09	0.67	0.66	1.59
粒子形状	ビーズ	ペレット	ビーズ	ビーズ
粒子寸法 MESH	10~16	10~16	1~2mm $\phi$	10~16
比表面積(m <sup>2</sup> /g)	335	500	60	9
圧力損失(mmHg)	23.2	7.8	45	—

\*データは各吸着材カタログより引用した。

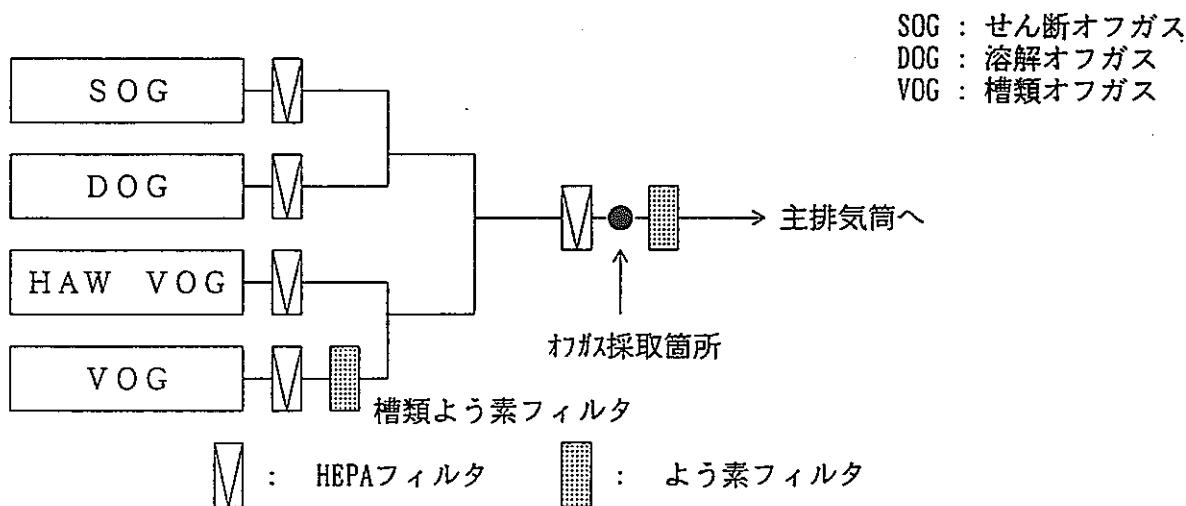


図-1. オフガス換気系フロー

### (3) 試験装置

吸着試験及び保持能力試験に使用した試験装置を図-2に示す。

試験装置は、吸着材を充填する吸着カラム、吸着材出側のよう素量を測定する活性炭サンプラー、オフガスを吸引するポンプ及び流量計を1系統としたラインが4系統あり、他に温度、湿度指示計とオフガスを加熱するヒータを備えている。

### (4) 分析方法

よう素量は活性炭含浸ろ紙1枚と活性炭カートリッジ2個で行い、これらの試料をγ線スペクトル分析装置で測定する。

本装置の検出限界値は1.9Bq/サンプルである。なお、活性炭試料は10%TEDA添着活性炭を使用した。

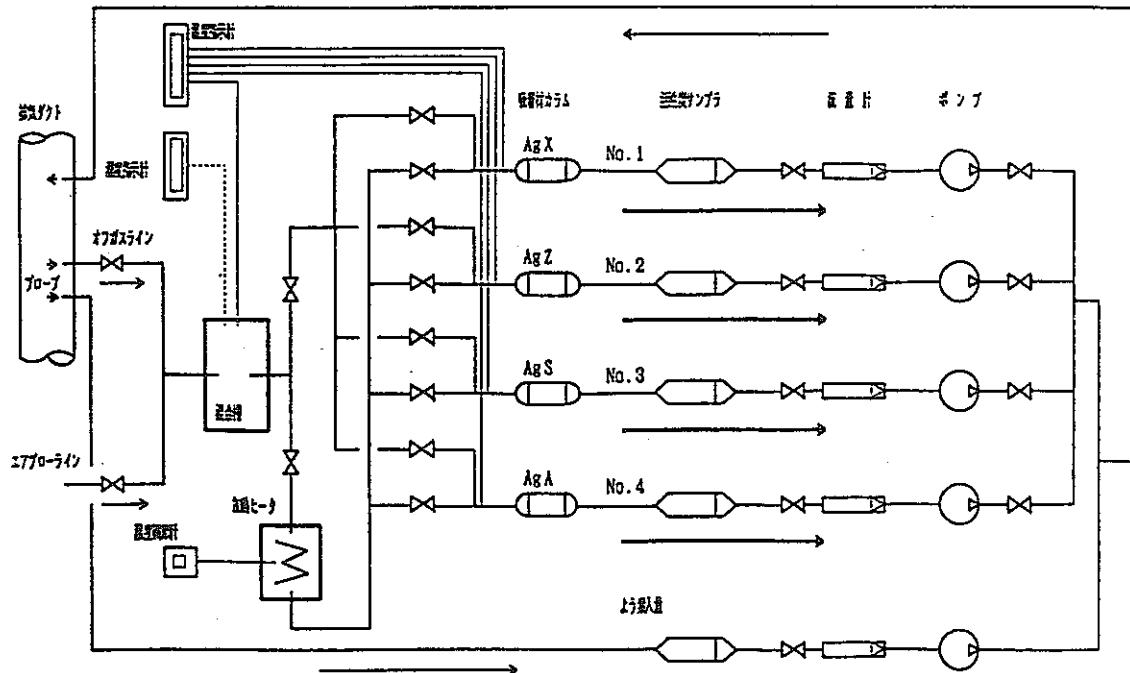


図-2 試験装置フロー図

### (5) 試験方法及び条件

試験は、Run-A と Run-B の 2回行い、それぞれ吸着試験と保持能力試験を行った。

Run-A では、オフガスの加熱温度を 50°C、Run-B では、オフガスの加熱温度を 100°C に設定して吸着試験を実施している。

これら Run-A と Run-B の試験操作条件を表-2 に示す。

表-2. 試験操作条件

	Run-A	Run-B
吸着材装着条件 層厚 容積	50 mm 49.5 mℓ	50 mm 98 mℓ
通気ガス条件 線速 通気流量 加熱温度	16.8 cm/s 10 ℥/min 50 °C	17.0 cm/s 20 ℥/min 100 °C
試験期間 吸着試験	28 日間	96 日間
保持能力試験 (室温) (加熱空気)	12 日間 6 日間 6 日間 (50°C)	18 日間 6 日間 12 日間 (100°C)

なお、オフガスの加熱温度を 100°C に設定した Run-B では、当初予定していた 28 日間の試験期間中では、4 種類の吸着材出側のよう素がすべて検出限界値未満であったため、試験を工場運転期間終了まで延長して行い、96 日間のデータを取得した。

保持能力試験は、吸着試験後、試験装置から吸着材試料を取り外し、一定期間保管後、再度試験装置に装着して行った。

なお、各吸着材の性能評価は、下記の式から表される除染係数 (D F) から行った。

$$D F = C_0 / C \quad (C_0 : \text{吸着材へのよう素入量}, C : \text{吸着材出側よう素量})$$

## 2. 試験結果

### (1) 吸着試験

吸着試験期間中に通気した実オフガスの条件を表-3に示す。

表-3. オフガス条件

	Run-A	Run-B
よう素 ( <sup>129</sup> I) 濃度 期間通気量	平均 $1.3 \times 10^{-5}$ Bq/m <sup>3</sup> $5.0 \times 10^3$ Bq	平均 $9.3 \times 10^{-6}$ Bq/m <sup>3</sup> $2.4 \times 10^4$ Bq
NOx 濃度	800 ppm ~ 5000 ppm	0 ppm ~ 5000 ppm
温度 相対湿度	平均 29 °C 平均 30 %RH	平均 31 °C 平均 30 %RH

Run-A 及びRun-B でのDFと吸着量の結果を表-4, 5に示す。また、通気したオフガス中のような素濃度、NOx 濃度及びサンプル毎のDFの経時変化、またRun-A では工場の主要な工程運転状況を併せたものを図-3, 4に示す

図-2のオフガスを50°Cに加熱したRun-A では、各吸着材のDFは最高で AgZの10.5であり、良い性能は示さなかったが、ゼオライト系吸着材であるAgX, AgZが硝酸銀添着吸着材のAgS, AgAより良いDFを示した。

また、NOx 濃度の上昇に伴い吸着材のDFは低下し、NOx 濃度が下降するに従いDFは上昇する傾向が見られたが、よう素濃度によるDFへの影響は認められなかった。

工場の各工程運転との相関は、各工程が重なっているため明らかにはできなかった。

なお、Run-A での保持能力試験のすべてを終了した後、各吸着材の色の変化を観察した結果、AgX, AgS, AgA は当初白色系であったものが、各々表面から 5mmから10mmの深さまでは赤みを帯びた茶色に変色していたが、それ以降は黄色を帯びた白色に変色していた。AgZ は当初は、黒系の茶色であったものが、表面から5mm から7mm までの深さまで黄色を帯びた茶色に変色し、それ以降は黄色みを帯びた白色に変色していた。

また、オフガスを 100°Cに加熱したRun-B は、各吸着材の出側からのよう素は試験期間中いずれも検出限界値未満であった。なお、NOx 濃度、よう素濃度の変化によるDFへの影響は見られなかった。

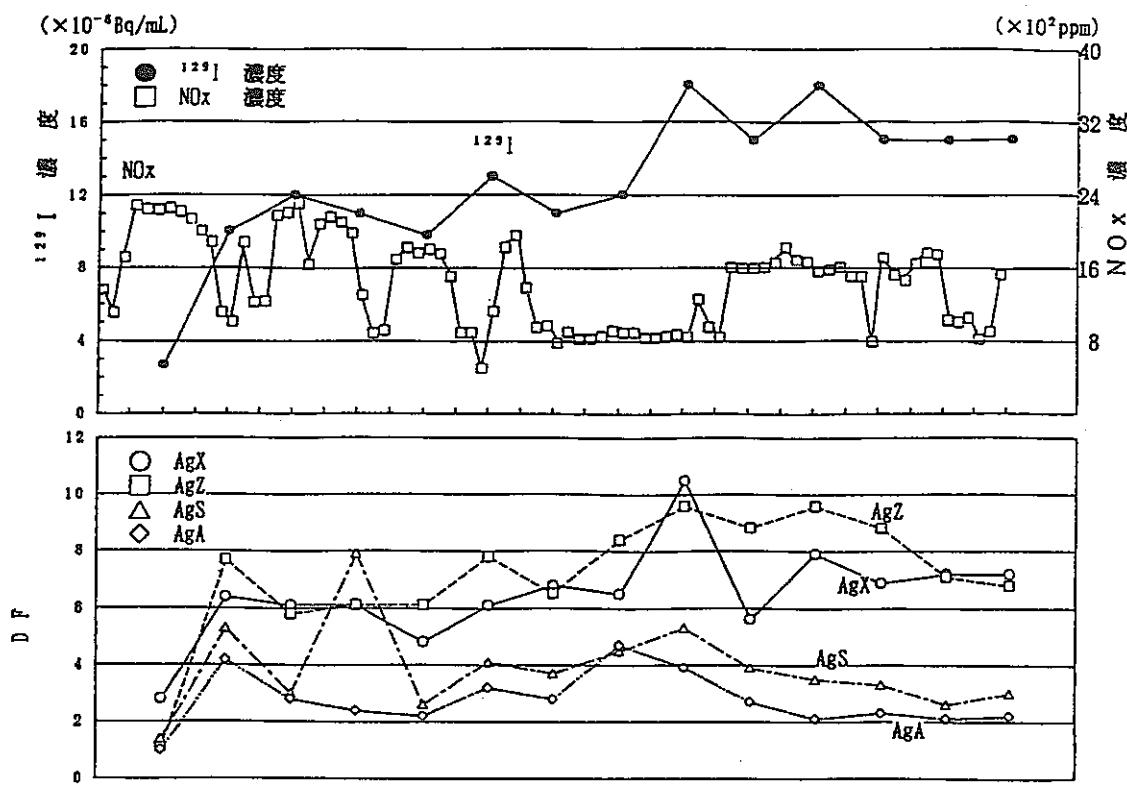
表-4. オフガス加熱50°Cでの各吸着材のDF (Run-A)

	Ag X	Ag Z	Ag S	Ag A
DF	4.8~10.5	5.8~9.6	2.6~7.9	2.1~4.7
吸着量	$4.3 \times 10^3$ Bq	$4.3 \times 10^3$ Bq	$3.7 \times 10^3$ Bq	$3.1 \times 10^3$ Bq

表-5. オフガス加熱 100°Cでの各吸着材のDF (Run-B)

	Ag X	Ag Z	Ag S	Ag A
DF*	10 ~ 10 <sup>3</sup>			
吸着量	$2.4 \times 10^4$ Bq			

\* DF 値は検出限界値から算出している。



Sample Number	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧	⑨	⑩	⑪	⑫	⑬	⑭
溶解工程	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●
抽出工程	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
脱硝工程	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
高放射性廃液処理	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■

図-3 オフガス加熱50°C吸着試験結果 (Run-A)

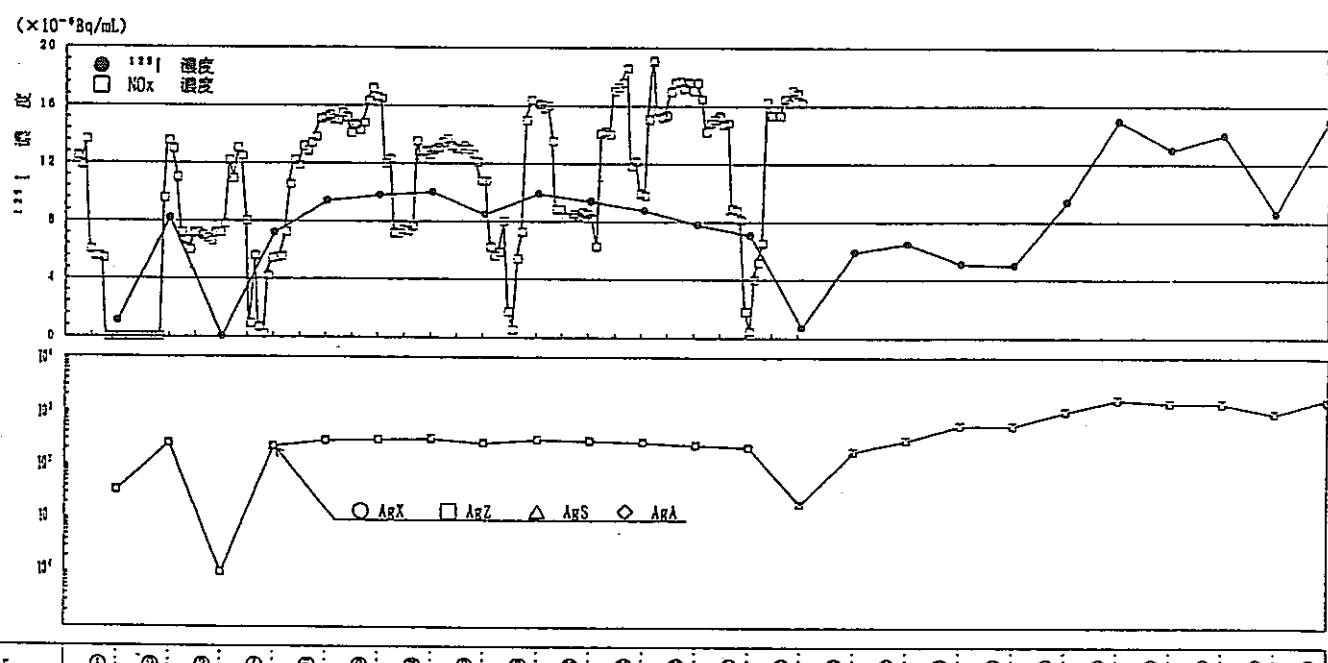


図-4 オフガス加熱 100°C吸着試験結果 (Run-B)

図中のDFは、吸着材出側のよう素がすべて検出限界値であったため、検出限界値から計算して求めた値をプロットした。

### (3) 保持能力試験

試験済吸着材を再度試験装置に装着し、Run-A では室内空気を室温で 6日間、50°Cに加熱した空気で 6日間吸着材に通気した。Run-B では室内空気を室温で 6日間、100 °Cに加熱した空気で12日間吸着材に通気した。

保持能力試験のRun-A 及び Run-Bの吸着材出側で測定されたよう素量の結果を表-5に示す。

表-5. 保持能力試験結果

	A g X	A g Z	A g S	A g A
保持能力試験 よう素量(Bq) R u n - A	5.1	N D	N D	11.1
R u n - B	8.4	15.6	18.1	7.4

N D : 検出限界値未満

Run-A では、AgX とAgA からよう素が測定されたがAgZ とAgS からのような素はいずれも検出限界値未満であった。

Run-B では、AgX等の 4種類の吸着材すべてからよう素が測定されたが、これは吸着試験での総吸着量の0.1 %以下であった。

### 3. まとめ

実オフガスを用いた吸着試験及び吸着後の保持能力試験から、次の結果を得た。

(1). 実オフガスを50°Cに加熱した条件では、各吸着材のDFは約10以下と結果は良くなかった。

しかし、その中ではゼオライト系吸着材である AgX, AgZが硝酸銀添着吸着材のAgS, AgA より若干良い結果を示した。

これらの原因としては、吸着材を構成する担体の比表面積がゼオライト系吸着材は硝酸銀添着吸着材のおよそ5 ~50倍と大きいこと、オフガス中のよう素濃度が低いこと、オフガスの加熱温度が50°Cと低いことが影響していると考えられる。

(2). 実オフガスを50°Cに加熱した条件では、NOx 濃度の上昇によるDFの低下が各吸着材に見られた。

NOx 濃度の影響については、更に NOx中のNOとNO<sub>2</sub> のそれぞれの影響について評価する必要がある。

(3). 実オフガスを 100°Cに加熱した条件では、各吸着材の出側よう素は試験期間中すべて検出限界値未満であった。

このことから、オフガスを高温(100°C) に加熱した条件では、よう素濃度及び NOx濃度の変化の影響を受けないことがわかった。

(4). 吸着試験後、吸着材に室内エアーを通気した結果、吸着材の出側よう素は微量であったことから、よう素は吸着材中に固定化されていると考えられる。

なお、比較試験は工場運転にあわせて継続し、吸着材の性能をさらに調査するとともに、吸着材の物性調査を行い、吸着材性能の総合的な評価を行う。

# クリプトン回収・貯蔵技術の開発

東海・環境技術開発部 林 晋一郎

## I. 研究の概要

使用済燃料の再処理工場から放出される放射能の低減化を図る技術開発の一環として、再処理オフガス中に含まれるクリプトン-85 の回収・貯蔵技術の開発を実施している。回収プロセスについては、広範囲の技術調査研究を行い、種々の回収方法の中から工業界で基本的に既に実証された多くの技術と経験を有している液化蒸留法を採用することとした。その後、基礎試験装置により、クリプトンの分離試験及びオフガス中の不純物除去を目的とした前処理試験を実施し基礎技術の蓄積を図ってきた。これらの実績に加え、実規模での技術実証を図る目的で、クリプトン回収技術開発施設(Krypton Recovery Development Facility ; KRF)を建設し、コールド試験を経て、東海再処理工場の実ガスを使用し開発試験を進めている。

一方、回収されるクリプトンは、高圧ガスとして容器に充てん貯蔵しているが、将来の処分等を考え、ガス状のクリプトンを固定化する新しい貯蔵・処分方法の技術開発を進めている。クリプトンは、不活性ガスのため固定化方法は物理的な方法に限られており、実用技術として有望なゼオライト封入法及びイオン注入法による固定化技術の開発を進めてきた。両技術とも技術的成立性を確認できた段階にあり、プロセスの安全性の点で有利と考えられるイオン注入法を選定し、実用化に向けたコールド試験を進めている。

## II. 研究成果

### 1. クリプトン回収技術開発

#### (1) クリプトン回収技術開発施設(クリプトン施設)の概要

クリプトン施設は、再処理工場のせん断及び溶解オフガスを受け入れ、以下の工程によりクリプトンを分離回収し貯蔵シリンドラに充てん貯蔵する。図-1にクリプトン施設のプロセスフローを示す。設計にあたっては、図-2に示すように主要機器をコンテナに格納するなど、放射性ガスの漏洩対策を充分に講じている。

##### (a) 受け入れ調整系

銀-ゼオライトを吸着材に用い、オフガス中のような素を除去するとともに、原料ガス中間貯槽で、せん断及び溶解オフガス流量の差を吸収し、一定量のガスを次工程に送り出す。

##### (b) 脱酸素処理系

処理ガスに水素ガスを添加し、パラジウム及びルテニウム触媒の充てんされた反応器で、酸素、窒素酸化物等の不純物を水素と反応させ除去する。

##### (c) 吸着処理系

活性アルミナ、モレキュラーシーブ、シリカゲルを吸着材に用いた吸着器に処理ガスを供給し、低温部において配管や装置の閉塞の原因となる水分、二酸化炭素、キセノンをオフガス中から分離する。

##### (d) クリプトン精留系及びクリプトン貯蔵系

主精留塔ではオフガスを冷却液化しオフガス中のクリプトンを分離回収するとともに、回

収蓄積されたクリプトンを含む液は、次のクリプトン精留塔に送られ、濃縮減容される。濃縮されたクリプトンは気化し、貯蔵シリンダに充てん貯蔵する。

(e) キセノン精留系及びキセノン貯蔵系

キセノン吸着器で分離したキセノンを含むガスは、キセノン液化塔でキセノン及び微量に含まれるクリプトンを液化或いは凍結させ窒素を分離した後、再び融解させキセノン精留塔に送りクリプトンを分離する。回収されたキセノンは気化し、圧縮機を用いて貯蔵シリンダに充てん貯蔵する。

(2) 回収試験の結果

表-1にクリプトン施設における回収試験の経緯を示す。施設建設後の昭和58年から昭和62年の間コールド試験を実施した後、昭和62年度末から、再処理工場の実ガスを使用しホット試験を実施した。

コールド試験では、非放射性のクリプトン、キセノンガス等を用い、実ガスを模擬した処理ガス量及びガス組成の原料ガスを供給し、前処理工程の酸素、水分、炭酸ガス及びキセノンの除去性能、精留工程のクリプトン及びキセノンの回収、精留特性等を確認するとともに、各機器の最適操作方法等の運転技術の確立を図ってきた。コールド試験における結果の一例として、前処理工程における不純物の除去性能を表-2に、また、回収クリプトンの組成及び回収率を表-3に示す。このように、前処理工程における不純物除去の性能は十分であり、クリプトン及びキセノンも90%以上の安定した回収操作を行えることを確認した。

ホット試験では、先ず、再処理工場より2バッチのせん断及び溶解オフガスのみを受け入れるとともに、非放射性のクリプトン及びキセノンを用いて運転を行い、受け入れた少量の放射性クリプトンはトレーサとして使用した。これらトレーサ試験は3回実施し、施設のコンティメント機能、放射線管理機能、除染機能等を確認した。その後、再処理工場より受け入れるオフガスの量を段階的に増加させ、合計19バッチ、約 $7.2 \times 10^{14} \text{ Bq}$ の放射性クリプトンを用い、施設内各作業エリアにおける線量当量率、空気中放射線物質濃度等の測定を行い、施設の放射線管理機能・性能をすべて確認するとともに、平成2年度末に開発運転を開始した。

## 2. 回収クリプトンの固定化技術開発

クリプトン固定化方法として、ゼオライト封入法及びイオン注入固定化法の開発を実施した。図-3に、両方法の原理を示す。ゼオライト封入法は、ゼオライトの結晶構造の空洞に、高温高圧下でクリプトンの活性化拡散により封入し、封入時の水分と温度を調整し一種の水熱反応で結晶構造を非晶質化しクリプトンを固定化する方法である。一方、イオン注入法は、グロー放電でイオン化したクリプトンを電界加速し、一方の電極（ターゲット電極）構成金属をスパッタ作用により弾き飛ばし、他方の電極（サブストレート電極）上に沈着させ新しい金属を形成させると同時に、この金属中にクリプトンを注入固定化する方法である。

基礎試験では、それぞれの方法の操作条件を明らかにするとともに、固化体の安定性試験を実施した。これらの試験より、両方法ともクリプトンガスを固定化するプロセスとして利用できる技術的な見通しが得られた。平成元年度からは、放射性ガスを取り扱う上で潜在的危険性がなく安全性の面で優位と考えられる、低圧で常温プロセスのイオン注入法を選定し、実用に向けた技

術開発を実施している。

イオン注入装置のシステム構成を図-4に示す。注入容器の形状は、スパッタされた金属原子がサブストレート電極面に有効かつ均一に付着させるため、同軸円筒状形状を採用した。容器内部中央部に、スパッタされるターゲット電極を配置し、外側のサブストレート電極の内表面にクリプトンを含む金属固化体が形成される。注入装置は、注入容器に電力を供給する電源装置、容器内のガス圧力を制御し一定流量でクリプトンを供給するガス供給系、自動制御装置等から構成される。

イオン注入法によりクリプトンを固定化するには、

- (1) 高い密度にクリプトンを固定化でき、かつ、形成された固化体からのクリプトンの放出がなく安定であること。
- (2) 注入速度が大きくかつ消費電力が少ない注入固定化が行えること。

が要求され、これは、スパッタされるターゲット電極材料の種類が支配的となる。このため、アモルファス合金を形成する2種の金属の組合せを変化させ注入試験を行い注入性能を比較した。その結果を図-5に示す。注入速度及び注入効率ともNi-Yが最も性能が良いことが判明し、ターゲット材料に選定した。また、形成された固化体の評価試験結果を表-4示す。

次に、スパッタ膜を連続的に成長させ数cmの厚みのクリプトンを含む固化体を形成するには、グロー放電を安定に維持し、1000時間オーダーの注入運転を続ける必要がある。これには、スパッタ金属の絶縁部への付着を防止し電気的絶縁を維持する容器構造の開発及び放電電圧及びガス圧力を放電状態によって制御するシステムの開発が必要となる。これらは、段階的に注入時間を増加させた試験を行い、容器構造及び制御システムに改良を加え解決してきた。表-5に、これまで最も多くのクリプトンを注入した試験結果を示す。このように、約300Nlのクリプトンの注入を達成するとともに連続注入運転への見通しを得ることができた。

### III. 結論及び今後の計画

#### 1. クリプトン回収技術開発

クリプトン施設におけるコールド試験・ホット試験等の結果から、再処理オフガス中のクリプトン-85を回収する技術として液化蒸留法の有用性および安全性を確認できた。今後は、再処理工場の実ガスを使用した開発運転を継続実施し、省力化技術の開発を行い再処理コストに与える影響の少ない効率的なクリプトン回収技術を確立するとともに、気体廃棄物の効率的処理の観点から、炭素-14、ヨウ素-129等も合わせて統合処理し処分体化する技術の確立を図る。

#### 2. 回収クリプトンの固定化技術開発

ゼオライト封入法及びイオン注入法によるクリプトンガスの固定化技術の原理実証を行った。今後は、イオン注入プロセスの実用化に向け、非放射性のクリプトンを用いた大型容器の開発及び処分を考慮した固化体の特性評価を実施するとともに、実ガスによるホット試験を行い回収クリプトンの固定化による貯蔵及び処分技術の確立を図る。

以上

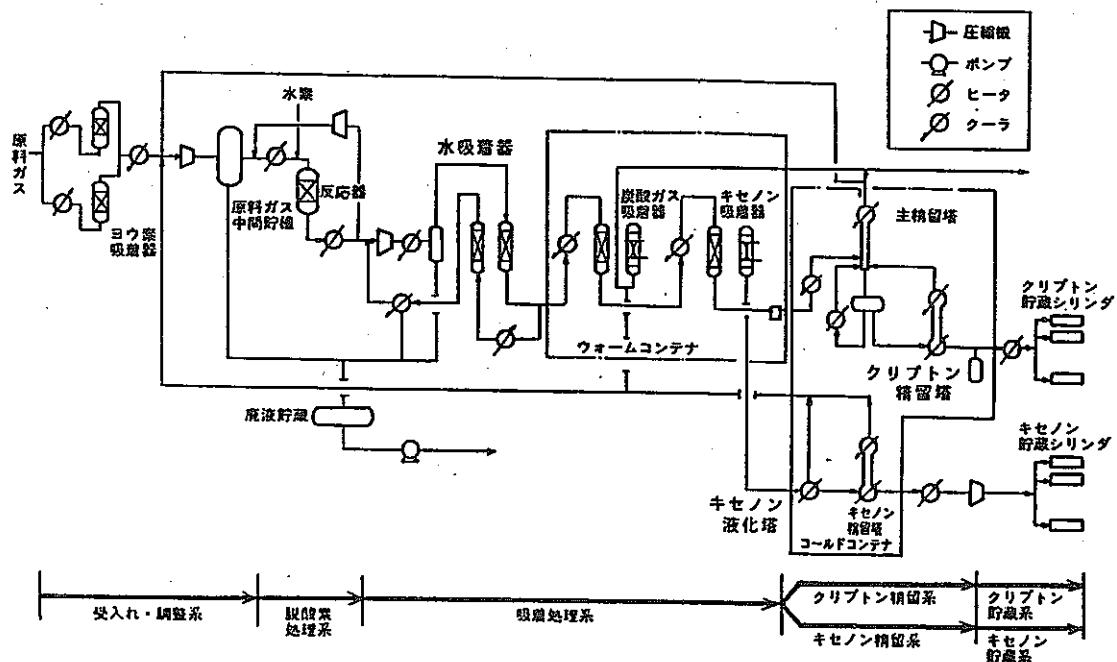


図 1 クリプトン回収技術開発施設のプロセスフロー

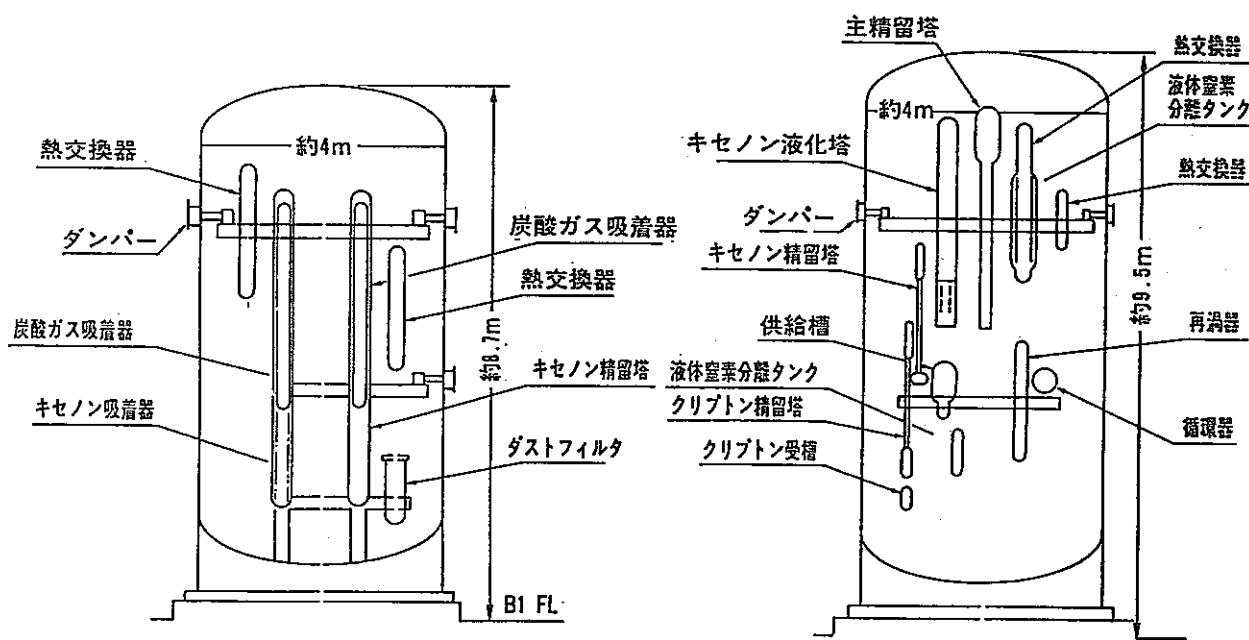


図 2 コンテナ内機器配置図

表-1. クリプトン施設の試験経過

年度	試験期間	試験日数	試験内容
58	コールド試験(I)	25日	受入調整系・脱酸素処理系特性試験
	コールド試験(II)	54日	吸着処理系特性試験
59	コールド試験(III)	43日	主精留系特性試験
	コールド試験(IV)	54日	クリプトン精留系特性試験
60	コールド試験(V)	45日	キセノン精留系特性試験
	コールド試験(VI)	59日	総合連続試験
61	コールド試験(VII)	6日	取合部バランス試験
	コールド試験(VIII)	33日	非定常モード試験
62	コールド試験(IX)	47日	総合機能確認試験
	コールド試験(X)	52日	総合機能確認試験
63	コールド試験(XI)	45日	総合機能確認試験
	ホット試験(I)	52日	受入量 約 $7.4 \times 10^{13}$ Bq 安全性確認試験
01	ホット試験(II)	64日	トレーサ試験(受入なし)
	ホット試験(III)	45日	トレーサ試験(受入なし)
02	ホット試験(IV)	62日	受入量 約 $3.1 \times 10^{14}$ Bq 試験
02	ホット試験(V)	60日	受入量 約 $3.3 \times 10^{14}$ Bq
	開発運転(I)	67日	主精留塔系自動化試験

表-2. 前処理工程における不純物の測定結果  
(コールド試験)

測定場所	測定対象 (単位)	濃度	
		測定値	基準
反応器出口	O <sub>2</sub> 濃度 (ppm)	0.1 ~ 0.9	1
水吸着器出口	露点 (°C)	-80 ~ -79	-76
CO <sub>2</sub> 吸着器出口	CO <sub>2</sub> 濃度 (ppm)	~ 0.2	1
Xe 吸着器出口	Xe 濃度 (ppm)	~ 0.8	1

表-3. クリプトン・キセノンの回収結果  
(コールド試験)

試験番号	供給期間 (日)	供給量 (Nℓ)	回収ガス純度 (%)	シリング充填率 (%)	プラント回収率 (%)
CT9	22	Kr	2010	95	83
		Xe	15500	99	95
CT10	17	Kr	1480	94	79
		Xe	10800	99	93
CT11	18	Kr	2020	93	83
		Xe	10600	99	93

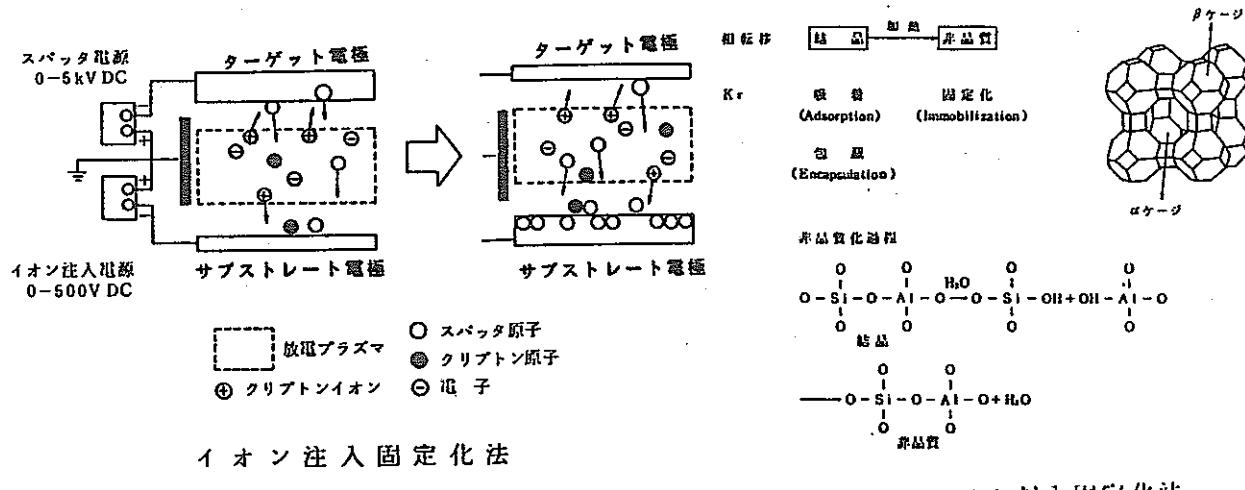


図-3. クリプトン固定化法の原理

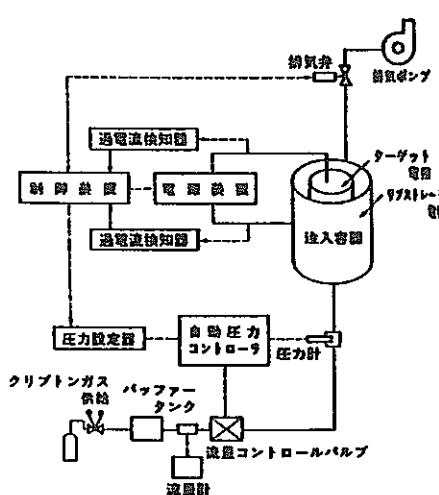


図-4. イオン注入システム構成図

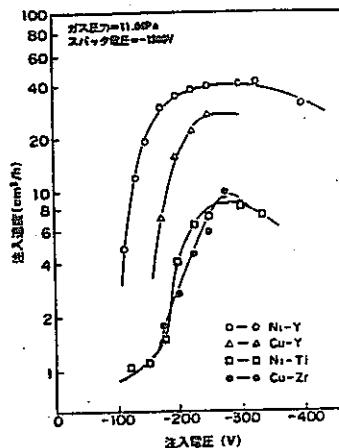
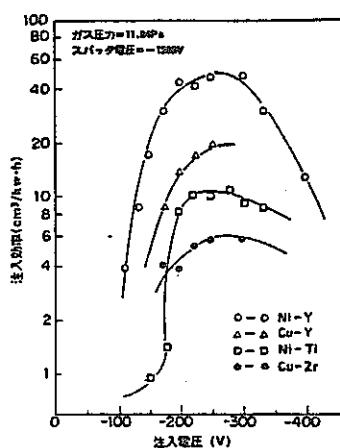


図-5. ターゲット選定試験結果

表-4. 固化体評価試験結果

項目	測定結果
クリプト含有量	28.5 cc/g
固化体の密度	6.5 g/cm³
熱伝導率	$2.1 \times 10^{-2}$ cal/cm s °C
注入クリプトン密度	8.1 atm % (計算値)
注入クリプトン量	190 cc/cm³ (計算値)
固化体構造	アモルファス構造

表-5. 長期運転の結果

項目	試験結果
注入クリプトン量	303 Nℓ
注入時間	1610 時間
積算消費電力	5700 kWh
平均注入速度	190 cc/hr
平均注入効率	53 cc/kWh
ターゲット消費量	11.7 kg (利用率90%)

# プルトニウムの包蔵性に関する研究

東海・プルトニウム燃料工場 佐藤寿人

## I. 研究の概要

プルトニウムの包蔵性に関する研究として以下の調査、試験・検討を行った。

1. グローブボックスの供用期間中の気密性試験（以下、ISI）技術の開発及びグローブボックスの気密性の経時変化
2. プルトニウムエアロゾルの挙動評価
3. 地震及び停電時におけるプルトニウム包蔵機能

## II. 研究成果

### 1. グローブボックスの供用期間中の気密性試験の検討

#### (1) ISI の方法の検討

グローブボックスの供用期間中の気密性試験について、技術的調査、検討、実験等を加えた方法のうち実用性の高いものについて、表-1に示す。

また、これらの方針について以下の知見が得られている。

##### (a) 洩れなし容器法（又は大気圧比較法）

供用中のグローブボックスの給気、排気を止めることができると認められるか否かについて課題を残している。これには安全上のリスクが極めて大きい。

##### (b) 酸素分析法

不活性ガス雰囲気で使用するグローブボックスに限っては有効な方法である。

##### (c) ハロゲンガスリーク法

供用状態において用いることができる唯一の方法といえる。ただし、次の留意点を考慮する必要がある。

① $9m^3$  のグローブボックスによる実験では、準備から ISI 完了まで 5 日間も費やしているため、操業に与える影響が大きい。

② $100m^3$  を超えるような大型のグローブボックスの ISI には約 50 日間を要すると推定されるため、操業に与える影響が極めて大きい。

#### (2) グローブボックスの経年変化

十分な安全対策が可能な約 10 年間使用したグローブボックス（解体のためグリーンハウスで覆った状態のグローブボックス）に対して渉れなし容器法により経年変化の評価を行った事例から次の知見を述べることができる。

(a) 約 10 年間の供用期間においてもパネルシールド部分からの異常が皆無であったことからパネルシールド部分の経年変化は比較的小さいものと推定される。

(b) 安全上の問題とするものではないが、給排気のバランスをコントロールするためのバルブからのリークが最も大きい。

(c) グローブボックスの閉じ込め機能は、グローブボックスの気密性と負圧維持により確保されているが、実用上は負圧によるところが最も大きい。

## 2. プルトニウムエアロゾルの挙動評価

プルトニウムエアロゾルの挙動評価のうち主に排気系への移行率に着目し、調査及び試験を行った。

### (1) プルトニウム燃料第二開発室の移行率調査

プルトニウム燃料第二開発室を対象に3ヶ月間で排気系から放出された核燃料物質の量、その間の核燃料物質取扱量、高性能エアフィルタの捕集効率から排気系への移行率を求める調査を行った。これにより求められた移行率はおおよそ $10^{-5}$ であった。

なお、排気系から放出された核燃料物質の量は、排気量と排気中の放射性物質の濃度の積として求められるが、放射性物質の濃度は実際には検出限界値以下であったため、放射性物質の濃度は検出限界値として計算した。

### (2) グローブボックス内移行率試験

グローブボックス内で酸化プルトニウム粉末を粉末容器に入れ攪拌することにより、プルトニウムエアロゾルを発生させ、粉末容器の開口率、グローブボックスの換気回数をパラメータとしてグローブボックス排気口へ移行する移行率を把握する試験を行った。試験概要を図-1に、試験条件を表-2に示す。

また、これらの試験から以下の結果を得た。

(a) 移行率は、粉末容器の開口率に依存する。この傾向を図-2に示す。この図から粉末容器の開口率が増加すると移行率が直線的に増加している様子がわかる。

(b) グローブボックスの通常の換気回数(3~14回/h)の範囲では、移行率は換気回数に必ずしも依存しない傾向がみられる。この傾向を、図-3に示す。

これは、換気回数3、14回/hの場合、グローブボックス内気流はグローブボックス中央部で滞留を生じ、エアロゾルは比較的ゆっくり排気口に移行するが、8回/hの場合は滞留が生じず、気流がグローブボックス天井部に衝突し、天井面を這うようにして排気口に移行する。このため、エアロゾルは天井面に付着し、排気口に移行するエアロゾル量が減少するためであると考えられる。各換気回数でのグローブボックス気流の状態を図-4~図-6に示す。

(c) 本試験による移行率の最大は、 $1.3 \times 10^{-5}$ (粉末容器開口率100%、換気回数3回/h)であった。

## 3. 地震及び停電時におけるプルトニウムの包蔵機能

プルトニウム包蔵機能のうち主にグローブボックスに着目して地震(耐震構造)及び停電時の負圧挙動について評価を行い、以下の知見が得られた。

(1) グローブボックスの耐震構造については、プルトニウム燃料第三開発室で使用している同一構造のユニットを用いて加振試験を行った。この試験に用いたグローブボックスの概要図を図-7に示す。試験に用いた地震波の最大入力加速度は最大で、設計用地震力の約1.5倍の1000galとした。

加振試験の結果、グローブボックスのアクリルパネルに発生する応力、内装設備に発生する応力及びグローブボックスの最大相対変位とも十分小さいことを確認した。これらを表-3に示す。また、1000gal加振時のグローブボックス及び内装設備の応答加速度の最大値模式図を図-8に示す。

なお、加振試験後にハロゲンリーク・ディテクタ法で気密試験を行い、グローブボックスの気密性が変化していないことも確認した。

(2) 停電時におけるグローブボックス内の負圧の挙動については、試運転段階のプルトニウム燃料第三開発室のグローブボックスを用いて評価試験を行った。これにより停電し、非常用発電機が定格出力に達するまでの30秒間において負圧警報レベル(5mmH<sub>2</sub>O)に対して裕度ある負圧が維持されることを確認した。これは、主に排風機の慣性回転によるものである。

例としてペレット製造工程のグローブボックスの停電時のグローブボックス負圧変動を図-9に示す。この図では、グローブボックス負圧の最小値は6.3 mmH<sub>2</sub>O であった。

表-1 ISI の方法

検査方法	基本原理	前提条件
洩れなし容器法 大気圧比較法	圧力変動	<ul style="list-style-type: none"> <li>当該系統の給氣、排氣を止めること。</li> <li>接続系統を気密上縁切りすること。</li> <li>グローブ、ビニルバッグの膨らみを完全に抑えること。</li> </ul>
酸素分析法	空気濃度	<ul style="list-style-type: none"> <li>グローブボックス内が低酸素濃度かつ安定していること</li> <li>グローブからの浸透酸素濃度が正確に把握できていること</li> </ul>
ハロゲンガス リーク法	専用検出 ガス濃度	<ul style="list-style-type: none"> <li>被検査面を外部からハロゲンガスで約 3.0 mmH<sub>2</sub>O に加圧できること。</li> <li>加圧エリアからハロゲンガスが漏洩しないこと。</li> </ul>

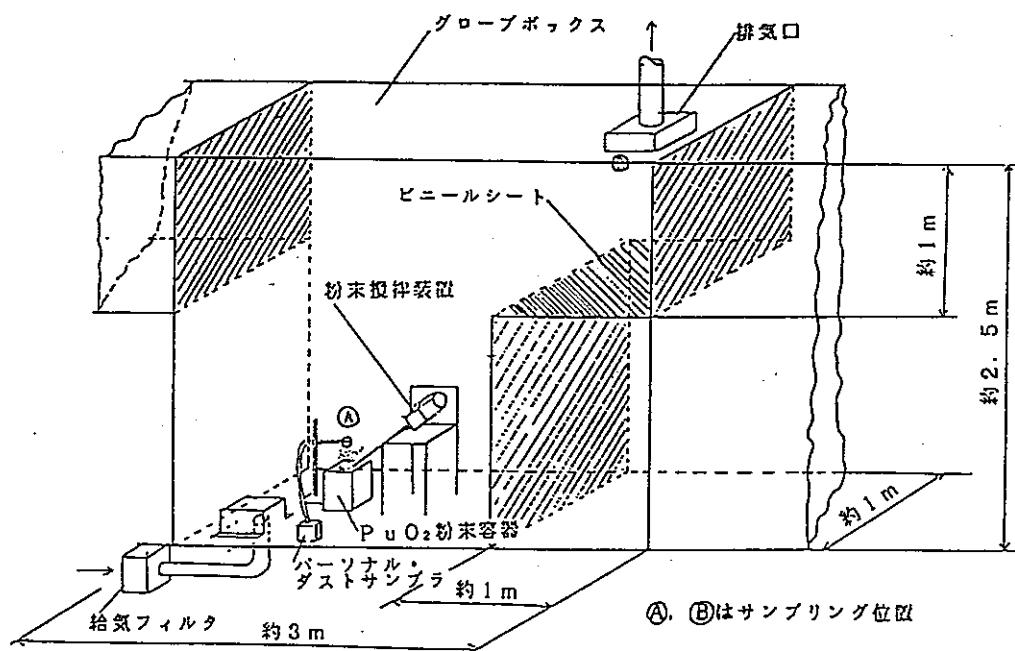


図-1 プルトニウムエアロゾル挙動評価試験概要図

表-2 試験条件

試験ケース	PuO <sub>2</sub> 重量	粉末攪拌時間	粉末容器開口率 <sup>1)</sup>	換気回数
1	1490g	5分間	10%	3回/h
2			50%	3回/h
3			100%	3回/h
4			100%	8回/h
5			100%	14回/h

注1)粉末容器開口率とは、粉末容器開口面積(100cm<sup>2</sup>)に対する比率である。

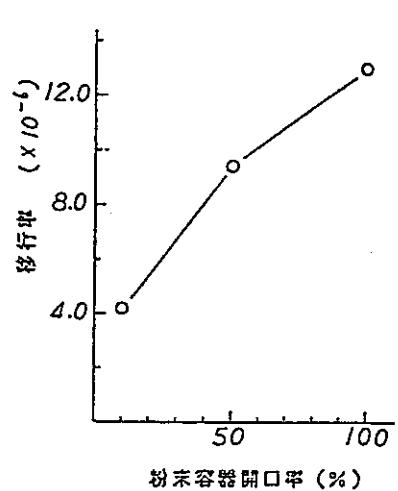


図-2 粉末容器開口率  
と移行率の関係

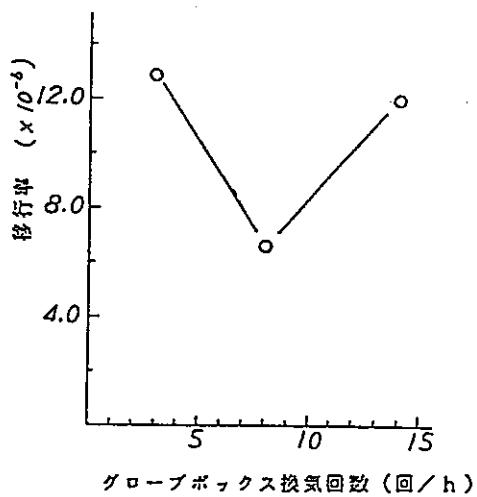


図-3 グローブボックス換気回数  
と移行率の関係

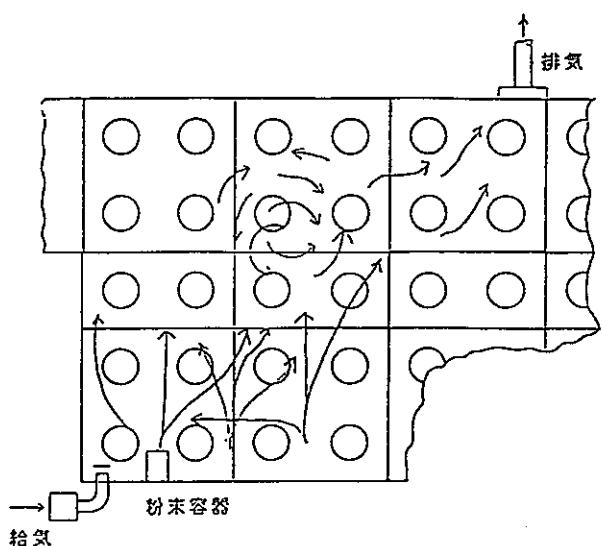


図-4 グローブボックス内気流状態  
(換気回数3回/h)

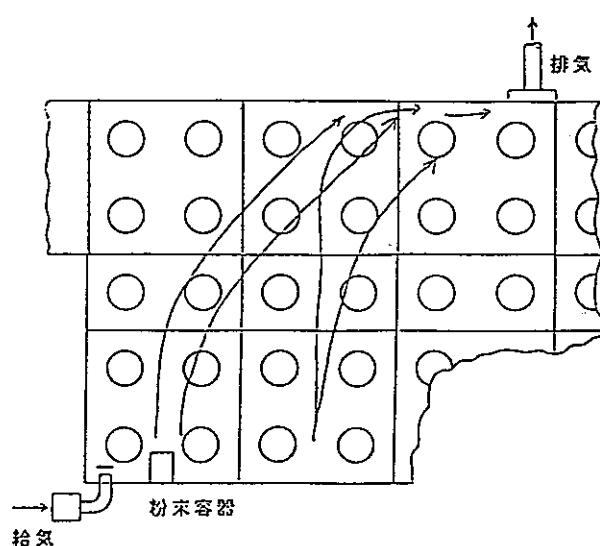


図-5 グローブボックス内気流状態  
(換気回数8回/h)

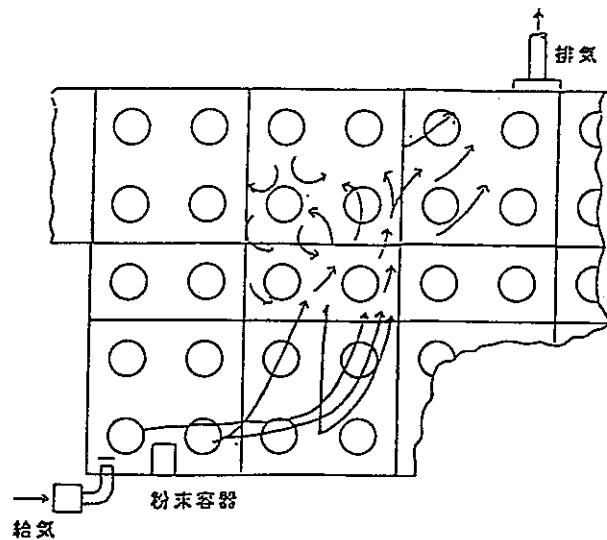


図-6 グローブボックス内気流状態  
(換気回数 14回/h)

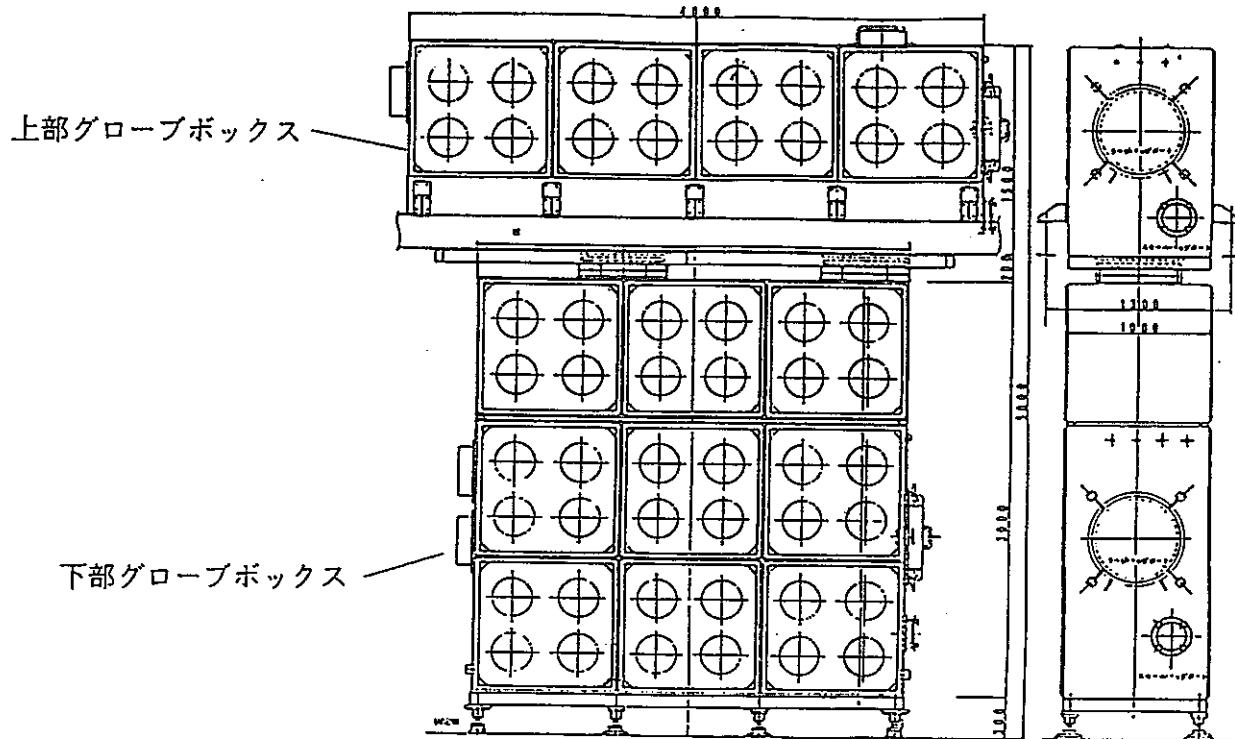
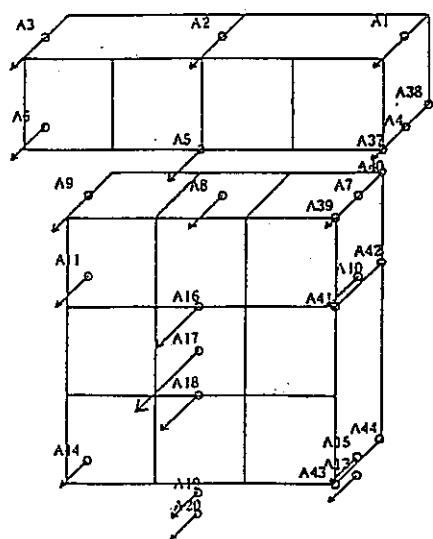


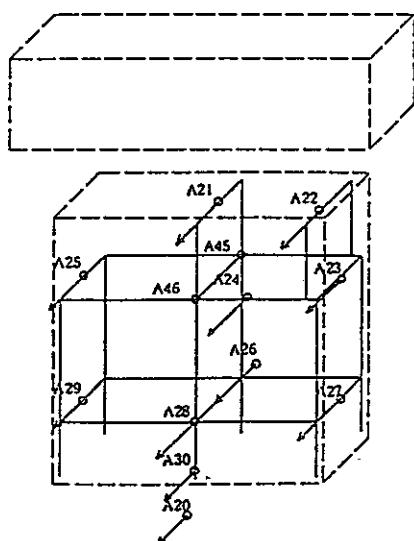
図-7 グローブボックス概要図

表-3 1000gal加振試験結果

項目	測定値	比較値
アクリルパネルの最大応力	4.5 kg/cm <sup>2</sup>	曲げ強度 1200 kg/cm <sup>2</sup>
内装設備の最大応力	93.0 kg/cm <sup>2</sup>	降伏応力 2400 kg/cm <sup>2</sup>
グローブボックスの最大相対変位 上部グローブボックス 下部グローブボックス	14.0 mm 10.0 mm	



グローブボックス



内装設備

主要測定点	応答加速度	補足説明
A 2 0	1003gal	加振台
A 1 7	2263gal	アクリルパネル
A 2 1	1495gal	内装機器フレーム

図-8 1000gal 加振時の最大応答加速度模式図

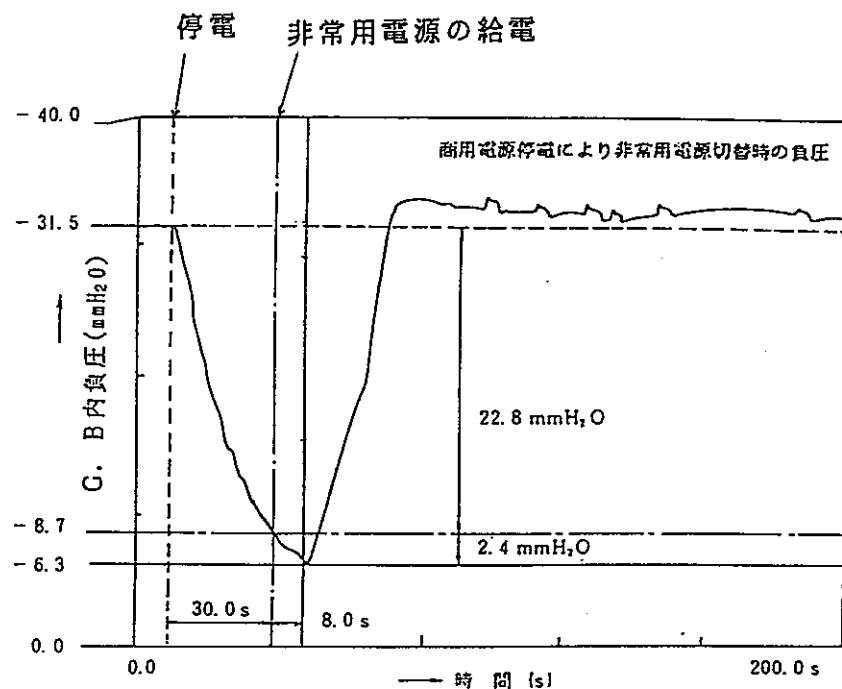


図-9 停電時のグローブボックス負圧変動

# ガラス溶融炉の安全対策の研究

東海・環境技術開発部 正木敏夫

## I. 研究の概要

高放射性廃液ガラス固化に使用される直接通電型ガラス溶融炉には、溶融ガラスに対する閉じ込め機能が要求される。ガラス溶融炉の設計および適切な運転条件の設定を行うため、三次元熱流動解析コードを開発した。また、ガラス溶融炉の大容量化のためのデータを取得するとともに、溶融炉材料の侵食速度を評価し、耐火物材料および電極材料について $0.03\text{mm}/\text{d}$ を得た。さらに、炉内インベントリ管理のためのレベル計の信頼性確認試験を継続し、10mm程度の測定精度を確認した。本報告では熱流動解析コードの概要、計算結果と運転結果との比較および解析結果から評価される溶融炉の安全性について述べる。

## II. 研究成果

### 1. ガラス溶融炉の概要

#### (1) 構造

ガラス溶融炉は耐火物の組積構造を外側から金属製のケーシングで囲った構造である。ガラス溶融炉の一例としてガラス固化技術開発施設（TVF）溶融炉の構造を図1に示す。耐火物はガラスを溶融し保持するための溶融槽を形成し、溶融層の対向する壁面には、直接通電加熱を行うための電極を設置している。溶融槽の底部には、溶融したガラスをキャニスターに注入するため、溶融ガラス抜き出し用の流下ノズルを設置してある。

溶融ガラスを保持する部分の耐火物は、内側から耐食性耐火レンガ、耐火レンガ、断熱キャスタブルの順に組み上げ、一方、溶融ガ

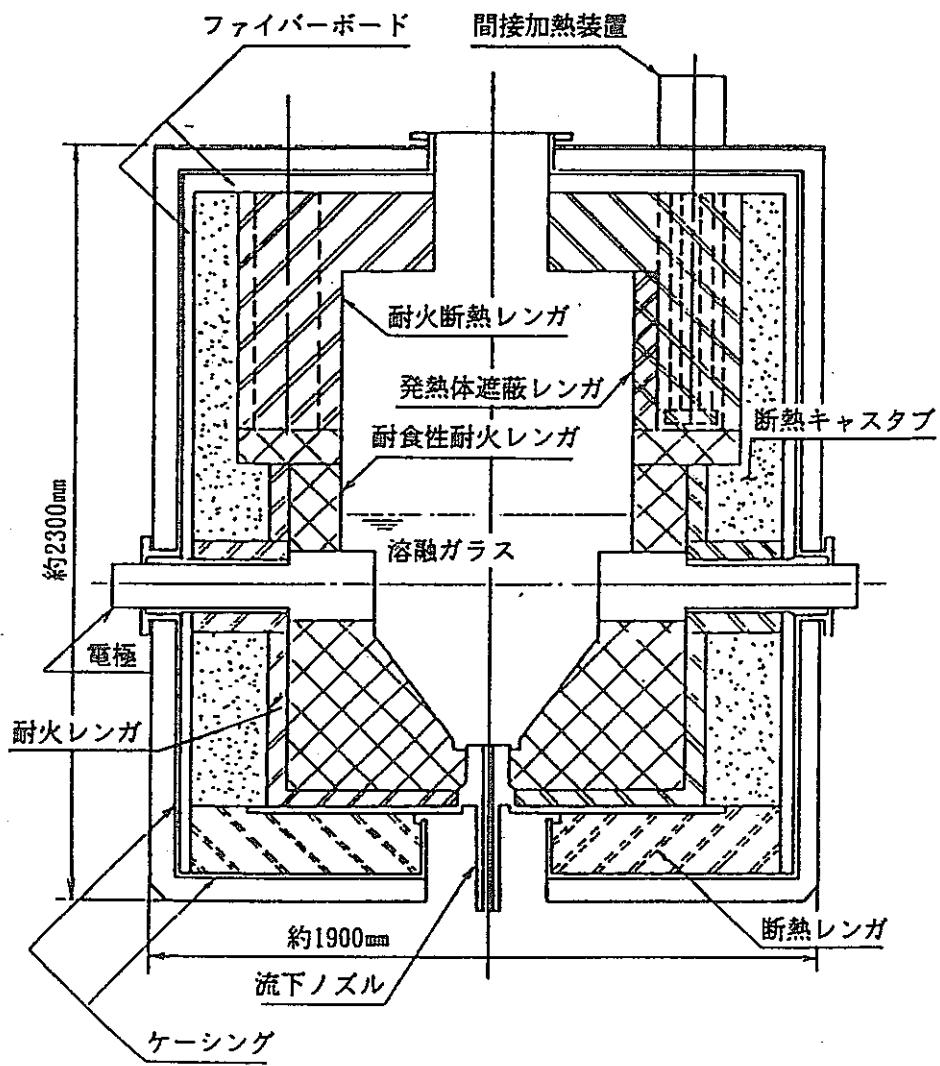


図1 ガラス溶融炉構造（TVF溶融炉）

ラスと接しない上部は耐火断熱レンガ、断熱キャスタブルの順に組み上げる構造としている。ガラス溶融炉側面と天井部には、断熱及び熱膨張による応力緩和のためにケーシングとの間にファイバーボードを設置した。

ガラスに電流を通じるため、耐熱合金製の電極を側壁に配置している。高温のガラスと接する電極表面の温度を低下させるために、内部を強制的に空気冷却している。

流下ノズルは、炉底の耐火物内に設置したパイプ状の耐熱合金である。

ケーシングは、内部の耐火物組積構造を外側で支えるとともに、ガラス溶融炉を自立させる役目を持ち、ガラス溶融炉の気密性を向上させる役割を持つものである。

## (2) 溶融ガラスの閉じ込めの考え方

溶融炉の最外部の金属ケーシングは、自然空冷とするので、溶融炉耐火レンガ構造内温度は外部へ行くほど温度が低くなる。従って、耐火物同士の接合部などに溶融ガラスが浸入しても、外部に進むにつれて冷却され、同時に粘度が高くなり、 $10^6 \sim 10^8$  poiseにまで冷却されると流動性を失い浸入を停止する。ガラスの $10^8$  poiseに相当する温度は約 600°Cである。断熱キャスタブルの外面温度をこの温度以下にする設計により、ガラスを閉じ込めるものとしている。

## 2. 解析コード

### (1) 概要

ガラス溶融炉の熱流動現象を表現する支配方程式は電荷、質量、運動量およびエネルギーの保存則に対する微分方程式から成る。これらの方程式は有限差分法により解いた。又、ガラス溶融炉は溶融ガラスが流動する溶融槽と流動のない耐火レンガの層とに分けられるので、計算精度を確保しつつ計算時間を短縮するため、計算対象を内部領域および外部領域の二領域系とした。

### (2) 前提条件

溶融炉の現象のモデル化に際し、いくつかの仮定をした。溶融ガラスは非圧縮性のニュートン流体とし、溶融層内の流れは層流として扱った。運動量方程式における浮力項はBoussinesq近似を適用した。

### (3) 方程式

各方程式は以下のとおりである。

(a) 電位方程式 :  $\nabla^2 \phi = 0$

ここで $\phi$ は電位ボテンシャルである。 ..... (1)

(b) 質量方程式 :  $\nabla^2 \cdot u = 0$

$u$ は速度ベクトル。

(c) 運動量方程式 :

$$\frac{D u}{D t} + \frac{1}{\rho} \nabla p + (u \cdot \nabla) u - \nabla \cdot \tau - g \beta (T - T_0) z = 0 \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

ここで、 $t$  : 時間、 $\rho$  : 密度、 $p$  : 圧力、 $\tau$  : 粘性カテンソル、 $g$  : 重力加速度

$T$  : 温度、 $T_0$  : 基準温度、 $z$  : 鉛直方向単位ベクトル

(d) エネルギー方程式 :

溶融ガラスに対し、

$$\rho C_p \frac{D T}{D t} + \rho C_p u (\nabla T) - \nabla \cdot (\lambda \nabla T) - Q = 0 \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

但し、 $C_p$  : 比熱、 $\lambda$  : 热伝導率、 $Q$  : 発热量

$$\text{耐火物に対し}, \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + Q = 0 \quad \dots \dots \dots \quad (5)$$

### 3. 解析

#### (1) 解析条件

解析対象は、工学規模ガラス溶融炉試験装置である改造Bメルタとし、電力等の加熱条件および境界条件は実際の運転条件に基づいて設定した。

#### (2) 解析結果および評価

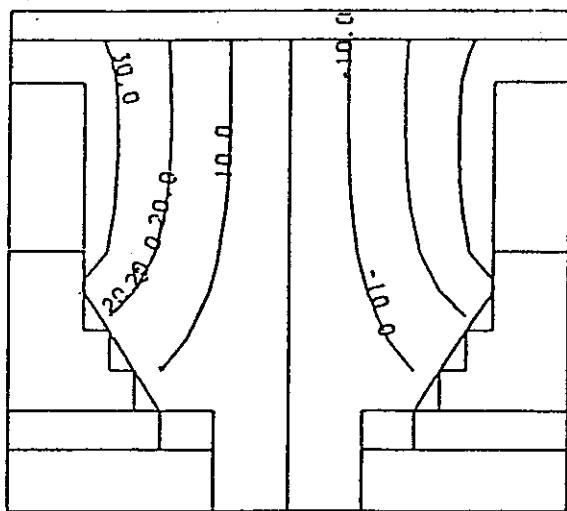
図-2, 3および4に電位分布、電流密度分布および発熱密度分布を示す。電位分布と電流密度分布は主電極と補助電極に対して各々別々に示している。電極の侵食速度に影響する電流密度は電極表面では比較的均一であり、電極表面電流密度も侵食速度への影響が小さい設計値以下となっている。一方、発熱密度分布は主電極間通電および補助電極間通電による発熱量の合計を示している。発熱密度は主電極前方の原料層に近い領域で最大になっている。図-5に溶融ガラスの流速ベクトル分布を示す。溶融槽中央部で上昇流が生じ、主電極近傍に下降流が生じている。電極近傍で発熱密度が最大になっているにもかかわらず、溶融ガラスの流動が下降流となっているのは、主電極を強制空冷していることに起因している。このような電極の空冷による下降流はグリセリンを用いた物理モデル試験〔1〕および二次元数値解析〔2〕でも観察されている。図-6にガラス溶融炉中央部での深さ方向の温度分布の解析結果を実測値とともに示した。最高温度域で100°Cの差があるものの全体としては良く一致している。図-7に溶融炉全体の温度分布を示す。溶融ガラスの温度分布では炉材料の侵食を促進するような局部的な高温部も認められない。溶融ガラス温度が最高1200°Cの状態で、軟化点に相当する600°Cの等温線は耐火物構造内部にあることから、ガラスは溶融炉耐火物構造内で流動性を失っており、ガラス溶融炉は溶融ガラスに対して充分な閉じ込め機能を有していると評価される。

### 4. 結論

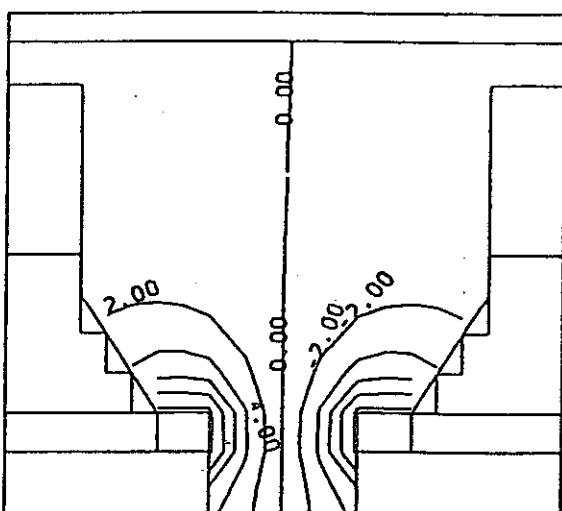
開発されたモデルによる解析結果は運転結果と良く一致し、また、ガラス溶融炉の溶融ガラスに対する充分な閉じ込め機能を示していることから、本解析コードによりガラス溶融炉を安全に設計できる。

### 文 献

- 〔1〕 Quigley, M. S. et al, PNL-2809, UC-70, March 1979
- 〔2〕 Hielm, R. L., et al, 'Joint ASME/AIChE 18th National Heat Transfer Conference, Sandiego Calif. Aug 6-8, 1979

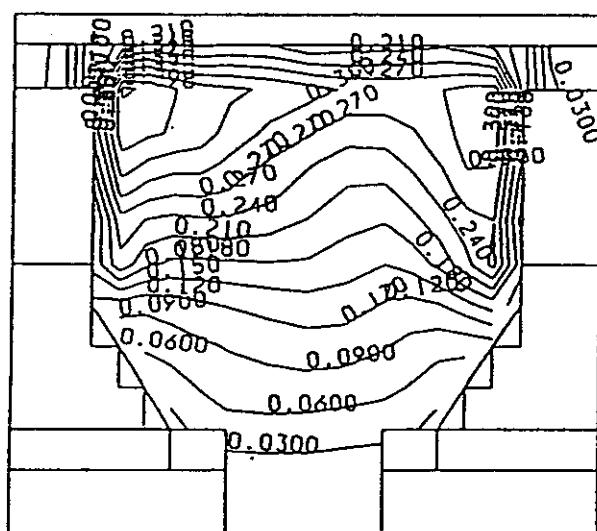


(a) 主電極

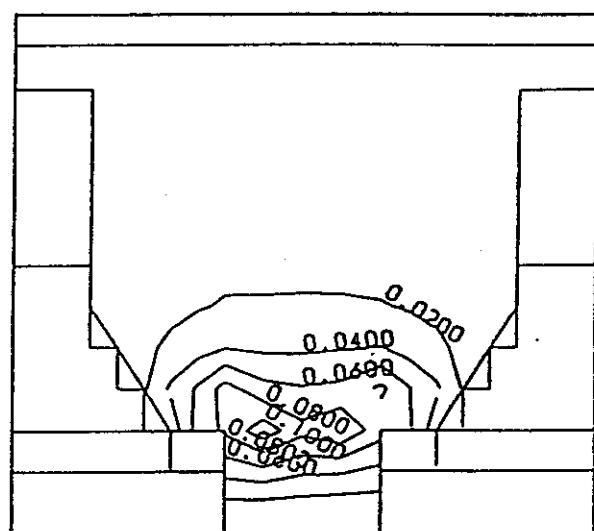


(b) 補助電極

図-2 等電位線（ガラス溶融炉試験装置，x-平面），V

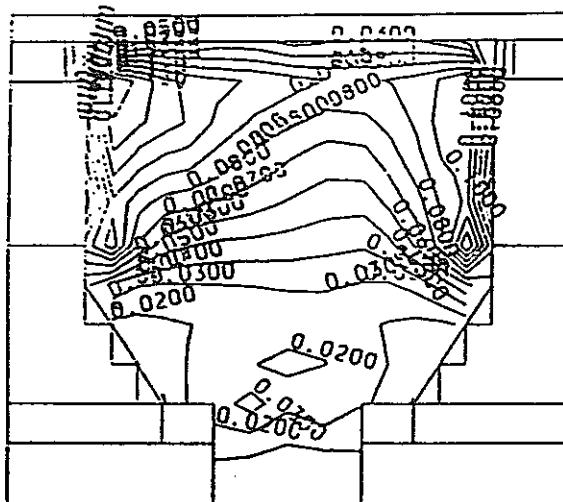


(a) 主電極

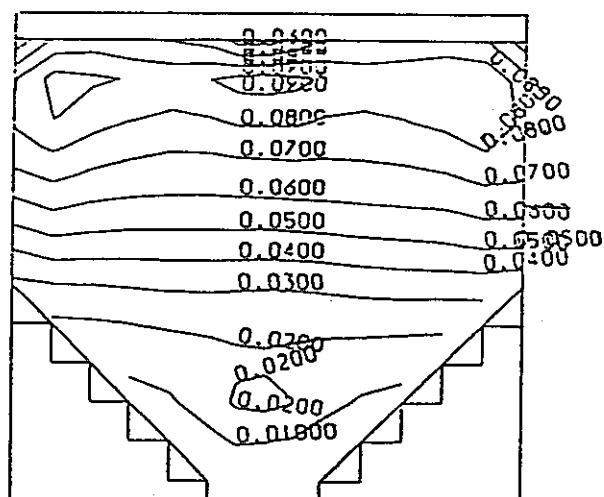


(b) 補助電極

図-3 電流密度分布（ガラス溶融炉試験装置，x-平面）， $\times 10^4$  A/m<sup>2</sup>

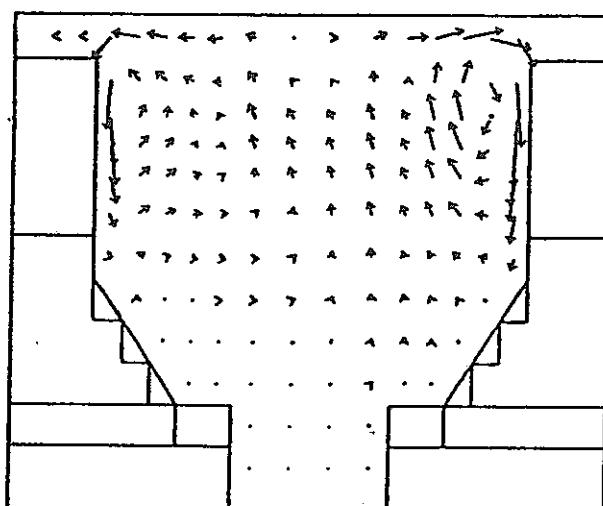


(a) x - 平面

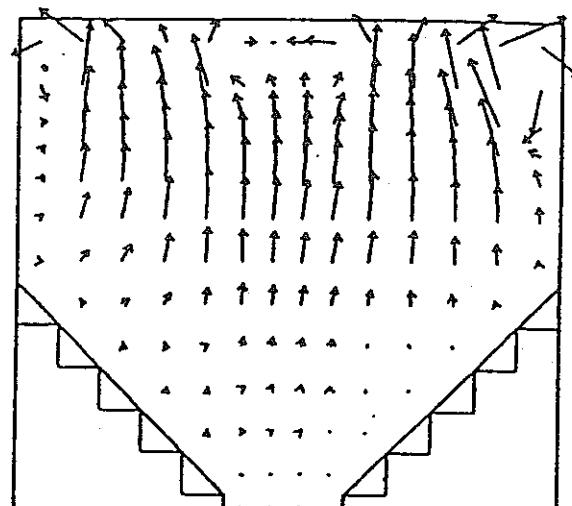


(b) y - 平面

図-4 発熱密度分布（ガラス溶融炉試験装置）,  $\times 10^3 \text{ W/m}^3$



(a) x - 平面



(b) y - 平面

図-5 速度分布（ガラス溶融炉試験装置）

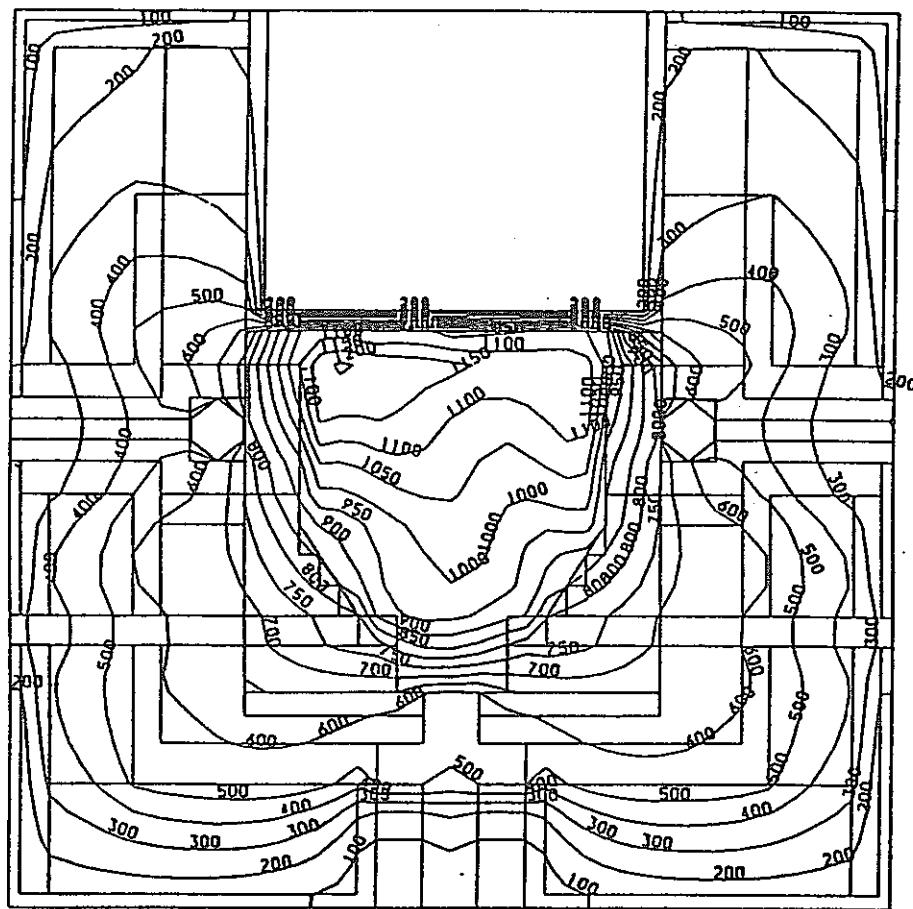


図-6 深さ方向温度分布（ガラス溶融炉試験装置）

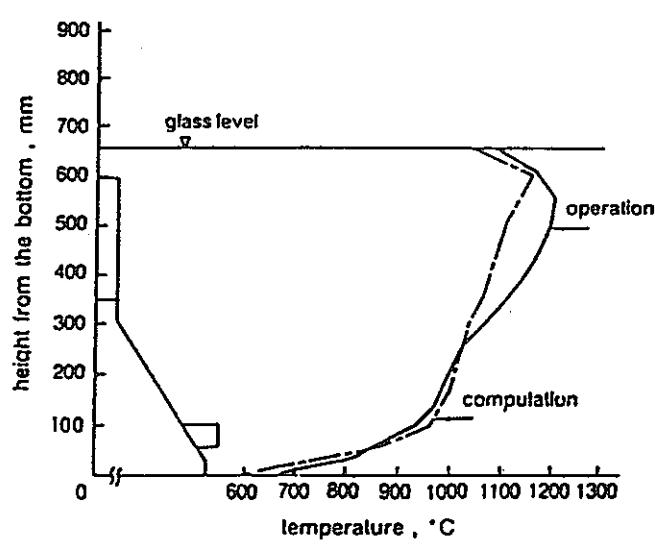


図-7 温度分布（ガラス溶融炉試験装置, x-平面）, °C

# TRU廃棄物の発生量低減化技術の信頼性に関する研究

大洗・管理部 飛田祐夫  
東海・環境技術開発部 宮田和俊

## I. 研究の概要

廃棄物処理施設の運転安全、信頼性向上及び発生廃棄物の発生量低減化に資することを目的に、TRU廃棄物の処理、貯蔵管理の負担を軽減し得る合理的な発生量低減化技術システムの研究を実施した。

- (1) 大型設備、機器等の解体・撤去にかかる切断・分割技術開発として、昭和61年度から平成2年度にかけ、プラズマ切断法でのガラス溶融炉や焼却炉の耐火レンガの切断に関する研究開発、並びにロボットによる遠隔切断技術の研究開発を行い、平成元年度からは、将来の有望な切断技術となるレーザー切断法を安全かつ有効に適用するために、レーザー光の伝送技術を主体とした研究開発を実施した。
- (2) 発生時並びにそれ以降の廃棄物管理を容易に行えるよう区分管理に対応したTRU分離、除染システムの開発として、昭和62年度から浸漬電解研磨法、レドックス法、アイスプラスト法による除染技術の研究開発を実施した。  
一方、プルトニウム等で汚染された金属廃棄物を一度に多量除染でき、除染効率の高いバレル電解研磨除染法について、昭和61年度から昭和62年度に除染性評価のためのホット試験を行った。また、昭和63年度から平成2年度にバレル電解液の再生及び放射性核種の回収特性の評価試験を行った。
- (3) 廃棄物を発生元で極力抑えるため、施設・設備の汚染状況、除染性を評価するため、昭和62年度から放射性物質の分布及び量を評価する放射線映像化装置の研究開発を実施した。

## II. 研究成果

### 1. 大型設備・機器等の解体撤去にかかる技術開発

#### (1) プラズマ切断技術

溶融炉や焼却炉に用いられる耐火レンガ等を安全かつ効率的に切断するために、従来ある移行型プラズマトーチ方式に変わる方式として、トーチ内部でアーク放電を起こして高温プラズマを生成させ、アシストガスによるジェット流で高熱を外部に導く非移行方式のプラズマ切断トーチを試作した。トーチの性能評価を行うとともに、コールド運転終了後のガラス溶融炉の解体試験を実施した。その結果、図-1の耐火レンガ切断例に示すように、60mm厚までの耐火レンガは切断又は熱衝撃による破壊が可能であり、溶融炉や焼却炉の解体に有効に活用できる性能を得た。

#### (2) ロボットによる遠隔切断技術

WDF $\alpha$ ホールに設置した一般産業用ロボットを用いたプラズマ切断の運転経験・実績から、切断解体時の被ばく低減化及び効率的な切断解体を目指し、教示操作の簡略化、切断不良の防止、遠隔保守性、除染性並びに耐環境性の向上を主眼に置いた自動切断解体装置の研究開発を行った。

教示操作の簡略化として、教示点の位置設定を自動化するために、ロボット手先部に持た

せた変位計の距離情報から、手先部と被切断物の距離並びに手先姿勢をそれぞれ $10 \pm 1$  mm、 $90 \pm 5^\circ$ （垂直）に制御する機能を開発した。

切断不良の防止は、プラズマ切断時の切断条件で変動する切断電圧を利用した電圧アーケンサの研究開発を行い、切断時に被切断物と手先部の距離を $10 \pm 4$  mmで自動制御することを可能とし、切断不良の回避を図った。

また、設計研究において、ロボット本体を3分割構造としてマニピレータ補修用グローブボックスに収容可能とするとともに、駆動用モータ等を補修頻度の少ない機種を評価選定して、遠隔保守性の向上を図った。さらに、装置構成物をロボット本体内に収納して表面を平滑化するとともに、構成物は耐放射線 $1 \times 10^8$  rad以上を基準とし、担保できないものは遠隔交換対象として、除染性並びに耐環境性の向上を図った。

これら一連の研究開発の成果は、平成3年9月に完成する自動切断解体装置（図-2）に反映した。

### (3) レーザー光の伝送技術の研究

COレーザーは、エネルギー密度が高いために、二次廃棄物となるヒュームの発生量が少なく、切断可能な材料範囲が広い等の特徴を有する。さらにCOレーザーの波長 $5\text{ }\mu\text{m}$ 帯にはその波長を伝送可能なファイバーが存在し、遠隔操作が容易に行える特徴も有するために将来的に有望な切断技術である。これらのことから、COレーザーの伝送を主体とした研究開発として、伝送損失を低減するためのファイバー端面の反射防止技術、伝送損失により発生する損失熱を除去する冷却技術、伝送後のレーザービームの集光技術等の開発のほか、ファイバーの開発を実施した。

主な成果として、ファイバーの冷却技術は、ファイバーをガス空冷又は水冷することで最大1.8倍の伝送出力を得ることが可能である。

レーザービームの集光技術では、数種類のレンズの組み合わせにより、ファイバーコア径の1.2～1.4倍まで集光する技術を得た。

ガラスファイバーの開発は、従来のカルコゲナイト系のAs-S系ファイバーにGeを加え、耐熱温度を30°C程度高めたファイバーを試作し、図-3に示すようにガス空冷下で110Wの伝送出力（試験に用いた発振器の出力限界値）を得、当初の目的を達成した。

## 2. 除染技術の研究開発

### (1) 電解研磨除染技術の開発は、希硫酸電解液を選定し、浸漬除染法により、Pu等に汚染した金属廃棄物の除染試験を実施した。

単純形状で、SUS材等は、電流密度： $40\text{A/dm}^2$ 、印加電圧：15V、除染時間：数分～1時間以上の条件で、図-4に示すとおり数 $\mu\text{m}$ の研磨量で汚染除去が可能（DFは、最大 $10^4$ オーダー）であるが、複雑な形状やアルミニウム材の除染効果は低い（DFは、数～数10程度）ことがわかった。

さらに、バレル電解研磨除染試験装置については、コールド試験条件で得られた除染条件を基に、小型バレル電解研磨除染試験装置を用いてホット試験を行った。除染前後の金属試料の汚染密度をバッシブγ線法にて $^{241}\text{Am}$ 量を評価した結果、電解研磨除染時間21分で除染係数 $10^3$ であった。（図-5参照）

また、トータルアルファ線量を評価した結果、電解研磨除染時間15分で除染係数 $10^3$ （図-5参照）、平均研磨厚は2ミクロンであった。また、アルファトラック撮影法により除染試料

の汚染分布を観察した結果、表面汚染の大部分が除染されているが、2～3のアルファスポットが残っているものも観察された。汚染量のバラツキは一桁の範囲であった。

一方、劣化電解液の再生法である電着再生技術については、再生条件評価試験を実施した電流密度3～4A/dm<sup>2</sup>、pH2.0、陽極材質はチタン、陰極材質はSUSで、液温が高くなるにつれて電着効率は上昇する(図-6)。ただし、強酸の取扱上や、有害ガス発生の観点から高温下での操作は好ましくない。

さらに、コールド試験により得られた最適再生条件により、金属試験片にプルトニウム粉末を擦り付け電解研磨処理した実電解液を用いて電解液再生ホット試験を実施した。液中のTRU核種を除去する方法としては、液中に存在するTRU核種の形態に応じ、3種の除染方法

(①電着法、②ミクロンフィルタ濾過法、③ウルトラフィルトレーション法)を用いた。その結果、電解液再生法として、電着法とウルトラフィルトレーション法を組み合わせるとTRU核種(<sup>241</sup>Am)の除染係数として10<sup>1</sup>が得られた。また、電着法による<sup>241</sup>Amの回収率は電着開始後3時間で平衡に達した。なお、電着法のみでは、ほとんど除染されないことから電解液中の<sup>241</sup>Amの存在状態はコロイド状態で存在する割合が多いものと考えられた(図-7参照)。

以上の成果は、廃棄物低減化の総合システムに反映した。

### (2) アイスblast除染技術の研究

アイスblast法は、2～7μmのドライアイス粒子を、噴圧：6kg、流量：2m<sup>3</sup>/minの圧空で被除染体に吹きつけて除染するものである。実際の廃棄物に対する除染試験を実施、除染効果の定量、放射能バランスの評価を行った結果、図-8に示す除染係数(DF1～3)が得られた。

結果は、ルーズな汚染には効果的である反面、飛散による汚染拡大防止が課題であることがわかった。この対策として、フード付のアイスblast装置を考案し、セル内の除染装置に反映した。

### (3) レドックス除染技術の研究

レドックス法は、金属表面を溶解、同時に汚染を液中に移行させることにより除染するものであり、電解研磨と同様に高い除染効果が得られ、電解研磨の電気化学的な欠点を補う方法である。

そこで、除染条件が研磨に及ぼす効果評価とレドックス法の特徴を確認する試験を実施した。その結果は、図-9に示すとおり、液温が高い領域では、表面粗度に関係なく研磨厚が大きく除染効果が高くなる。

一方、レドックス法は除染終了後も金属腐食が進むことから、除染装置本体の構成要素について検討した結果、アモルファスコーティング材、CDV-Siコーティング材の腐食防止効果が優れていることがわかった。

## 3. 放射性物質の分布及び量の測定評価にかかる技術開発(放射線映像化装置(Radiation Image Display: RID)の開発)

原子力施設における作業は、被ばく低減の観点から放射性物質の分布及び量の測定が重要である。本測定装置は、放射性物質分布の評価を行うとともに、その量を放射線検出器・映像機器・パソコンコンピュータを組み合わせることによってCRT上に映像化するものである。

本開発成果として、核燃料施設のセル内でハンドリング・リペアが可能な1号機検出部及び低エネルギーγ線測定が可能でバックグラウンド減算機構を有する2号機検出部を製作するととも

に、ホスウィッチ型検出器を利用することによりバックグランドを減算する検出システムを作成した。主に放射性物質が内部に沈着、沈降している廃液タンク、セル内機器、配管等が混在する作業現場を対象として測定を行った。放射性廃液タンクの測定例を図-10に示す。

これらの結果、本装置は放射性物質分布の評価に有効であることが確認でき、核燃料施設等の解体等の作業計画に十分反映できる性能を得た。

#### 4. 成果のまとめ

(1) 大型設備・機器等の解体撤去にかかる技術開発については、プラズマを用いたロボットによる遠隔切断技術を中心にしてきた。本法は高線量環境下での遠隔解体に有望であるとともに、金属以外の耐火物等非金属対象物にも適用でき、広範囲に活用できることがわかった。

また、CO<sub>2</sub>レーザー切断技術については、ガラスファイバーを用いてレーザーを高い効率で伝送することが確認でき、将来有効な切断技術として応用できることがわかった。

(2) 除染技術の研究開発については、電解研磨法とレドックス法が除染係数が高く、非TRU廃棄物化、非放射性廃棄物化を目指した徹底除染法として有望な除染技術であることが確認できた。

また、アイスblast法については、除染係数は小さいもののルーズな汚染に対しては有効な方法であることがわかった。

(3) 放射線映像化装置の開発については、測定対象エリアにおける放射性物質の汚染分布の評価ができる、特にスポット汚染には有効な技術であることがわかった。

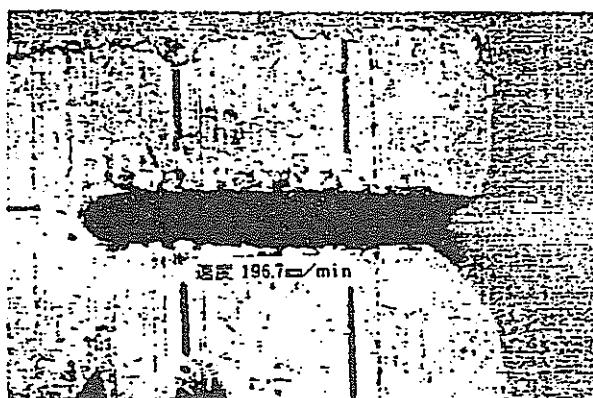


図-1. 耐火レンガ切断例

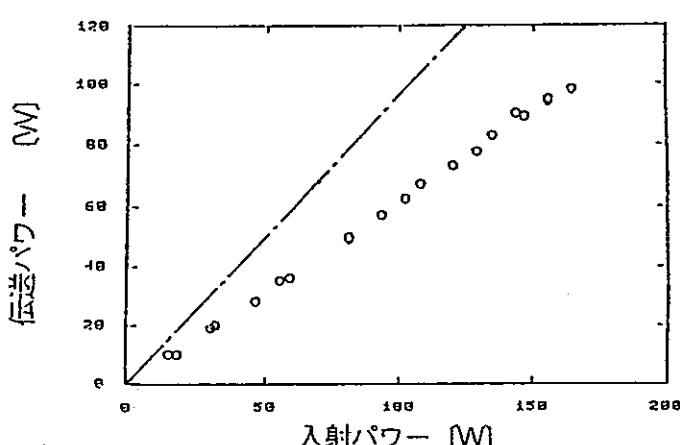


図-3. Ge-As-S ファイバーの伝送特性

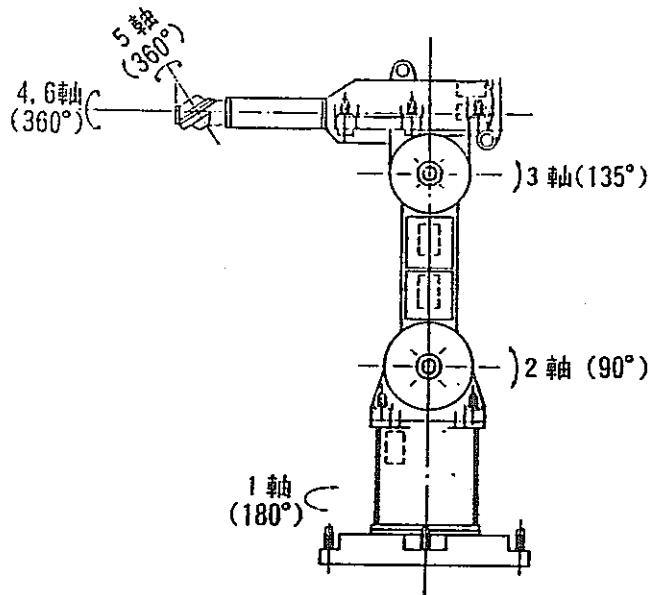


図-2. 自動切断解体ロボット外観

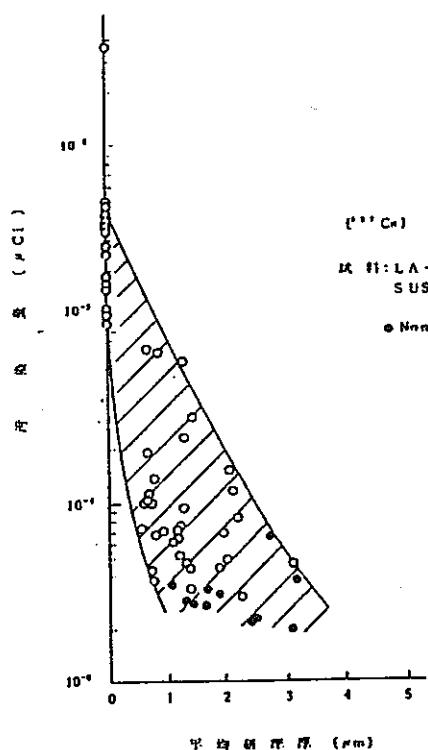


図-4. 平均研磨厚と汚染量の関係

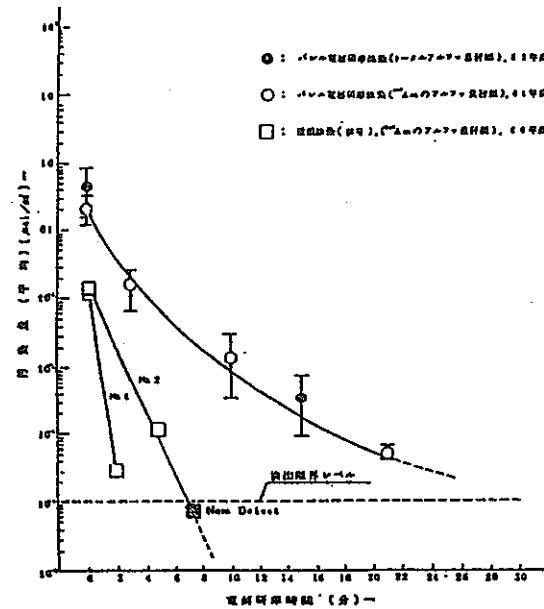


図-5. バレル電解研磨除染試験結果

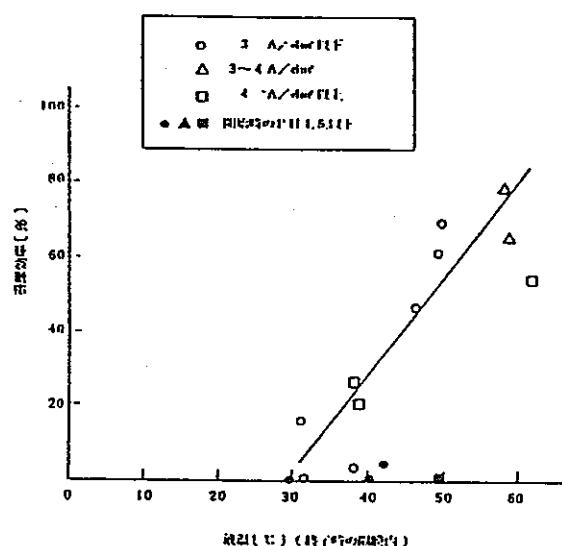


図-6. 液温と電解効率の関係

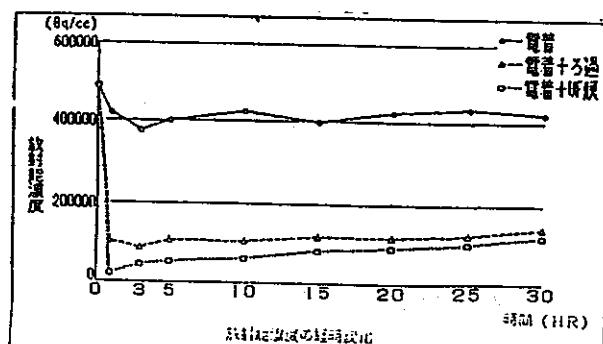


図-7. 放射能濃度の経時変化

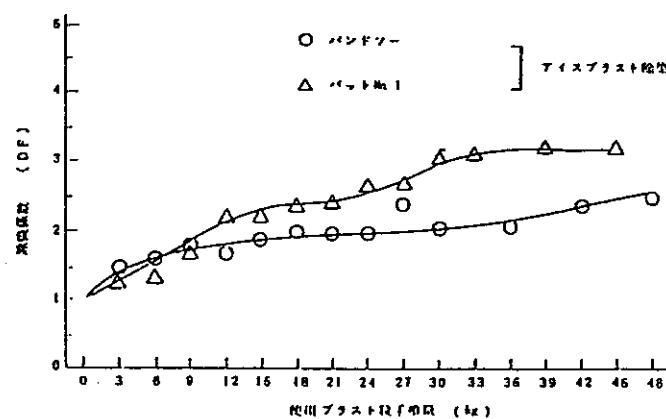


図-8. 使用ブلاスト粒子量及び使用圧水量と除染係数との関係

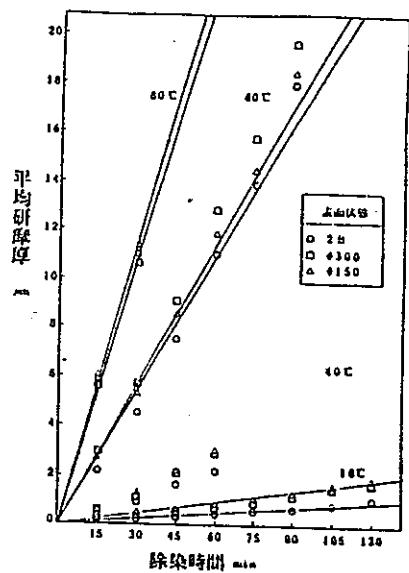


図-9. 除染時間と平均研磨厚の関係

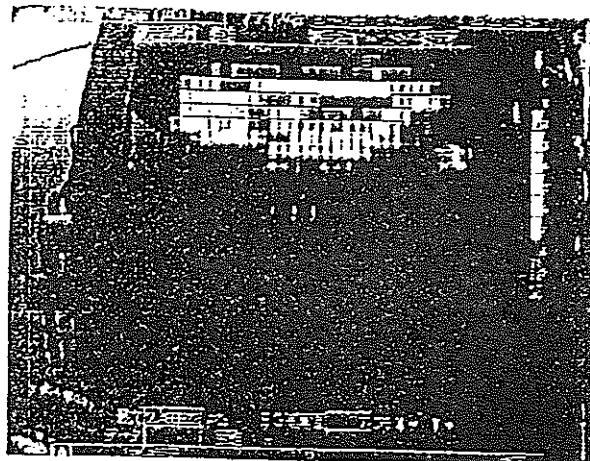


図-10. 放射性廃液タンクの測定例

# TRU廃棄物の減容処理、貯蔵技術の安全性・信頼性に関する研究

東海・環境施設部 工藤 健治

## I. 研究の概要

プルトニウム廃棄物処理開発施設（以下「PWT F」という）では、プルトニウム廃棄物を使用し、焼却・溶融等の減容安定化処理技術の実証試験を実施している。平成3年3月までにプルトニウム燃料製造施設等から発生するプルトニウム廃棄物を約57.2t処理し、PWT F各設備の安定運転を実証するとともに、減容率として約1/100を得た。更に設備・機器の運転を通じて、プルトニウム廃棄物の可燃物焼却設備等において設計上の処理能力（200kg/日）を満足していることを確認した。また、可燃物焼却設備について炭化珪素及びアスペスト等の濾材交換手法も確立できた。

焼却灰のマイクロ波溶融で得られた溶融固化体（以下「灰溶融固化体」という）の健全性評価については、灰溶融固化体の浸出試験を実施し、これまでに浸出率として $\sim 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{d}$ （28日間）程度の値を得た。さらに、灰溶融固化体の密度測定、元素分析及び化合物分析等を実施し、灰溶融固化体が鉱物相を形成することを確認した。本報告では、実証試験で得られた結果のうち灰溶融固化体の特性評価について述べる。

## II. 研究の成果

### 1. 評価試験の概要

プルトニウム廃棄物を焼却し、得られた焼却灰を実機と同一の条件で溶融し、試験用の灰溶融固化体を作製した。これらの中から1cm立方体試料を切断・調製し、評価試験に供した。評価項目は、灰溶融固化体の密度・組成等の物性測定及び浸出率の測定とした。物性測定には、主にEPMA、ICP及びX線回折等を用い、浸出性評価は、Material Characterization Centerで開発されたMCC-1P静的浸出試験法に準拠した。

### 2. 試験方法

#### (1) 対象物

プルトニウム燃料製造施設等から発生したプルトニウム廃棄物（紙、布、木片及び高性能エアフィルタ）の焼却灰を金属キャニスター内にマイクロ波溶融し、固化したものを用いた。プルトニウム廃棄物の処理フローを図1に示す。

#### (2) 方法

(a) プルトニウム廃棄物をPWT F可燃物焼却設備において、800~900°Cで焼却した。処理対象物の内訳を図2に示す。

- (b) (a)で得られた焼却灰を P W T F 灰溶融設備において実機と同一の条件でマイクロ波溶融した。使用したマイクロ波の周波数は 2450MHzである。焼却灰の溶融温度は焼却した対象物によって異なるが、1200～1400°C程度である。
- (c) 灰溶融固化体の物性評価には、密度計、EPMA及びX線回折装置を用いて、密度、元素分析及び化合物分析を実施した。
- (d) 浸出性評価には、MCC-1P 静的浸出試験法に準拠した方法を用い、浸出率を測定した。浸出液は蒸留水とし、浸出率は、試験温度 90°Cにおける浸漬時間に対する累積重量減少量として求めた。図3に浸出試験仕様を示す。

$$\text{浸出率 } (\text{g/cm}^3 \cdot \text{d}) = \frac{(\text{試験前の試料重量} - \text{試験後の試料重量}) / \text{試料の表面積}}{\text{浸出時間}}$$

### 3. 試験結果及び評価

- (1) 実証試験によるプルトニウム廃棄物の減重率は、処理量 57.2 t に対して約 1/12、減容率についても約 1/100 であった。これは、従来のセメント固化法等と比較して減重率、減容率の点で優れた処理方法であることが確認された。
- (2) 評価試験に供した灰溶融固化体試料の密度は 2.2～3.0 g/cm<sup>3</sup>程度で、平均 2.7 g/cm<sup>3</sup>であった。このバラツキは焼却灰の性状、溶融加熱条件等の相違によるものと推察される。
- (3) 灰溶融固化体の元素分析 (EPMA分析) の結果、Si, Ca, Mg 及び Al を主要元素とし、Ti, Fe 及び K 等の微量元素の存在が確認された。
- (4) 灰溶融固化体の化合物分析 (X線回折) の結果、フォルステライト ( $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ) 等の長石類を多量に含む結晶鉱物相を形成していることが確認された。図4にX線回折による組成同定チャートを示す。
- (5) 28日間における浸出試験の結果、浸出率は、 $\sim 10^{-5} \text{ g/cm}^3 \cdot \text{d}$  (蒸留水) が得られ、耐浸出性に優れていることが確認された。この値は、4回の試験でほぼ同じ傾向を示すとともに高レベルガラス固化体の浸出率 (MCC-1P 法による) と同じオーダーを示した。図5に灰溶融固化体の浸出率を示す。

さらに、浸出の初期段階では灰溶融固化体中のアルカリ金属やアルカリ土類金属元素が溶出するため、弱酸性を示していた浸出液（蒸留水）をアルカリ性にし、その後の浸出が極めて抑制される傾向があることを見出した。

### III. 今後の課題

1. 酸性、中性及びアルカリ性緩衝液中における浸出試験を実施し、浸出特性のpH依存性を確認していく必要がある。
2. 鮎和境界条件に近い状態での浸出速度の把握を目的とした長期浸出試験、処分環境を模擬した条件下での実サイズ灰溶融固化体を用いた浸出試験を実施し、灰溶融固化体の健全性を確認していく必要がある。

### 参考資料

1. 日本原子力学会 1989年春の大会 要旨集 K39.
2. 日本原子力学会 1990年秋の大会 要旨集 M52.
3. 動燃技報 №74, 1990. 6 "Pu廃棄物処理開発施設の実証試験"
4. 4 th International Symposium on Ceramics in Nuclear Waste Management, "Melting of Plutonium-contaminated Residues by Powering Microwave", 米国セラミックス学会 (1989)
5. "Operational Experiences on Incineration and Microwave Melting of Pu-contaminated Waste", Incineration Conference, San Diego, (1990).
6. 特集 「プルトニウム廃棄物の処理」, 原子力工業 (1991. 8月号)

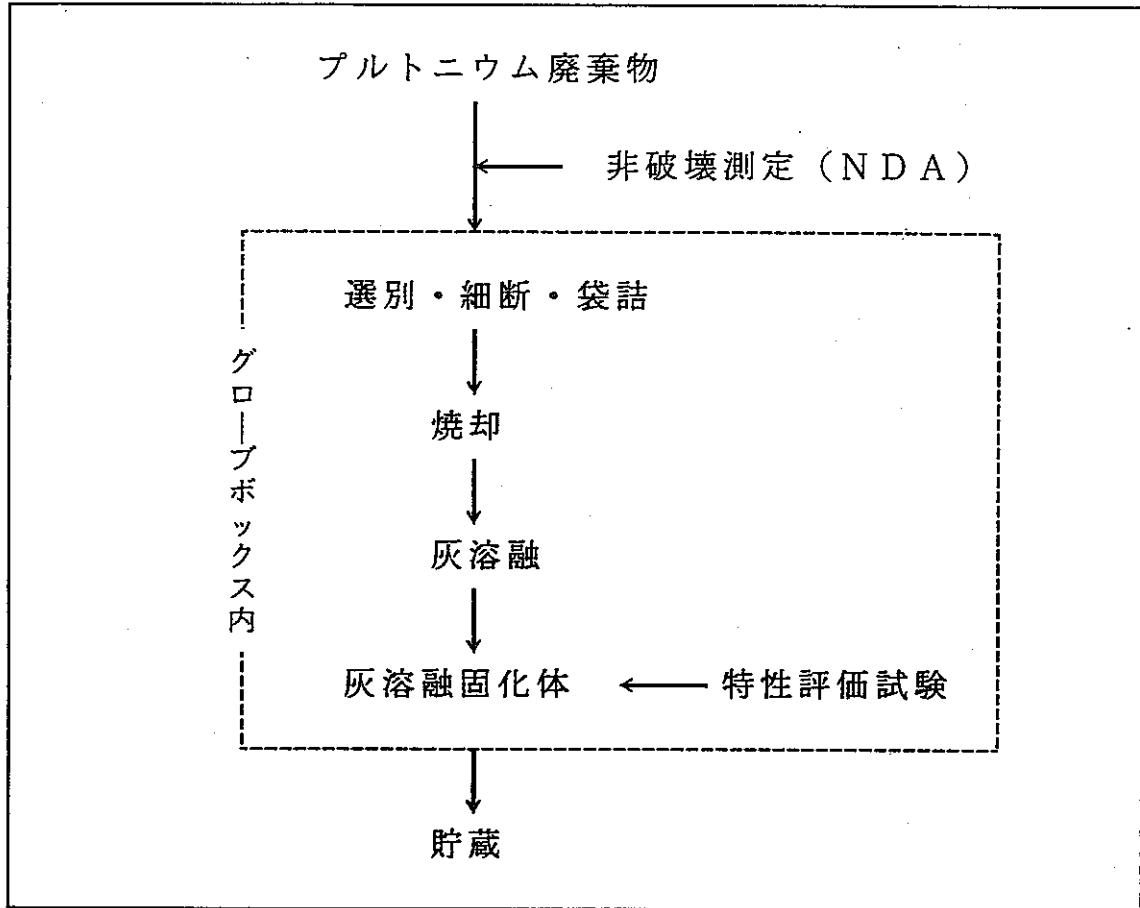


図1. プルトニウム系固体廃棄物の処理フロー

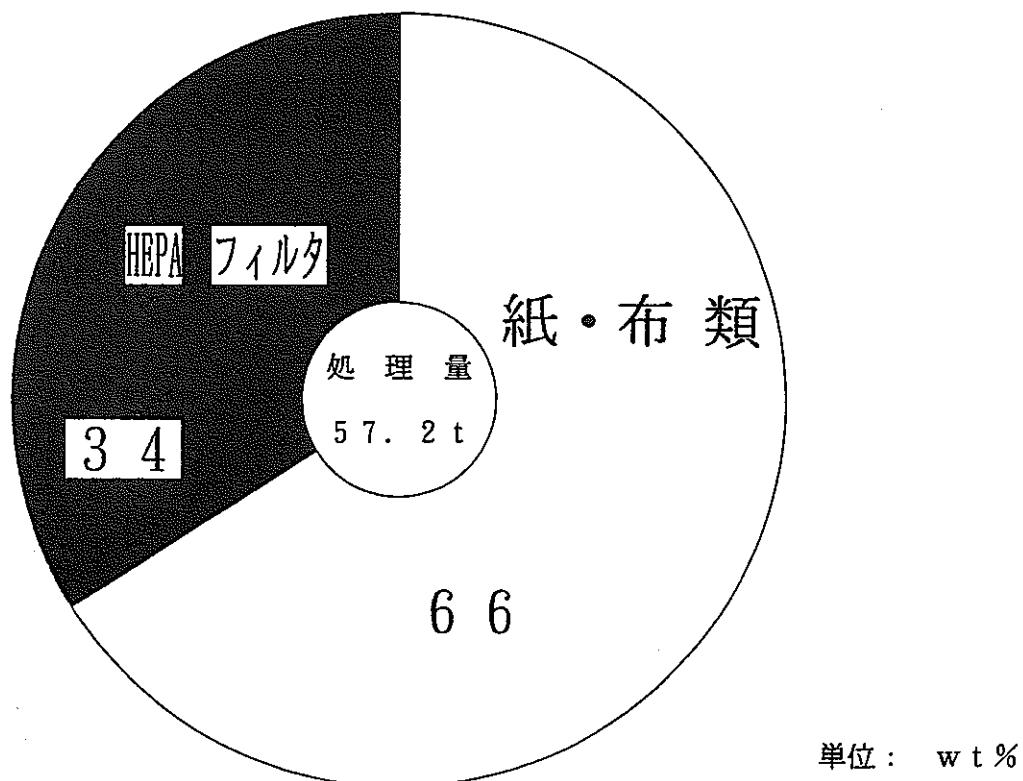


図2. 処理対象物の内訳 (昭和62年11月～平成3年3月実績)

- ・浸出容器 : テフロン製
- ・浸出液 : 蒸留水
- ・試験温度 : 90°C
- ・試料表面積  
浸出液体積 :  $\frac{SA}{V} = 0.1 \text{cm}^{-1}$
- ・浸出時間 : 3, 7, 14, 28日

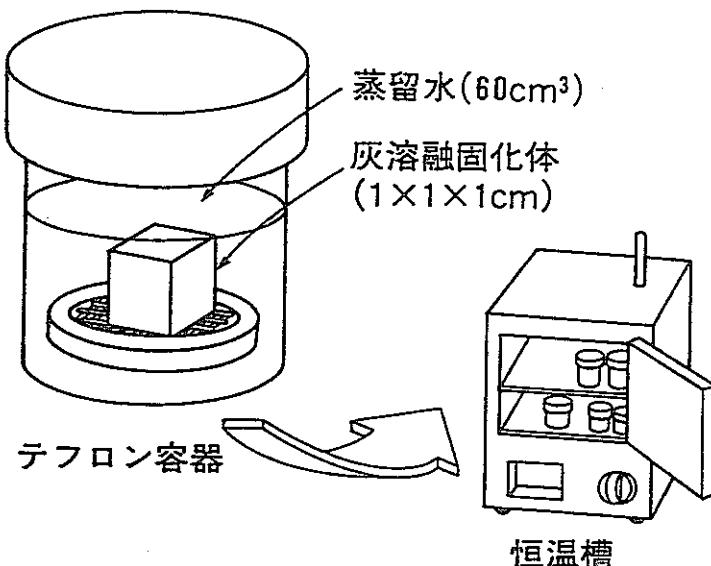


図3. MCC-1P 静的浸出試験法（準拠）仕様

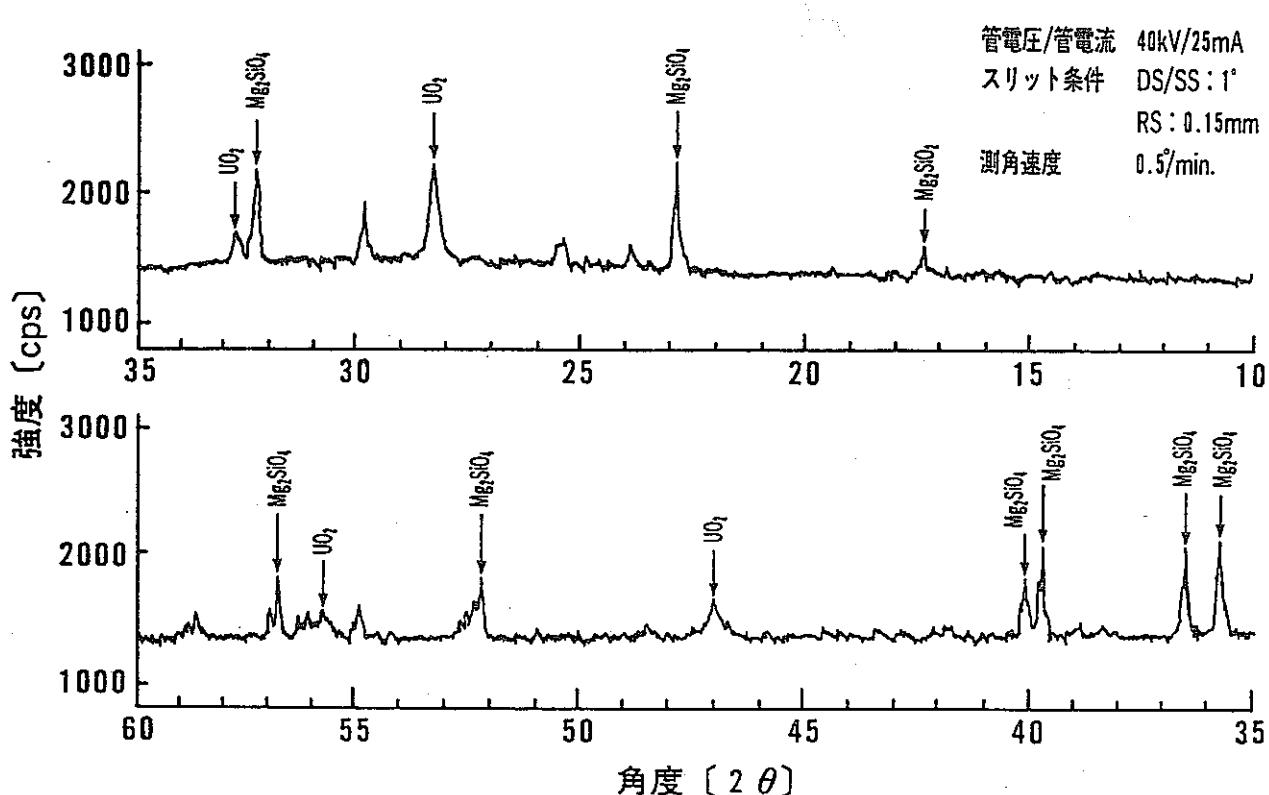


図4. 灰溶融固化体の組成同定 (X線回折)

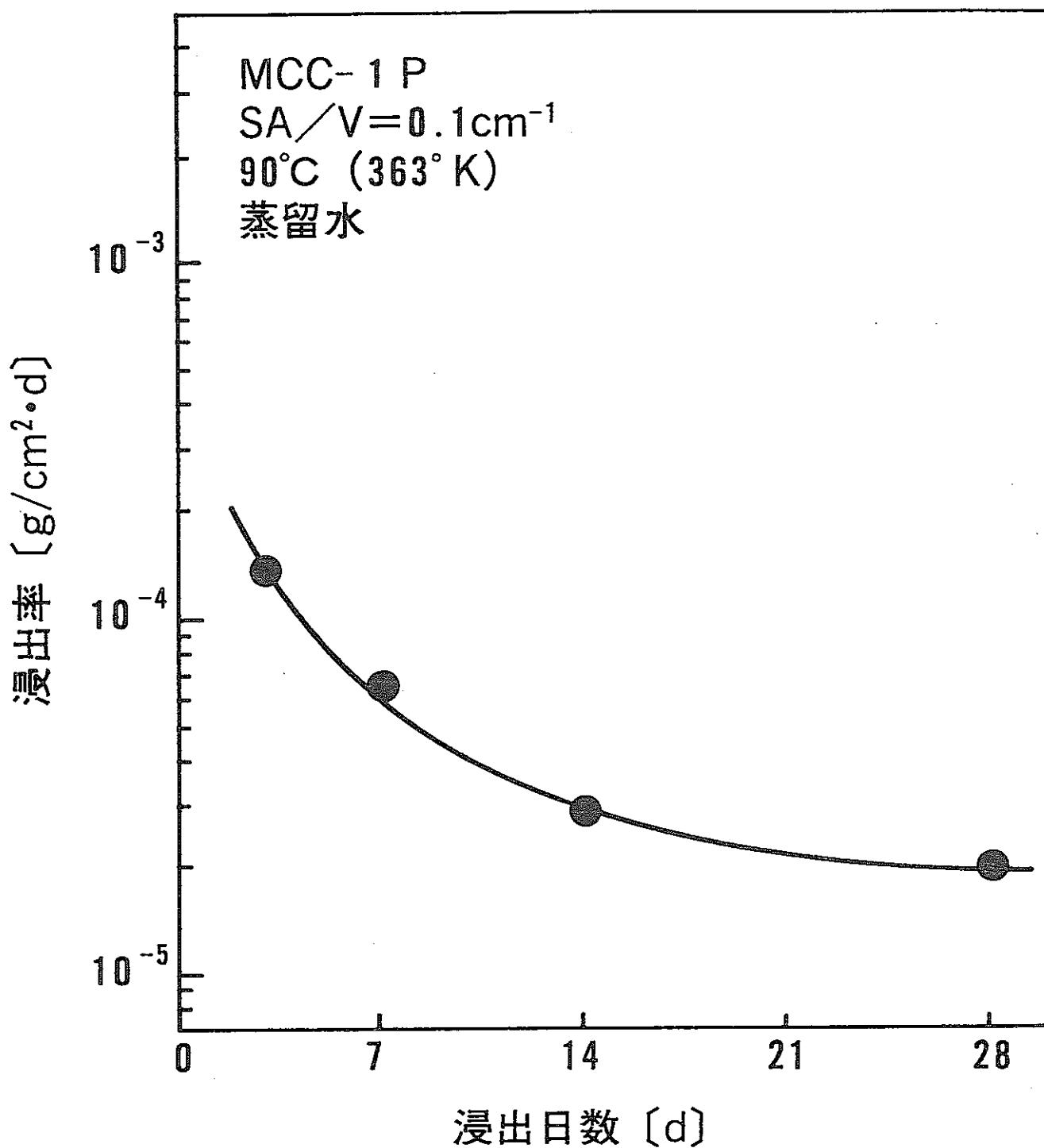


図 5. 灰溶融固化体の浸出率

# TRU廃棄物管理の安全性に関する研究

東海・環境施設部 星野昌人

## I. 研究の概要

TRU廃棄物は、処理、貯蔵及び処分時の負担を極力軽減するため、区分管理を行うことが、望まれており、廃棄物中のTRU核種を精度よく効率的に測定評価する技術の確立が不可欠となってきた。核種インベントリ分析評価技術開発では、上記目的に対応して固化体（人工鉱物）中のTRU核種濃度を分析評価する方法を確立するための研究の一環として、ICP-質量分析計を用いたコールド試験を実施し、ICP-質量分析計において測定試料に施さなければならない前処理法を明らかにすると共に、十分な測定下限値(0.1ng/g)を有していることを確認した。また、ICP-質量分析計では分離測定が出来ない同重体濃度を分析結果から評価できることを確認した。一方、TRU核種濃度を合理的に測定評価するためのTRU核種測定技術開発では、パッシブ法について、プルトニウム線源及び実廃棄物を用いた測定試験を行い、測定データの評価を行うと共に、アクティブ法については、標準試験体及びプルトニウム線源を用いた測定評価を行い、装置の特性及び廃棄物マトリックスによる検出感度への影響評価を行った。この結果、パッシブ線法については、検出器の変更[Ge(Li)からGe検出器]等により検出感度の向上を図り、ドラム缶(200ℓ)サイズの処理前廃棄物に対し、<sup>239</sup>Pu濃度約15mgまで検出できる見通しを得た。パッシブ中性子法では、マトリックスによる影響評価試験を行い、水分含有量が50w/o以下においては検出効率の低下がほとんどないことを確認した。アクティブ中性子法による検出感度は紙マトリックスの場合約1mg<sup>239</sup>Pu（実効質量）と推定された。また、熱中性子に対するPuの自己吸収は非常に大きく、検出感度への影響も大きいことがわかった。更に、廃棄物中の中性子吸収材、減速材の含有量が検出感度、精度に与える影響も大きいことがわかった。

本報告では、アクティブ中性子法による廃棄物マトリックス等評価試験結果について述べる。

## II. 研究成果

### 1. アクティブ中性子測定法の概要

#### (1) 測定原理

TRU核種を含む廃棄物に中性子を照射すると、核分裂性TRU核種(<sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Puなど)が核分裂して、中性子を放出する。この核分裂中性子の発生量は、TRUの存在量に比例するのでそれを計測することで、TRU核種の存在量が測定できる。核分裂を誘発させるための中性子と、核分裂によって生じた中性子とは、中性子照射から核分裂までの時間差と発生中性子のエネルギー差を利用して区別する。このため、中性子をパルス状に一定間隔で繰り返し照射し、照射中性子が発生していない間に核分裂中性子を計測する。この測定原理は、アクティブ即発中性子法として分類されるもので、DDT法(Differential Die-Away Technique)と呼ばれている。測定概念を図-1に示す。

## (2) 装置の構造

本装置は、アクティブ中性子測定とパッシブ中性子測定が行えるシステム構成となっており、パッシブ中性子測定では、全中性子計測及び同時計測を行うための計測システムとなっている。装置の断面構造を図-2に示す。また、装置の基本仕様を以下に示す。

- (a) 測定対象物は、200ℓ廃棄物ドラム缶サイズまで測定可能。
- (b) 分析容器は、黒鉛10cm、ポリエチレン20cm、厚の箱型で、ドラム缶回転機構と、インターロック式開閉扉付きとなっている。
- (c) 中性子発生装置の中性子発生強度は、 $5 \times 10^7$  n/sec (14 MeV), 50 Hzの中性子発生管が分析容器内に内包されている。

### ・中性子発生管仕様

型式	変圧器型
中性子発生数	$10^6$ n/pulse
中性子発生周波数	50 Hz
パルス発生幅	5 μS ~ 10 μS
ターゲット	${}^3\text{H}$ 259 GBq (1990年2月)

- (d) 中性子検出系は、アクティブ中性子検出用として20本のHe-3検出器(Cdモニタ付き)とパッシブ中性子検出用の10本のHe-3検出器及び分析容器内の中性子モニターとして1本のHe-3検出器で、各計測回路系は、中性子の時間応答の測定が行えるものとなっている。

## 2. 試験方法

### (1) 装置特性試験

#### (a) 検出感度分布

本装置において、パッシブ及びアクティブ中性子測定を行い、分析容器内の中性子検出感度分布を評価し核種の偏在による影響を把握すると共に、廃棄物マトリックス影響評価上の基準とする。測定は、空ドラム缶(200ℓ)内に標準Pu線源を配置し、線源を垂直及び水平方向に移動して測定を行い、各位置での計数率を取得した。

#### (b) 中性子計数と核種量の相関性

空ドラム缶中心部にPu線源重量をパラメータとして配置し、パッシブ及びアクティブ中性子測定を行い、各Pu線源の重量に対する中性子計数値を求め、パッシブ測定での計数値と ${}^{240}\text{Pu}$ 実効質量並びにアクティブ測定での計数値と ${}^{239}\text{Pu}$ 実効質量の相関性を調べた。

### (2) 廃棄物マトリックスによる検出感度への影響評価

本試験では廃棄物マトリックス中の中性子吸収材、中性子減速材が検出感度、精度に及ぼす影響を評価した。測定は、模擬廃棄体を作製し、廃棄体中心部にPu線源を配置して、パッシブ及びアクティブ中性子測定により中性子計数を求め評価した。

注

## 3. 試験結果

### (1) 装置特性試験

#### (a) 検出感度分布

アクティブ中性子測定によって求めた装置の検出感度分布を図-3に示す。図-3より、ドラム缶中心部の計数値を基準とし、各線源位置での中性子計数比からドラム缶上部と下部

で低い値となっているが、ドラム缶全体としてみた場合検出感度のバラツキは、約±11%である。

#### (b) 中性子計数と核種量の相関性

アクティブ中性子測定における中性子計数（正味即発中性子数／正味フラックスモニタ計数）と<sup>239</sup>Pu(eff) [<sup>239</sup>Pu(eff) = <sup>239</sup>Pu 実効質量] 量の関係を図-4に示す。

- ① バイアル瓶封入Pu線源を用いた場合、アクティブ中性子計数と<sup>239</sup>Pu(eff)量との間には直線性ではなく、<sup>239</sup>Pu(eff)量が増加するにつれて中性子計数は飽和する傾向がみられた。これは、Pu線源の自己吸収効果によるものである。即ち、熱中性子とPu線源の核反応は、線源表面でのみ起こっているものと考えられる。このことは、線源重量とその表面積の関係からも裏付けられた。従って、廃棄物中にPuが塊状で存在する場合、このPu自身のもつ自己吸収の影響を補正することが重要となる。
- ② ジルカロイ被覆Pu線源を用いた場合、<sup>239</sup>Pu(eff)量に対するアクティブ中性子計数は、<sup>239</sup>Pu(eff)量が約300mg付近まで直線性が得られるが、これを超えると徐々に自己吸収による影響がみられる。これは、ジルカロイ被覆Pu線源の内容積が一定となっており、酸化プルトニウム(PuO<sub>2</sub>)に対する間隙材(MgO)の比がPuO<sub>2</sub>量が増えると相対的に小さくなり、自己吸収の影響が出るためである。

#### (2) 廃棄物マトリックスによる検出感度への影響評価

##### (a) アクティブ中性子測定法

各廃棄物マトリックスの<sup>239</sup>Pu(eff)量に対するアクティブ中性子計数の関係を図-5に、また、廃棄物マトリックスが紙の場合、その検出限界値を推定し求めたものを図-6に示す。ここで、図中のアクティブ中性子計数は以下の通り定義した。

$$\text{アクティブ中性子計数} = \frac{\text{正味即発中性子計数}}{\text{正味フラックスモニタ計数}} - \text{Zero Mass}$$

但し、Zero Massとは、測定対象マトリックス内に核種が存在しない場合の、正味フラックスモニタ計数に対する正味即発中性子計数である。

図-10より、紙及び布マトリックスの場合、空ドラム缶より高いアクティブ中性子計数を示し、人工鉱物、セメント固化体、塩化ビニール、アスファルト固化体、金属錠塊では、空ドラム缶の中性子計数に比べ10%以下となっている。更に、アスファルト固化体では、<sup>239</sup>Pu(eff)量に対する有意な中性子計数が得られなかった。また、紙マトリックス廃棄体について検出限界値を求めるとき、嵩密度0.13g/cm<sup>3</sup>の場合で約1mg<sup>239</sup>Pu(eff)となった。

## 4. 評価・検討

#### (1) 廃棄物マトリックスによる影響について

廃棄物マトリックス嵩密度に対する中性子計数值（即発中性子計数／フラックスモニタ計数）の関係を図-7に、各廃棄物マトリックスでの分析容器内熱中性子フラックスモニタ計数の関係を図-8に示す。図-7より、空気マトリックスに対する相対感度は、嵩密度0.1~0.4g/cm<sup>3</sup>の紙、布、ポリエチレンにおいて1.0を超え0.2g/cm<sup>3</sup>付近において最大ピークを示している。これは、分析容器内に測定対象廃棄物が置かれた時、照射中性子の分析容器及び廃棄物マ

トリックスによる熱化率が最大となる条件設定を意図した減速材等の設計を行っているためである。ポリエチレンマトリックスでは、嵩密度  $0.2\text{g/cm}^3$  付近までは空気マトリックスより良い感度を示すが、これを超えると相対的に感度も落ち約  $0.5\text{g/cm}^3$  以下では、相対感度が 0.1 を下回るようになっている。これは、ポリエチレン自身低密度領域では減速材として作用し、ある密度以上になると中性子消滅作用をもつことによるものと考えられる。一方、金属及び塩化ビニールと紙の混合マトリックス廃棄物では、熱中性子吸収断面積が比較的大きい鉄、塩素に起因する熱中性子吸収傾向が認められた。各廃棄物マトリックスの分析容器内フラックスモニタ計数の変化(図-8)から、各マトリックスによる中性子減速及び吸収傾向が評価できる。即ち、空気中のフラックスモニタ計数に対する相対比が、1.0を超えているマトリックスについては中性子減速成分を含み、1.0を下回っているマトリックスでは吸収成分が含まれていることが判別できる。なおここで、空気マトリックスを基準としたフラックスモニタ計数比とアクティブ中性子計数比が異なった傾向を示しているが、これは、分析容器内と廃棄物マトリックス中の熱中性子束が異なっているためである。

## 5. 今後の課題

本装置の特性評価並びに廃棄物マトリックスによる検出感度等への影響について確認したが、今後は核種偏在、マトリックスの混在及び廃棄物の不均質性等による影響を、実廃棄物により近い条件で評価し確認する。また、マトリックス中の減速材、吸収材、廃棄物組成等をパラメータとして計算コードによるマトリックスによる影響を評価し、現象を理論的に解明して、これらの影響を適切に補正し、TRU核種を高感度、高精度で測定評価できるシステムに改良、高度化を図って行く予定である。

## 参考資料

- (1) 加藤 敬他：「核種インベントリ技術開発」  
PNC ZJ1281 91-004 1991年4月
- (2) 大内 優他：「共同研究報告書 廃棄物中のTRU核種測定技術に係る研究」  
PNC ZY1216 91-001 1991年3月
- (3) 星野昌人他：日本原子力学会「1991年 秋の大会 予稿集」  
「アクティブ中性子によるTRU核種測定技術開発(I)」  
TN8410 91-156 1991年6月

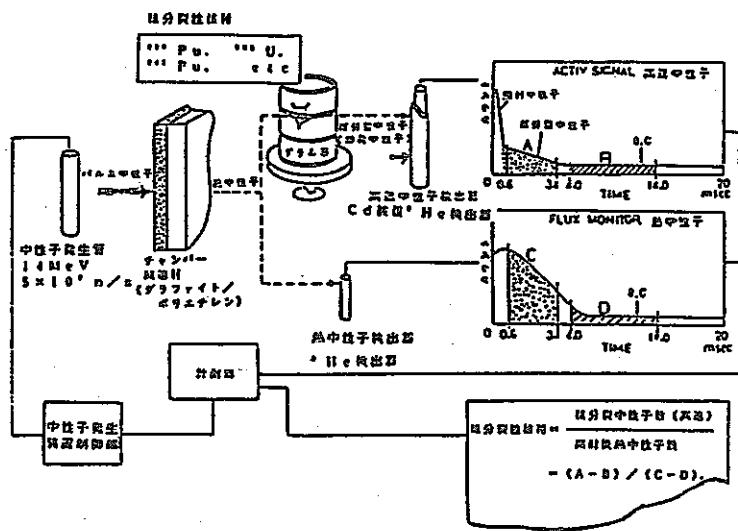


図-1 アクティブ即発中性子法測定概念

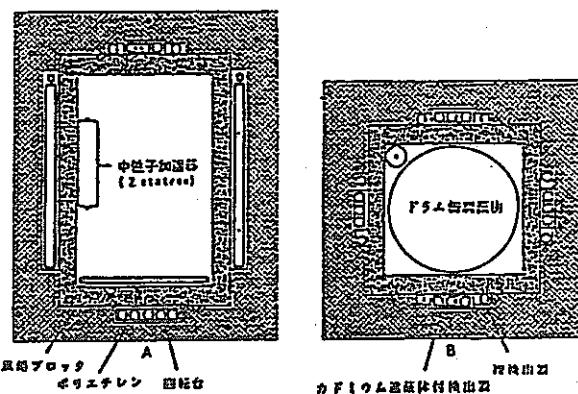


図-2 P.A.N.装置の断面構造

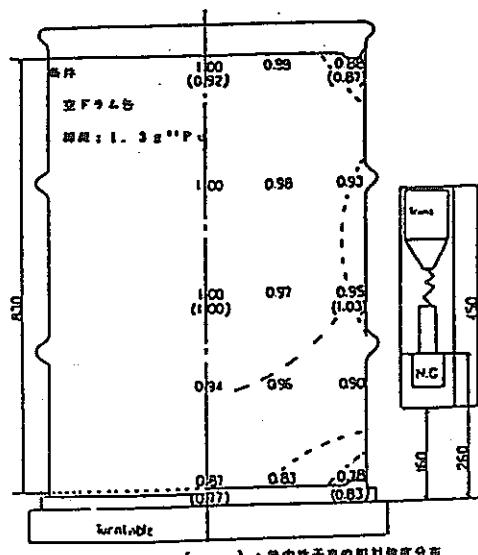


図-3 アクティブ中性子法での検出感度分布  
(Cd被覆検出器による即発中性子計数の相対比)

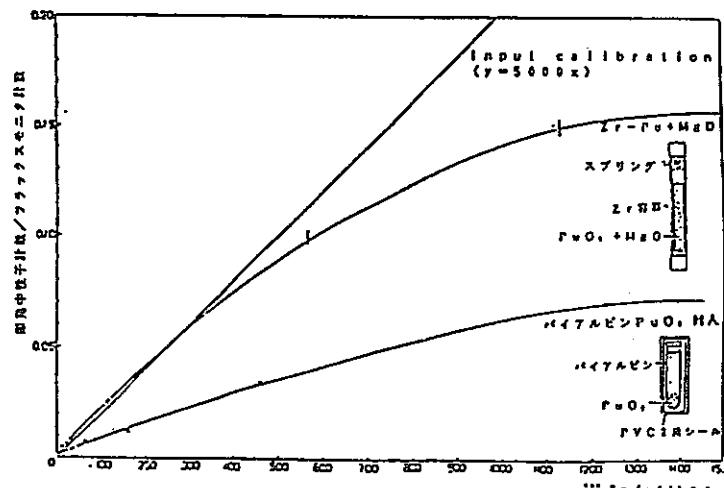


図-4 アクティブ中性子計数と<sup>239</sup>Pu (c f f) 量の相関

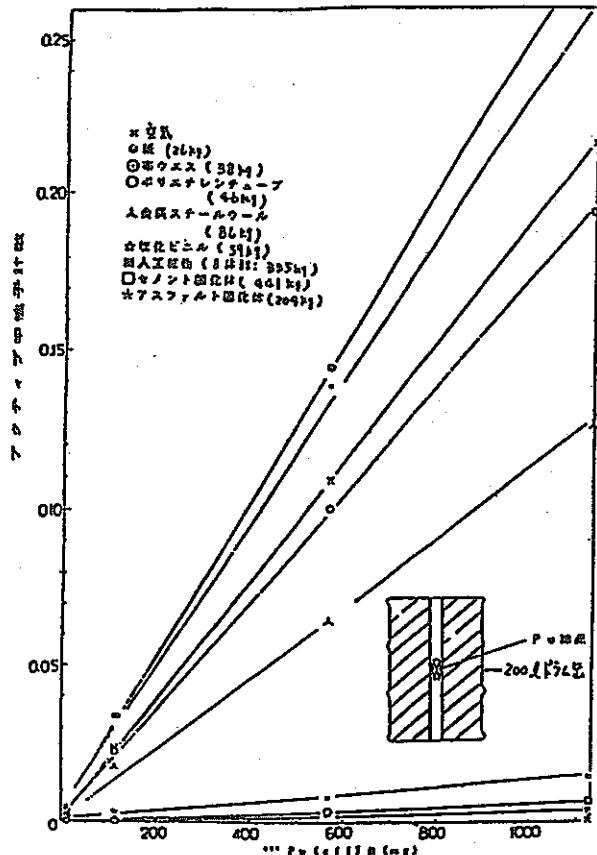


図-5  $^{239}\text{Pu}$  (eff) 量に対する中性子計数

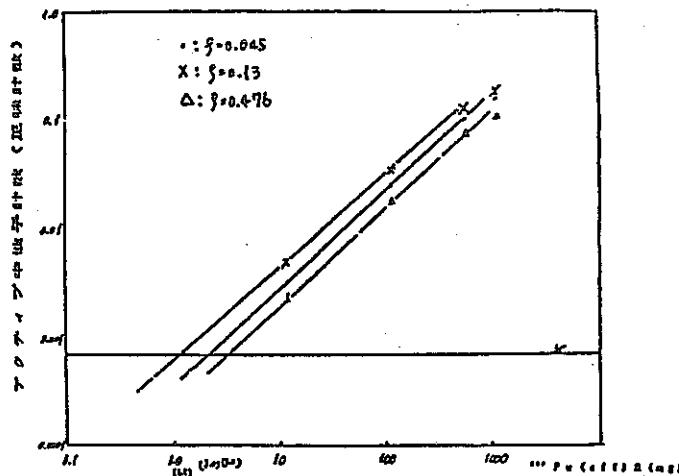


図-6 紙マトリックス中での  $^{239}\text{Pu}$  (eff) 検出限界値 (推定)

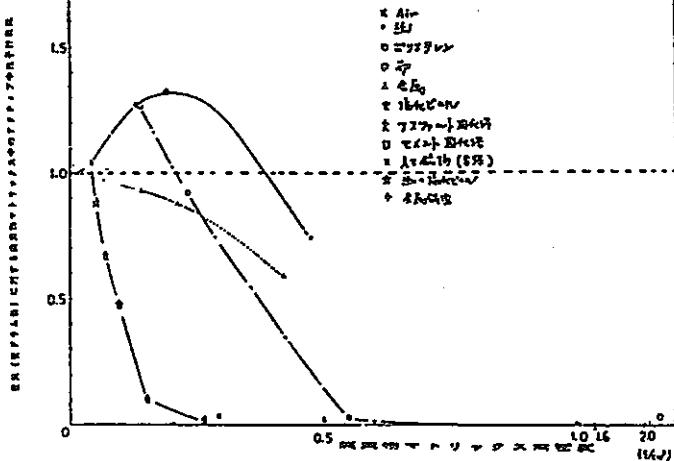


図-7 廃棄物マトリックス基密度に対する  
(即発中性子計数値/フラックスモニタ) 計数比との関係

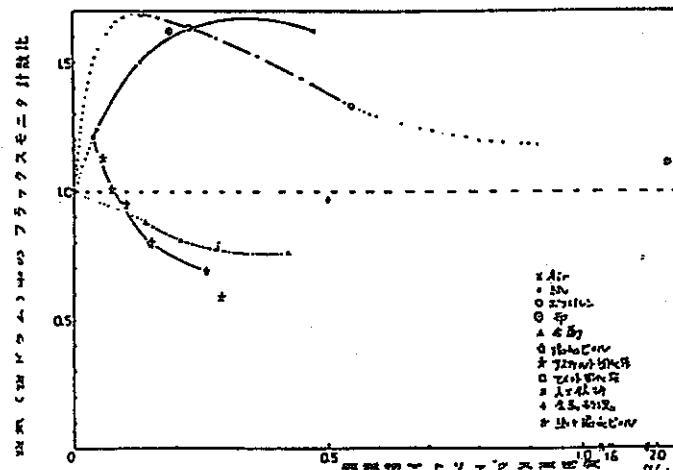


図-8 各廃棄物マトリックス高密度変化に対応した  
熱中性子束 (フラックスモニタ計数) の変化

# 放射性廃棄物の減容処理技術の信頼性に関する研究

大洗・管理部 阿部 隆  
東海・環境施設部 宮田 和俊

## I. 研究の概要

再処理施設から発生する低レベル放射性廃棄物及び高線量固体廃棄物（ハル、使用済フィルタ分析試料瓶等）の減容処理技術について、安全性、信頼性を実証するための研究を行った。

1. 再処理施設で発生する低レベル廃液を蒸発乾燥粉体化処理により減容処理するための技術に関する研究を行った。

### (1) 低レベル廃液の性状調査

動燃東海再処理施設でアスファルト固化処理されている低レベル濃縮廃液の放射性核種濃度、塩濃度、固体分濃度、油分濃度、非放射性元素濃度、pH及び密度を調査した。

### (2) 蒸発乾燥処理試験

低レベル濃縮廃液を小型ロータリエバポレータにより蒸発乾燥処理した場合の凝縮液及びオフガス系への放射性核種の移行挙動を評価した。試験パラメータとしては、廃液のpH（2、7、9、13）及び加熱温度（150°C、175°C）とした。

2. 再処理施設の運転及び機器の補修等に伴って発生する低レベル固体廃棄物を圧縮押出し法により減容処理するための技術に関する研究を行った。

### (1) 圧縮押出し金型の性能試験

被処理物の押出し状態を確認した。

### (2) 圧縮押出し成形物の特性評価試験

圧縮押出し成形物の比重及び曲げ強度特性を評価した。

3. 高線量固体廃棄物については、ハルの圧縮〔熱間等方圧加圧（H I P）処理〕による減容処理技術に関する研究を行った。使用済燃料再処理工場の剪断、溶解工程から発生する被覆管、集合体部材等の溶解残渣は、ハル及びハードウェアと呼ばれている。これらは未溶解燃料や核分裂生成物で汚染されたTRU廃棄物である。ハル処理に当たっては、その特性である①高密度が小さい、②酸素含有量の多い活性な金属、③TRU核種や未溶解燃料の付着、④トリチウムの吸収、⑤発熱等を考慮する必要があり、有望な処理方法として、H I P（熱間等方圧加圧）法を抽出した。H I P法は、アルゴン等のガスを圧力媒体として高い等方圧力と高温との相乗効果を利用し、ハル、ハードウェアを拡散接合させるプロセスである。本研究では、電気炉を使用した加熱時のBWR使用済燃料被覆管の特性調査を実施するとともに、模擬ハルを使用したコールドでのH I P処理試験を実施し、前処理工程である予備圧縮工程、脱気密封工程を含めたH I P法によるハル処理技術の基礎を確立した。また、H I P中に放出が予想されるトリチムに関しても放出を抑制できることを実証した。

## II. 研究成果

1. 低レベル廃液の蒸発乾燥粉体化処理による減容処理技術

### (1) 低レベル廃液の性状調査

昭和63年度（7～9月）にサンプリングした低レベル濃縮廃液の性状は以下の通り。

- (a) 密度 : 1.17~1.18g/ml
- (b) pH : 13.5~13.7
- (c) 固形分濃度 : 1000ppm以下と推定される。
- (d) 油分濃度 : 1500~2600ppm
- (e) 塩濃度 : 全塩濃度 : 230~280g/l

内訳 : NaNO<sub>3</sub> 50%  
Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 30%  
NaNO<sub>2</sub>、Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 各10%

- (f)  $\gamma$  放出核種濃度 : 全核種濃度4.3~5  $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ のうち、主に溶液中に存在している<sup>137</sup>Cs、<sup>106</sup>Ru、<sup>134</sup>Csの3核種が約90%を占めている。  
固形分に付着している（あるいは固形分の）放射能は約10%
- (g)  $\alpha$ 核種濃度 : <sup>238</sup>Pu + <sup>241</sup>Amのみが固形分で検出される（約2  $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ）  
(<sup>241</sup>Amの放射能と判断される。)
- (h) 不純物濃度 : 検出された不純物元素は、K、Si、Al、Fe、Ca、B等の13元素。

## (2) 蒸発乾燥処理試験

上記の低レベル濃縮廃液を蒸発乾燥処理した場合の放射性核種の挙動は以下の通り。

- (a) 凝縮液への核種移行（図-1参照）
  - ① 検出された核種（<sup>129</sup>Iを除く）はすべて同等の除染係数（DF）であった。
  - ② 加熱温度150°Cの場合、DFは10以上であった。
  - ③ 加熱温度175°Cの場合、DFは小さくなり、その傾向は試験液pHが小さい程著しかった。
  - ④ <sup>129</sup>Iは、試験液pH 7~13ではDF 20以上、pH 2ではほぼ1であった。
- (b) オフガス系への<sup>106</sup>Ru、<sup>129</sup>Iの移行
  - ① <sup>106</sup>Ruは洗気液中で検出されず、移行率は $3 \times 10^{-6}$ 以下であった。
  - ② <sup>129</sup>Iの移行率は試験液pH 7~13では加熱温度に関係なく $2 \times 10^{-2}$ 以下、pH 2では約0.1であった。（図-2参照）

## 2. 低レベル固体廃棄物の圧縮押出し法による減容処理技術

- (1) 圧縮押出し金型の性能評価試験
  - (a) 金属押出しにおいては、ステンレス鋼（SUS）を除き可能であることがわかった。
  - (b) SUSについては、連続押出しとならない場合に、衝撃的に先端部が押し出される（ブレーカスル）現象が特に顕著であった。
  - (c) 圧縮押出し棒の応力集中については、十分な考慮を要する。（試験中の圧縮押出し棒の破損は取付け部の破壊が起点となっている。）

## (2) 圧縮押出し成形物の特性評価試験

試験対象模擬廃棄物14種類のうち、アルミニウム、鉛、HEPAフィルタ及び針金材について圧縮押出し成形物を得ることができた。表-1にこれら成形物の特性及び減容比を示す。

## 3. ハルのHIP処理技術

- (1) 実ハル性状調査
  - (a) 加熱時放出核種量評価試験  
ハルの処理技術開発を進めるに当たって処理対象となる実ハルの性状のうちHIP処理を

対象とした加熱時における放射性F P核種等の挙動を明らかにする必要がある。本試験ではB WR使用済燃料被覆管を不活性ガス雰囲気（アルゴンガス中）で電気炉で加熱し放射性F P核種の気相移行特性及び沈着温度を調査するとともに、加熱時のトリチウムの放出特性を調査した。その結果、以下に示す基礎データを得た。

- ①  $^{60}\text{Co}$ 及び $^{125}\text{Sb}$ の蒸発率は、試験温度150～1100度の範囲で無視できる。
- ②  $^{137}\text{Cs-Ba}$ の蒸発率は、試験温度約700°Cから温度の上昇とともに増加する。
- ③  $^{131}\text{I}(\text{CsI})$ の蒸発率は、試験温度約660°C以上で温度の上昇とともに急激に増加する。
- ④  $^{137}\text{Cs-Ba}$ は、約620°C（約90%）及び約290°C（約8%）の温度帯に沈着する。
- ⑤  $^{131}\text{I}(\text{CsI})$ は、約440°C（約56%）及び約330°C（約39%）の温度帯に沈着し、 $^{131}\text{I}(\text{AgI})$ は、約420°C（約97%）及び約530°C（約1.3%）の温度帯に沈着する。
- ⑥ トリチウムの放出率は、試験温度約500°Cから温度の上昇とともに増加する。
- ⑦ トリチウムの被覆管中吸蔵生成率は、生成量（計算値）の約60%である。

(b) 加熱時圧縮引張強度試験

使用済燃料被覆管は、照射及び含有酸素等の影響を受け引張強さ耐力等が増加し延性が低下することが知られている。H I P処理において約1000°Cの高温で圧縮処理されることからハルのリング引張及び圧縮試験を行い、使用済燃料被覆管の高温における引張強さ、圧縮変形特性及び変形時の剥離・飛散について調査した。その結果を以下に示す。

- ① 引張強さは高温になるに従い減少し、1000°C付近よりほぼ一定となる。900°C～1100°Cにおいては、引張強さは未照射材が0.67～2.17kg/mm<sup>2</sup>、使用済燃料被覆管は1.17～2.30kg/mm<sup>2</sup>であり、使用済燃料被覆管の方がわずかに大きい。
- ② 使用済燃料被覆管に比べ未照射材の方が偏平化されやすい傾向にあった。また、偏平化は高温になる程容易になるが、1000°C以上ではほぼ同程度であった。
- ③ 引張及び圧縮変形時における剥離・飛散は室温においてわずかに生じたが、高温については生じず、逆に酸化によるわずかな増加を示した。

以上の結果、H I P処理中の未照射と照射被覆管では、機械的性質に有意義な差がないことが判明した。

(c) トリチウム吸蔵特性評価試験

H I P処理時H I Pカプセルを透過し、H I P容器内に唯一放出が懸念されるトリチウムを、降温時ハルに再吸蔵させる目的で、ハルのトリチウム吸蔵特性を調査した。

実ハルから気相移行したトリチウムを用いて、吸蔵温度（400°C、600°C、700°C、800°C、900°C及び1000°Cの6条件）をパラメータとして、未照射ZrY-2被覆管（白管）に対する吸蔵最適温度評価試験を行った結果、トリチウムの吸蔵は試験温度約600°C以上で温度の上昇とともに増加し、約700°C～900°Cの温度範囲において最大となった。なお、約900°C以上の温度領域ではトリチウム放出の割合が高くなるため、トリチウム吸蔵率は急激に減少した。また、実ハルから気相移行したトリチウムガスを用いて、吸蔵時間をパラメータとして未照射ZrY-2被覆管（白管）に対する吸蔵所要時間評価を行った結果、加熱温度700°Cにおけるトリチウムの吸蔵率は、30分以内で急激に増加し、試験時間30分以上ではほぼ一定となった。しかし、最適条件においてもトリチウム吸蔵率は低かった。

以上の結果、一度放出したトリチウムは、H I P容器内のアルゴンガス中に残存することが判明した。

## (2) H I P法によるハル処理技術

ハルのH I P法の重要な工程である予備圧縮工程、脱気密封工程、H I P処理工程の模擬ハルを使用したコールド試験を実施するとともに、カプセルからの放出が考えられるトリチウムの挙動について調査を実施した。

### (a) 予備圧縮工程

ハルの嵩密度は約  $1 \text{ g/cm}^3$  であり、ジルカロイの真密度  $6.5 \text{ g/cm}^3$  とは大きな差がある。この状態でハルをH I P処理した場合、H I Pカプセルの変形による健全性の保証、H I P装置の大型化による経済性及び使用ガス量の増量による事故時の安全性等の問題があり、前もってプレス装置等による予備圧縮を行い、真密度を70%以上にするためハルを圧縮する。本試験の結果、プレス方式としてカプセルの中で圧縮を行うインキャンプレス方式を選定した。本法でのプレス圧力はカプセル径が大きければ大きいほど小さい圧力で圧縮可能なことが判明し、実規模を想定したカプセル径295mmのとき圧力  $1.5 \text{ ton/cm}^2$  で圧縮できた。なお、圧縮後の真密度比70%を得るための1ストロークのハルの供給高さは最大200mmであり、プレス速度は遅い方が良く、本試験では3mm/秒を採用した。また、本法でのカプセルの形状は、円筒形が良く、変形を考慮するとカプセル径とカプセル高さが同程度以下であり、カプセル厚は減容性、健全性を考慮し3mm程度が良いことが判明した。

以上の結果、ハルを真密度70%以上に予備圧縮する方法が確立できた。

### (b) 脱気密封工程

予備圧縮後のカプセル内には乾燥での残存水分、空気、不純ガス等が圧縮されたハルの隙間に混入しており、H I P後の固化体への悪影響を防止するため真空脱気を行う必要がある。また、H I P処理中のカプセルの変形に耐え得るような密封を行う必要がある。

本試験において脱気密封法として真空チャンバー内の脱気及び電子ビーム溶接による密封法を開発した。なお、真密度とカプセル材質の調査を行った結果、①共晶反応は真密度に依存しない、②カプセル材はSUS304Lが良い、③真密度は  $5 \times 10^{-1} \text{ Torr}$  程度で良い、④カプセルの厚みはカプセル径の1%以下にするなどを明らかにした。

また、脱気特性試験を行い、予備圧縮されたH I PカプセルをH I Pコンテナ内に2段積みする方法を開発した。この際、上下のH I Pコンテナ間及び上のH I Pコンテナと蓋との隙間に充填する粉体は、大粒径のものが望ましく、蓋の下に  $105 \mu \text{m}$  の粒径の粉体を10mm厚みで充填することにより脱気時のハル剥離物の飛散防止が可能なことを実証した。

以上の結果、剥離物の飛散を防止する脱気密封法が確立できた。

### (c) H I P処理工程

アルゴンガスを圧力媒体として高い等方圧力と高温の相乗効果を利用して、ハルを拡散接合させる。本試験において、以下に示す結果が得られた。

- ① H I P圧力媒体としては取扱いの面から気体（アルゴンガス）が良いと判定した。
- ② H I P温度は、ハルを接合させる条件として最も重要な因子である。950°Cでは金属間の拡散反応がほとんど起こらなく、1100°C以上ではハードウェア材のインコネルとジルカロイの共晶反応が発生するためH I P温度を1000°Cに設定した。
- ③ 一般産業におけるH I P法の使用実績により、当初  $1000 \text{ kg/cm}^2 \sim 15000 \text{ kg/cm}^2$  の圧力、保持時間1時間程度を考えていたが、ハル処理の目的である核種の包蔵性、安定化及び施設内での高圧ガス規制の問題、安全性、装置の経済性を考慮すると、加圧圧力の低減化は、

非常に多くの利益をもたらす。

これらの状況をふまえ、小型のH I Pコンテナ（径 100×高さ 150mm）を利用してH I P圧力の低減化試験を行った。

H I P圧力を $1000\text{kg/cm}^2$ ～ $50\text{kg/cm}^2$ まで変化させ、できた固化体を試験した結果、有意義な差を見出すことができなかった。また、高圧ガス規制の範囲外となる  $9.9\text{kg/cm}^2$ に関しては充分な圧縮効果が得られなかった。この結果を踏まえ、H I P圧力  $100\text{kg/cm}^2$ 、保持時間 3 時間を決定した。

④ 小型H I P試験の成果を受けて、実規模程度の固化体の試作を実施した。また、エンドピースの同時処理試験を実施した。得られた固化体の分析を実施した結果を以下に示す。

イ. 固化体の金属組織観察の結果、ハル相互間、ハル・ハードウェア間は良好に接合していることが確認できた。ハルとハードウェア間界面には共晶反応に因ると推定される境界層が存在した。ハルとカプセル間にも境界層が存在したが、その厚さは  $300\mu\text{m}$ 以下で、カプセルは健全であった。

ロ. T R U核種模擬成分( $\text{HfO}_2$ 、 $\text{CeO}_2$ )はいずれも還元されていた。 $\text{Hf}$ は拡散が速く、ハル中に一様に分布していたが、 $\text{Ce}$ はハル界面に封じ込められていることが確認された。

ハ. 固化体の強度は、破断応力が約  $7\text{kg/mm}^2$ 、抵抗力が約  $60\text{kg/mm}^2$ であった。

ニ. 固化体の密度は約  $6.6\text{g/cm}^3$ であり、期待通りの緻密な固化体を得ることができた。

ホ. 固化体の耐食試験を70気圧、 $360^\circ\text{C}$ 加熱下で純水中に72時間浸漬して行った。この結果、H I P固化体ではハルとハードウェアとの接合界面のうち、Ni量が多いインコネル材との共晶反応部分で固化体が一部欠落する現象がみられたが、S U S 304材との界面には腐食はみられなかった。なお、T R U模擬物質の試験水への溶出は固化体の一部が欠落した試験水ではCeの溶出量が  $0.003\text{ppm}$ 、Hfの溶出量が  $0.002\text{ppm}$ で、ハードウェアを含まないジルカロイ相互の部分からはHfが  $0.001\text{ppm}$ 以下、又はCeも  $0.001\text{ppm}$ 以下と検出限界以下の値を示した。また、固化体そのものの成分の溶出についてはFe、Ni、Crの溶出量がT R U模擬核種と比べて多い。H I P固化体では一部欠落した試験片ではFe成分が多い。

ヘ. エンドピース同時処理においては固化体には圧縮時の隙間もなく、また、エンドピースに最初から設けられている燃料棒固定のための多数の細い穴にもハルが満たされているのが判明した。このような細かい穴に対して、単に機会的な圧縮だけではハルが侵入することは有り得ないだけに、このような空間までハルが満たされ、空孔のない固化体が作成可能なこともH I P処理の大きい特徴のひとつであることが判明した。

以上の結果、ハルをH I P処理した場合、ハル処理の目的である減容性、核種の包蔵性、安定性（発火の抑制）が満足される固化体が得られることが判明した。

#### (d) トリチウムの挙動

H I P法は、核種の包蔵性という優れた特徴を持っているが、唯一トリチウムに関しては高温において金属材料中を容易に拡散透過することから、その放出が懸念される。そのため、重水素で模擬したハルを使用したH I P試験、電気炉試験を実施した結果、以下の成果を得た。

① トリチウムの模擬物質として重水素を使用した試験の結果、アルゴンガス中への放出は分析限界値( $10\text{ppm}$ )を下回り検出できなかった。また、拡散方程式を使用した計算（水素

ージルカロイ)でのトリチウム放出量は、0.04%と微量であることが判明した。

- ② 廃棄物としてのトリチウム量を抑えるためには、アルゴンガスの再使用が望ましい。
- ③ H I P容器内のトリチウムによる汚染は、ガスバージすることによるベーキング、又はふきとりにより濃度低下を図る方法が考えられる。
- ④ H I P中に形成される酸化被膜によりトリチウムの放出が抑制されることがわかった。なお、酸化被膜はCr系で厚さが $15\mu\text{m}$ であった。
- ⑤ H I P中に形成される酸化皮膜は、電気炉で水分を付加することにより同様の酸化皮膜ができることがわかった。

以上の結果、Cr系の酸化被膜がトリチウムの放出を抑制することが判明した。

#### 4. まとめ

##### (1) 低レベル廃液の蒸発乾燥粉体化処理による減容処理技術

再処理施設から発生する実廃液の性状調査を行うとともに、実廃液を用いた蒸発乾燥基礎試験を実施し、揮発性核種とされる $^{106}\text{Ru}$ を主体に、放射性核種のオフガス系への移行挙動を評価することができた。取得データについては、低レベル廃棄物処理開発施設での低レベル濃縮廃液処理設備等、将来施設の安全性、信頼性に関するデータに資する。

##### (2) 低レベル固体廃棄物の圧縮押出し法による減容処理技術

種々の金属廃棄物に対する圧縮押出し法の処理特性を評価し、各金属廃棄物に対する課題を把握することができた。研究成果については、低レベル廃棄物処理開発施設での金属処理設備等、将来施設の安全性、諸来世委の評価に資する。

##### (3) ハルのH I P処理技術

ハルをH I P処理する場合の主プロセスの大要を明らかにし、「H I P法によるハル処理」の基礎研究としては、充分な成果を挙げることができた。H I P法によるハル処理のプロセスを図-3に示す。

ハル処理の目的である減容性、安定性、核種の包蔵性を満足した固化体がH I P法により製作可能なことを実証した。

今後、雑廃棄物のハルへの混入によるH I P固化体への影響試験、乾燥不足等による水分の混入によるH I P固化体への影響試験等、実用環境技術に向けた調査を実施し、ハル処理技術開発施設(仮称)の安全性、信頼性のデータと資する。

表-1 圧縮押出し成形物の特性及び減容比

対象廃棄物	見掛け密度 (g/cm <sup>3</sup> )		減容比	曲げ強度 (kgf)
	圧縮前	圧縮後		
SWM-B (針金)	1.8	6.4	3.6	900
アルミニウム	0.4	2.3	5.8	110
鉛	3.7	10.3	2.8	200
金属枠HEPAフィルタ	0.6	5.0	8.3	330
シリカボード	0.1	0.9	9.0	—
電気ケーブル	0.6	1.8	3.0	—

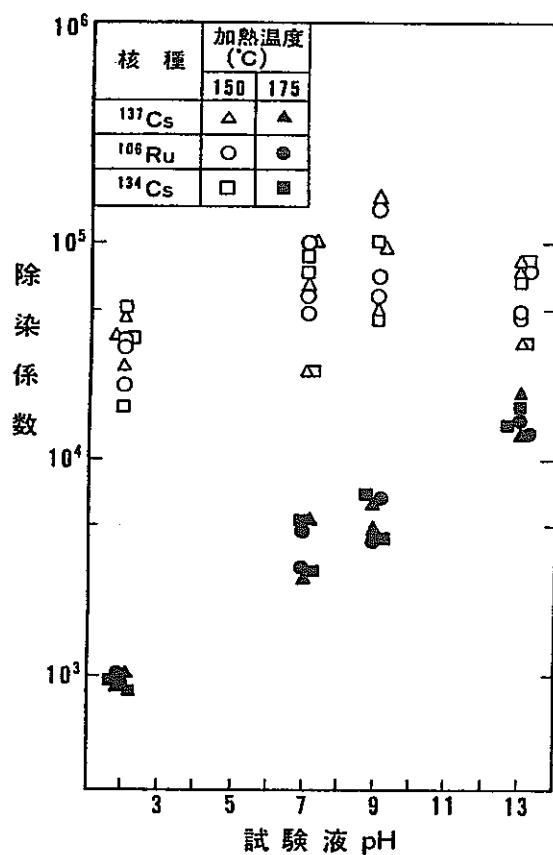


図-1 試験液pHと凝縮液除染係数の関係

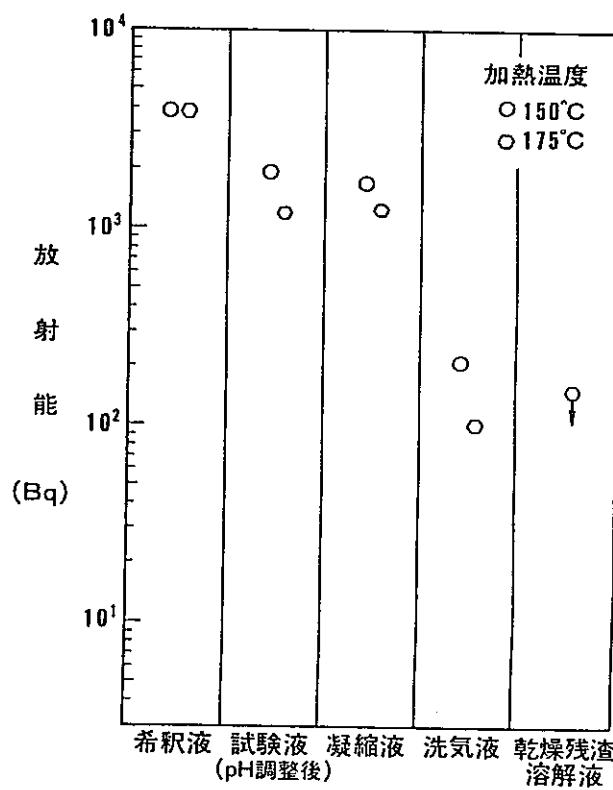


図-2 pH 2 の試験における各溶液中の<sup>137</sup> Cs 放射能

予備圧縮工程

脱気密封工程

HIP工程

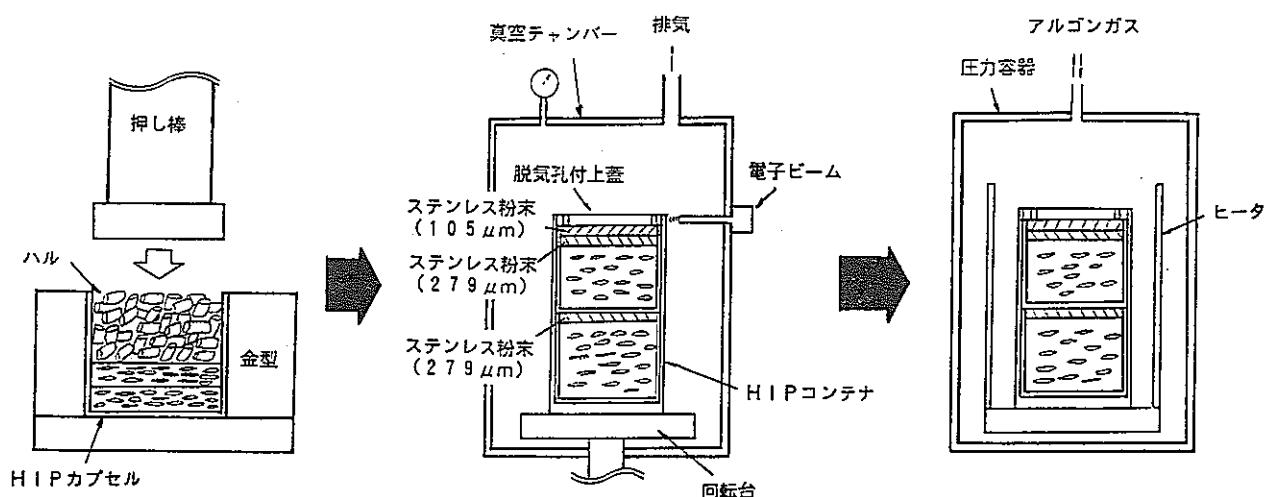


図-3 HIP法によるハル処理プロセス

# 分析廃液、含塩廃液の処理技術の信頼性に関する研究

東海・環境技術開発部 小林 師

## I. 研究の概要

再処理施設から発生する分析廃液、含塩廃液等、低レベル廃液については、現在アスファルト固化を行っているが、将来の貯蔵、輸送、処分等の負担軽減を図るため、より減容性の高い大きい技術として、低レベル廃液中から放射性核種だけを分離・除去し、廃液中の放射性物質濃度を海洋放出可能なレベルまで低減する研究を実施した。

昭和61年度から平成元年度までは、低レベル廃液からの核種除去に最適と考えられる処理方法について調査、検討を行い、共沈・限外濾過、イオン交換等を組み合わせた方法を選定した。また、選定した処理方法について模擬廃液を用いたコールド基礎試験を実施し、共沈・限外濾過及びイオン交換の処理条件及び除去性能の把握を行った。

平成元年度から2年度までは、コールド基礎試験によって得られた処理条件をもとに、極低レベル廃液(VLAW)を用いて、低レベル廃液の塩及び夾雑物濃度の模擬廃液を調整し、ホット基礎試験を実施した。試験の結果、海洋放出レベルの極低濃度領域( $10^1 \text{Bq}/\text{cm}^3$ オーダー以下)まで放射性核種を低下させることができることがわかった。

以上の結果から、本処理法が極低濃度領域においても十分な核種除去性能を有することが実証され、低レベル廃液中から放射性核種だけを分離・除去するために有効であることがわかった。

## II. 研究成果

### 1. プロセス選定

低レベル廃液から放射性核種を分離・除去する最適な方法を選定するにあたり、選定に必要な評価項目を分類し、TRU核種や放射性よう素等の長寿命核種を含む種々核種の分離・除去技術として、評価項目毎にできるだけ定量的に、各除去方法の得失を評価した。評価項目を表-1に示す。

表-1より、最適な核種除去プロセスとして、

- ① よう素除去には硝酸銀添加による不溶化処理法
- ② ウラン、プルトニウム、アメリシウム、ルテニウム、セリウム、ジルコニウム及びアンチモンの除去には共沈分離と、膜分離の組み合わせ。
- ③ ストロンチウム及びセシウムの除去にはイオン交換分離。

という全体の組み合わせで処理するプロセスを選定した。

本プロセスは骨格となる共沈・限外濾過工程を中心に据え、気相に移行しやすいよう素を不溶化処理により最初に除去し、共沈・限外濾過によりほとんどの対象核種を除去した後、水酸化物の溶解度が大きく、共沈・限外濾過で除去できないストロンチウムとセシウムをイオン交換で最後に除去する方法である。

選定しなかった除去方法は、実証性の低さ、処理能力大型化、操作性等に難点があり、採用から除外した。

中心となる共沈・限外濾過工程については、

- ① 除染係数の高さ。

- ②多くの核種への適応性の広さ。
- ③相変化を伴わず、分離に要するエネルギーの低さ。
- ④高塩濃度に対する適合性の高さ。
- ⑤連続操作の容易さ。
- ⑥高温、高圧等が操作上不要な安全性の高さ。
- ⑦経済性の高さ。
- ⑧原子力分野等での適用実績(実証性の高さ)。

等により、膜の目詰まり防止等の工学的要解決点はあるものの、十分に技術的に解決可能なため、他の方法に比べ総合的に優れると判断した。

イオン交換法については、対象各種(ストロンチウム及びセシウム)が、その水酸化物の溶解度が大きいために共沈・限外濾過では除去できること、また、イオン交換法が実証性が高く、簡便でもあり、ストロンチウム及びセシウムの除染係数を十分とれることから採用した。イオン交換法は使用したイオン交換体の交換といった操作上の問題等もあるが、エンジニアリング的に解決可能であり、他の除去方法に優ると判断した。

## 2. プロセスフローの概要

プロセスフローを図-1に示す。

### (1) 前処理(試験液調整)

廃液の塩濃度及びpH等の調整を行い、攪拌した後、4時間静置することにより、粒径の大きいスラッジを沈降分離する。静置後、上澄み液を抜き取り、よう素除去工程へ送る。

### (2) よう素除去

廃液に亜硫酸ナトリウムを添加することにより、液中のよう素を $\text{I}^-$ から $\text{I}^+$ にした後、硝酸銀を添加し、よう化銀の形でよう素を沈殿させる。沈殿操作後の液を限外濾過Ⅰへ送る。

### (3) 限外濾過Ⅰ(pH13~14)

限外濾過を行うことにより、液中に存在する微細なスラッジを除去する。濾液は脱炭酸処理工程へ送る。

### (4) 脱炭酸処理(pH1)

脱炭酸処理槽に硝酸を入れ、液温を約80°Cとし、空気を供給しながら限外濾過Ⅰの濾液を供給する。2時間後、空気供給と加熱を行うことにより、ウランを炭酸ウラニルから硝酸ウラニルへ転化させ、不溶化しやすい形にする。

### (5) 共沈Ⅰ

脱炭酸を終了した廃液に硝酸第二鉄 $20\text{mg}\cdot\text{Fe/l}$ を攪拌しながら添加し、その後pH10になるよう水酸化ナトリウムを添加する。2時間静置した後、上澄み液だけを抜き取り、限外濾過Ⅱへ送る。この操作でアンチモン、ストロンチウム、セシウムを除く核種を共沈させる。

### (6) 限外濾過Ⅱ(pH10)

限外濾過を行うことにより、液中に存在する微細なスラッジを除去する。濾液は共沈Ⅱ工程へ送る。

### (7) 共沈Ⅱ

限外濾過Ⅱ工程からの濾液を攪拌しながら硝酸でpH2に調整した後、硝酸第二鉄 $20\text{mg}\cdot\text{Fe/l}$ を添加する。その後、pH7になるよう水酸化ナトリウムを添加し、2時間静置した後、上澄み液を抜き取る。この操作でアンチモンを共沈させる。上澄み液は限外濾過Ⅲへ送る。

#### (8)限外濾過Ⅲ

限外濾過を行うことにより、液中に存在する微細なスラッジを除去する。濾液はイオン交換処理工程へ送る。

#### (9)イオン交換処理(pH7)

限外濾過Ⅲ工程からの濾液をチタン酸イオン交換体で処理し、夾雑物であるマグネシウム及びカルシウムを除去した後、同じチタン酸イオン交換体でストロンチウム、フェロシアン化コバルトカリウムイオン交換体でセシウムを除去する。

以上、(1)～(9)の処理工程を経た廃液中の放射性物質濃度は海洋放出可能なレベル以下となる。

### 3.選定した処理プロセスによる基礎試験

#### (1)コールド基礎試験(I)

工程毎の性能確認を目的としたビーカー規模のコールド基礎試験を実施し、実廃液の塩濃度及び夾雑物濃度を模擬した廃液を用いて、最適処理条件を確定した。

低レベル廃液からの核種除去基礎試験における最適処理条件を表-2に示す。

#### (2)コールド基礎試験(II)

上記、コールド基礎試験(I)で得られた処理条件をもとに、ビーカー規模の小規模な試験装置を用い、実廃液の塩濃度、夾雑物濃度を模擬した廃液で、かつ対象核種の安定同位体を数mg/lから数100mg/l程度加えた模擬廃液で、各処理工程を組み合わせた連続処理における核種除去性能、スラッジ発生量及び二次廃棄物発生量の把握を行った。

その結果、対象とした核種中、共沈・限外濾過によりストロンチウム及びセシウム以外は全てICP発光分光分析装置の検出下限値( $0.1\text{mg/l}$ オーダー)以下になった。そのストロンチウム及びセシウムもイオン交換処理により、ICP発光分光分析装置の検出下限値以下になった。また、夾雑物であるカルシウム及びマグネシウムについても同様に検出下限値以下になった。これより、一貫通液試験により、対象とした核種の全てが最終的に検出下限値以下になった。

#### (3)ホット基礎試験

コールド基礎試験では分析下限値が高く、本来目的とする極低濃度領域である海洋放出可能なレベル( $10^{-1}\sim 10^{-2}\text{Bq/cm}^3$ )以下になることは確認できていない。極低濃度領域では共沈やイオン交換における各核種の溶解度、平衡吸着量の関係で、各種除去に限界値が存在することも考えられる。そこで、極低レベル廃液を用いて極低濃度の放射性核種が除去できることが実証できれば、これまでに得られたコールド基礎試験の結果と併せて、 $10^5\text{Bq/cm}^3$ オーダーの放射性核種を含む低レベル廃液から海洋放出可能なレベルまで放射性核種を除去できることが期待できるので、極低レベル廃液を用いたホット基礎試験を実施した。

試験では極低レベル廃液を含有放射性物質濃度はそのままに、実際の低レベル廃液の塩濃度及び夾雑物濃度に調整した模擬液を用い、極低濃度領域( $10^2\sim 10^{-3}\text{Bq/cm}^3$ )での核種除去性能の試験を実施した。

試験の結果、海洋放出可能なレベル( $10^{-1}\text{Bq/cm}^3$ オーダー以下)まで核種濃度を低下させることができることがわかった。

### 4.結論

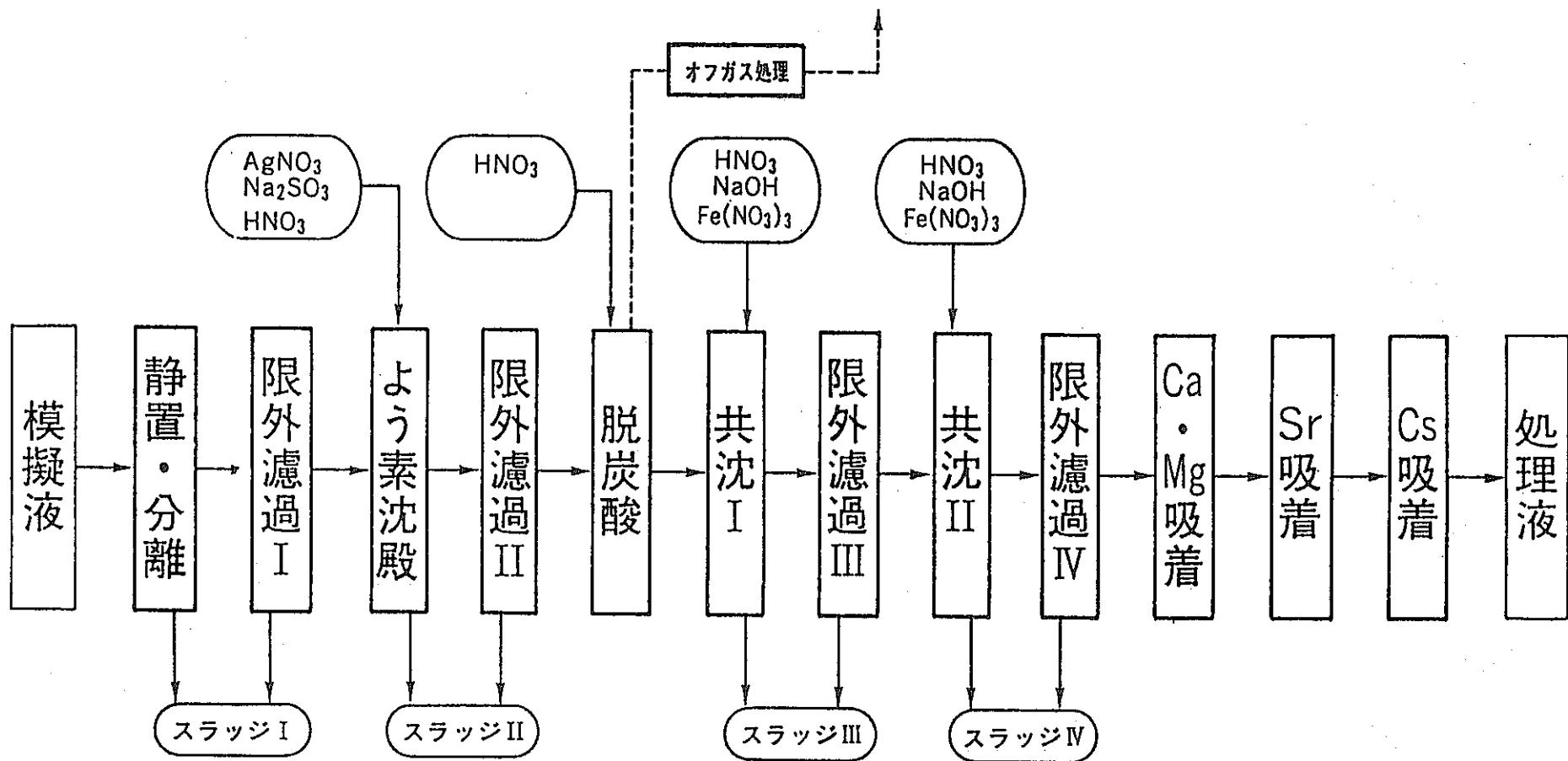
本研究により、本限外濾過法を放射性核種が高濃度領域から極低濃度領域まで低減する、十分な核種除去性能を有することが実証された。

表-1 評価項目

評価項目	判定基準
DF	高いDFが得られること。
経済性	経済性が高く、処理コストが低いこと。
保守性	保守性に優れ、メンテナンスが容易なこと。
耐塩濃度性	高硝酸塩濃度の溶液処理に適用できること。
実証性	実用化にあたって技術的な目処が得られていること。
操作性	システム構成と運転操作が単純であること。

表-2 低レベル廃液に関する核種除去コールド基礎試験における最適処理条件

工程	除去核種	条件	最適値
脱炭酸処理		pH 温度 エアレーション	1~2 80°C 0.7 l /分
共沈	$\alpha$ 核種 F.P.核種 (Sr, Csを除く)	pH 添加剤	2→10→7 硝酸第二鉄(10ppm)
限外濾過	$\alpha$ 核種 F.P.核種 (Sr, Csを除く)	通液速度 負圧	4~6ml/分(膜面積0.01 m <sup>2</sup> ) -400mmHg
イオン交換処理	Sr, Cs	pH イオン交換体	7 フェロシアン化コバルトカリウム チタン酸



	限外濾過 I	限外濾過 II	脱炭酸	限外濾過 III	限外濾過 IV	Ca・Mg吸着	Sr吸着	Cs吸着
PH	13~14	8	2.0	10.0	7.0	7.0	7.0	7.0
除去核種 (放射性核種) (夾雜物)	U, Pu, Am, Ce, Ru Nb, Zr Fe, Si	I	I $\text{CO}_2$ $\text{NO}_x$	U, Pu, Am, Ru Fe	Sb	Sr Ca, Mg	Sr	Cs

図-1 プロセスフロー図

# アスファルト固化体、プラスチック固化体の健全性確認試験

実施責任者 和地 勇\*

筆者氏名 藤田 秀人\* 村山 保美\*

日野田 正博\*\* 芳中 一行\*

## 1. まえがき

東海事業所再処理施設から発生する低放射性廃液はアスファルトと混合加熱することにより、アスファルト固化体として処理し、また、溶媒抽出工程から発生した廃溶媒及び廃希釀剤はTBPとドデカンに分離したのち、分離したTBPをエポキシ樹脂又はPVC樹脂と混合してプラスチック固化体として処理し、貯蔵施設に貯蔵保管している。

貯蔵保管し約8年を経過するこれらの固化体及びパッケージの健全性を確認するため、原子力施設等安全研究の一環として昭和61年度から平成2年度にかけて、固化処理時に採取した固化体の硬度、圧縮強度、針入度、含水率等の基本物性測定及び固化体パッケージ(200ℓドラム)の外観観察、鋼板厚さ測定を実施し、これを初期データとして、貯蔵保管している固化体及び固化体パッケージの基本物性等を確認し、比較評価を行った。

本報告書は、固化体の概要、固化体、固化体パッケージの物性測定試験及び試験結果の概要について記述したものである。

## 2. 試験の方法

### 2.1 固化体の概要

#### 2.1.1 アスファルト固化体

アスファルト固化の対象廃液は、再処理施設にて発生した酸回収凝縮液、オフガス洗浄廃液、分析廃液、床排水等の低レベル廃液を再処理施設の廃棄物処理場などで蒸発処理した低レベル濃縮廃液である。

アスファルト固化処理施設では、上記の濃縮廃液を受入れたのち、約3m<sup>3</sup>を1バッチとして、廃液のpHを硝酸にて調整したのち、必要に応じて、Ba(OH)<sub>2</sub>、K<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub>、NiSO<sub>4</sub>等を加えてSr、Csなどの核種の不溶化処理を実施する。廃液の調整後、脱水混合機であるエクストルーダに供給し、廃液とアスファルトを加熱混合することにより廃液中の水分を蒸発脱水し、廃液中に含まれる塩(NaNO<sub>3</sub>、NaNO<sub>2</sub>、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>、etc)及び放射性物質をアスファルト中に均一に分散する。廃液中に含まれる塩及び放射性物質を含むアスファルトプロダクトは、エクストルーダから200ℓドラムに充填後、冷却されアスファルト固化体となる。

なお、アスファルト固化処理施設の工程概略図を図-1に、アスファルト固化体の仕様を表-1に示す。

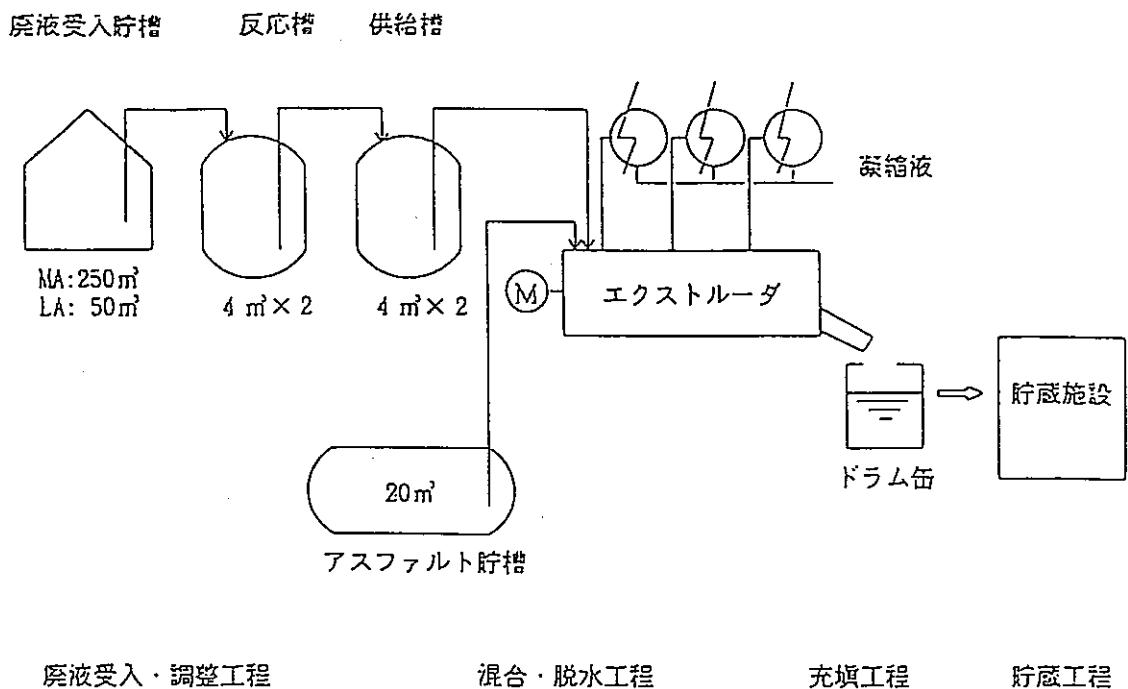


図-1 アスファルト固化処理施設 工程概略図

## 2.1.2 プラスチック固化体

プラスチック固化の対象廃液は、再処理施設にて発生した廃溶媒（TBPとドデカンの混合液）である。

再処理施設で発生した廃溶媒は、炭酸ナトリウム溶液にて洗浄された後、リン酸を添加して廃溶媒をドデカン相、付加体相（TBP+リン酸+水）、リン酸相の3相に分離される。分離したドデカンはシリカゲルにより精製し、付加体相とリン酸相は水を添加することによってTBPとリン酸相に分離する。分離したTBPはPVC又は、エポキシ樹脂とし混合され固化される。

PVC固化の場合は、一定量のTBPにPVC及び添加剤を加え攪拌・混合し、約80℃に加熱して固化する。エポキシ固化の場合は、一定量のTBPにエポキシ樹脂、硬化剤及び添加剤を加え攪拌・混合し静置することにより固化する。

なお、廃溶媒処理技術開発施設の工程概略図を図-2に、プラスチック固化体の仕様を表-2に示す。

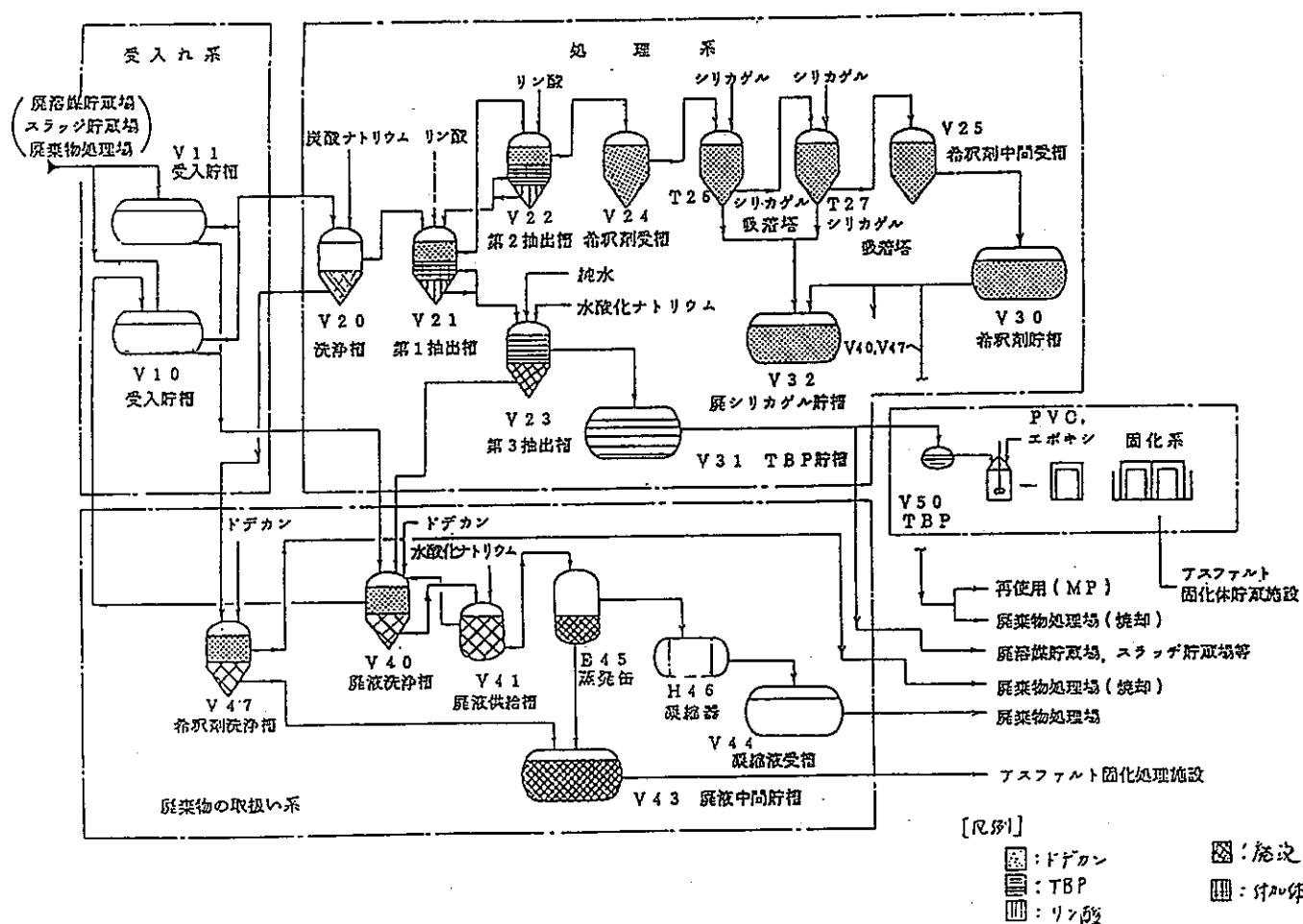


図-2 廃溶媒処理技術開発施設 工程概略図

表-1 アスファルト固化体の仕様

塩/アスファルト混合比 [wt%] (S/B)	40~50 / 60~50
使用アスファルト	<p>昭和シェル(株)製 A D コンパウンド            組成: 鮫分 22.8 wt%            芳香族成分 34.8 wt%            レジン分 15.8 wt%            アスファルテン分 26.8 wt%</p> <p>物性値            軟化点 <math>85 \pm 5</math> °C (JIS K 2207)            針入度 <math>40 \pm 5</math> (JIS K 2207)            引火点 <math>&gt; 260</math> °C (COC法)            伸度 比 <math>&gt; 3</math> (JIS K 2207)            比重 <math>1.025 \pm 0.025</math> (JIS K 2207)</p>
塩組成 (処理対象廃液中の濃度)	<p>NaNO<sub>3</sub> 200 ~ 300 g/l            NaNO<sub>2</sub> 0 ~ 50 g/l            Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 40 ~ 80 g/l            NaH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 0 ~ 50 g/l</p>

表-2 プラスチック固化体の仕様

TBP/固化剤 (vol%)	40~60 / 60~40
エポキシ固化体 使用樹脂	<p>エポキシ樹脂: 三井石油化学工業(株)製 EPOMIC R140            引火点 380 °C, 粘度 13000 CPS</p> <p>硬化剤: 三井石油化学工業(株)製 EPOMIC R140            引火点 155 °C, 粘度 5500 CPS</p> <p>添加剤: タルク(86wt%), 浅田製粉製(JA-13R)            塩ビ樹脂(14wt%) 日本ゼオン製 #400X110A</p>
固化体組成	<p>TBP : 55~65 ℥            エポキシ樹脂 : 19~20 ℥            硬化剤 : 6~7 ℥            添加剤 : 30~32 ℥</p>
PVC固化体 使用樹脂	<p>PVC樹脂 日本ゼオン製 #43B            吸湿剤 酸化カルシウム 近江化学工業(株)製            弹性ポリマー ノーソレックス 仏国 Cdf Chimie 社製</p>
固化体組成	<p>TBP : 40~60 ℥            PVC樹脂 : 40~60 ℥            硬化剤 : 5~7 ℥            添加剤 : 1~2 kg</p>

## 2.2 試験

### 2.2.1 試験の概要

長期貯蔵時における固化体の健全性を確認するには、固化処理した時点での固化体と貯蔵保管している固化体の物性などを測定・比較し、変化の有無を確認することが必要である。しかしながら、現在、貯蔵保管している固化体は、固化した時点での物性などは確認されてない。したがって、まず、固化処理時に固化体の物性などを確認して貯蔵保管している固化体の物性などと比較評価するための初期データとし、次いで、貯蔵保管していたサンプル固化体の物性測定を行い比較評価した。

アスファルト固化体には、廃液中に含まれる塩とアスファルトの混合率（以下「S/B」という）が異なるアスファルト固化体が存在し、プラスチック固化体には固化体製作時に添加するTBPと固化剤の配合割合（以下、配合比という）が異なるプラスチック固化体が存在する。固化した時点と貯蔵保管後の固化体の物性等を比較・評価するにあたり、これらの固化体のS/B又は配合比と固化体の基本物性との関係を整理した。

固化体の固化処理時の初期データとしては、アスファルト固化体については針入度、比重、含水率、核種濃度、熱特性、線量当量率、固化体容器（200ℓドラム）の鋼板厚さ（以下「材厚」と略記する）及び表面状態（塗装の変色、錆の発生等）とし、プラスチック固化体については比重、含水率、硬度、圧縮強度、核種濃度、熱特性とした。

また、固化体の経時変化を確認するためのデータとしては、アスファルト固化体の針入度、比重、含水率、核種濃度、熱特性、線量当量率、固化体容器のドラム材厚及び表面状態（塗装の変色、錆の発生等）とした。

### 2.2.2 測定項目及び方法

#### (1) 針入度

針入度は、アスファルトの性質を表す重要な物性の一つであり、アスファルト固化体の変形に対する抵抗性を表すもので、一定の荷重をかけた規格針が、一定の温度、一定の時間内に固化体中に貫入する深さを表したものであり、貫入深さ0.1mmが針入度=1となる。

測定は、JIS K 2207「石油アスファルト」に定める方法に準じて、針入度試験機（日本油脂試験機製 AN200PD）を用いて測定した。試験データは同一試料を6回測定し、その平均値を用いた。

#### (2) 硬 度

硬度はプラスチックの機械的強度を知るための一つの目安として確認しており、固化体の硬さを表す。また、「核燃料物質等の埋設に関する措置等に係わる技術的細目を定める告示」第4条において、不飽和ポリエステル樹脂の固化体ではあるが、JISK7215に定める方法により測定した値が25以上あることと定められており、これに準拠して確認している主要な

物性の一つである。

測定方法は、試料の両面（表面部と内部）をJ I S K 7215「プラスチックのデュロメータ硬さ試験方法」に準じてデュロメータ・タイプA（ショアA硬度計）にて測定した。試験データは同一試料を5回測定し、その平均値を用いた。

### (3) 圧縮強度

圧縮強度は硬度と同様にプラスチックの機械的強度を知るための一つの目安として確認しており、また、海外の廃棄物の処分等に係わる基準<sup>(1)</sup>にも定められている主要な物性の一つである。

測定方法は、12mmφ×30mmHに整形した試料を用いてJ I S B 7733「圧縮試験機」に定める試験機にて1回測定した。

### (4) 比重

比重は、「核燃料物質等の工場又は事業所の外における廃棄に関する規則」に海洋投棄する廃棄物（セメント固化体であるが）の基準の一つとして定められている。また、固化体の膨潤などの変化を知るための一つの目安となる物性である。

測定方法は、15mm角程度に整形した試料を用いて、J I S Z 8807「固体比重測定方法」に定める方法に準じて比重測定装置（島津製作所製 EB330H）を用いて測定した。試験データは同一試料を3回測定し、その平均値を用いた。

### (5) 含水率

固化体中に含まれる水分は、固化処理時における運転管理の妥当性を知るための一つの目安となる値であり、また、一般的に固化体の浸出率に寄与することが言われており、海外の廃棄物の処分等に係わる基準にも水分量が規制されている<sup>(1)</sup>。

測定方法は、アスファルト固化体については固化体をパークロルエチレンに溶解し、溶解液中の水分を水分測定装置（平沼産業製：AQ-5 カールフィシャー法）を用いて測定した。プラスチック固化体については固化体を粉碎し水分測定装置（平沼産業製：AQ-5 カールフィシャー法）にて180℃まで加熱し水分を気化させて測定した。

試験データは同一試料を3回測定し、その平均値を用いた。

### (6) 示差熱・熱重量分析

示差熱・熱重量は、固化体の物理的・化学的性質の温度依存性を知るために重要である。また、固化体の酸化・還元などの化学的变化の有無を知る上でも一つの目安となる。測定方法は、アスファルト固化体、プラスチック固化体とも5mg程度の試料を採取し示差熱・熱重量分析装置（島津製作所製TGA-40M, DTA-40M）を用いて測定した。測定は同一試料

1回とし、空気雰囲気で20°C/分の速度で昇温し、900°Cまで加熱した。

#### (7) $\gamma$ 核種分析

固化体中の $\gamma$ 核種量は、固化体への放射線の寄与を知るための一つの目安となる。また、将来の処分に備え固化体中の $\gamma$ 核種量を把握することは重要である。

測定方法は、アスファルト固化体については0.2g程度採取して試料を、プラスチック固化体については12mmφ×30mmHに整形した試料を $\gamma$ 核種分析装置（東芝製 IGC 2020S 純Ge検出器）を用いて直接測定した。測定は同一試料1回とし測定時間は5000秒とした。

#### (8) 表面線量当量率の測定

固化体の表面の線量当量率は、 $\gamma$ 核種分析と同様に、固化体への放射線の寄与を知るための一つの目安となる。また、将来の処分に備え固化体表面の線量当量率を把握することは重要である。

測定方法は、アスファルト固化体（200ℓドラム）表面の線量当量率を表面線量率計（東芝製 ガンマラジエーションモニタ 2521D）及び電離箱サーベイメータを用いて測定した。測定は、ドラムの高さ方向1点と円周方向90°間隔にて4点について実施し、試験データはその平均値を用いた。

#### (9) ドラム材厚測定

ドラム材厚は、固化体パッケージの健全性を知る上で重要な目安となる。

測定方法は、アスファルト固化体（200ℓドラム）の材厚をドラム材厚測定装置（東レ製 KM 40）を用いて測定した。測定は、ドラムの胴体部の高さ方向3点と円周方向45°間隔で8点及び天蓋と地板各1点について実施した。

## 2.2.3 試験結果

### (1) アスファルト固化体の初期物性

固化処理時にサンプルを採取し、物性測定を行った結果、図-3～5に示すとおり、比重は1.3～1.4、針入度は15～29、含水率は0.1～0.7wt%の間に分布していた。

γ核種分析の結果、固化体中に含まれるγ核種の大部分はCs-137、Ru-106であり、その他、Co-60、Sb-125、Cs-134等が含まれていた。

示差熱・熱重量分析の結果は、示差熱測定については、280°C前後に小さな吸熱ピークが、また、400°C～600°C付近にかけて発熱ピークが見られた。特に450°C付近にはシャープな発熱ピークが検出された。また、750°C付近にも発熱ピークが観察された。

熱重量測定については、110°C付近から徐々に減量し、300°C付近から550°C付近にかけて急激な重量減少が確認された。

固化体の表面線量当量率を測定した結果では、比較的放射能レベルの高い廃液では3mSv/hr、放射能レベルの低い固化体では $3 \times 10^{-2}$ mSv/hr程度であった。

固化体を充填したドラム（JISH1601に定める200ℓドラム相当品）の材厚測定及び外観観察を行った結果、材厚はJISの公称値1.60mm±0.17mmに対して測定値は1.54mm～1.68mmの範囲にあり、すべての測定値が公称値の範囲内に入っていた。1ドラムにおける最大と最小の差は最大で0.04mmであった。

また、外観観察した結果、蓋の周囲、輪帯及び底部の周囲に塗料の剥離や小さな傷が確認されたが、いずれの場合も鋼板の地肌のえた箇所はなかった。

### (2) プラスチック固化体の初期物性

アスファルト固化体と同様に固化処理時にサンプルを採取し、物性測定を行った結果、図-7～10に示すとおり比重は1.2～1.3、含水率は0.3～1.8wt%，硬度（ショワA）は41～74、圧縮強度は12～50kg/cm<sup>2</sup>と幅広く分布していた。

γ核種分析の結果は、固化体中のγ核種の大部分はRu-106であり、その他、Sb-125、Cs-134、Co-60、Cs-137が僅かに検出された。

示差熱分析では、200°Cまでの間は発熱及び吸熱ピークは見られず、200°Cより発熱反応が始まり400°Cから600°Cにかけて発熱ピークがあり、650°C付近で発熱は終了していた。熱重量測定結果は、全固化体とも常温より徐々に減量し、150°C付近より減量が激しくなり、200°Cまで続く。その後600°Cまでゆるやかな減量が続き、600°Cで減量はほぼ終了した。

### (3) 貯蔵固化体

貯蔵保管中の固化体の物性変化を確認するため、主として処理施設の運転開始当初に採取保管していたアスファルト固化体のサンプルの物性測定を行った。

その結果、針入度、比重、含水率の基本物性は針入度13～21、比重1.18～1.37、含水率0.5～1.1wt%に分布していた。

核種分析の結果は、Cs-137、Sb-125、Cs-134、Co-60、Ru-106が検出され、Ru-106は放射能濃度の低い固化体では検出限界以下であった。

示差熱・熱重量分析結果についても、初期データと同様に、示差熱分析については280°Cに吸熱ピークが、400～600°C、750°Cにそれぞれ発熱ピークが観察され、熱重量測定については、110°C付近から徐々に減量し、300°C付近から550°C付近にかけて急激な重量減少が確認された。

貯蔵施設に7～8年貯蔵保管している固化体パッケージ（ドラム）の外観観察、ドラムの材厚測定を実施した結果、ドラム表面に若干の錆の発生が認められたが、ドラム材厚は、1.54～1.62mmであった。

また、固化体表面の線量当量率を測定した結果、比較的線量当量率の高い固化体で7～10mSv/hrであった。

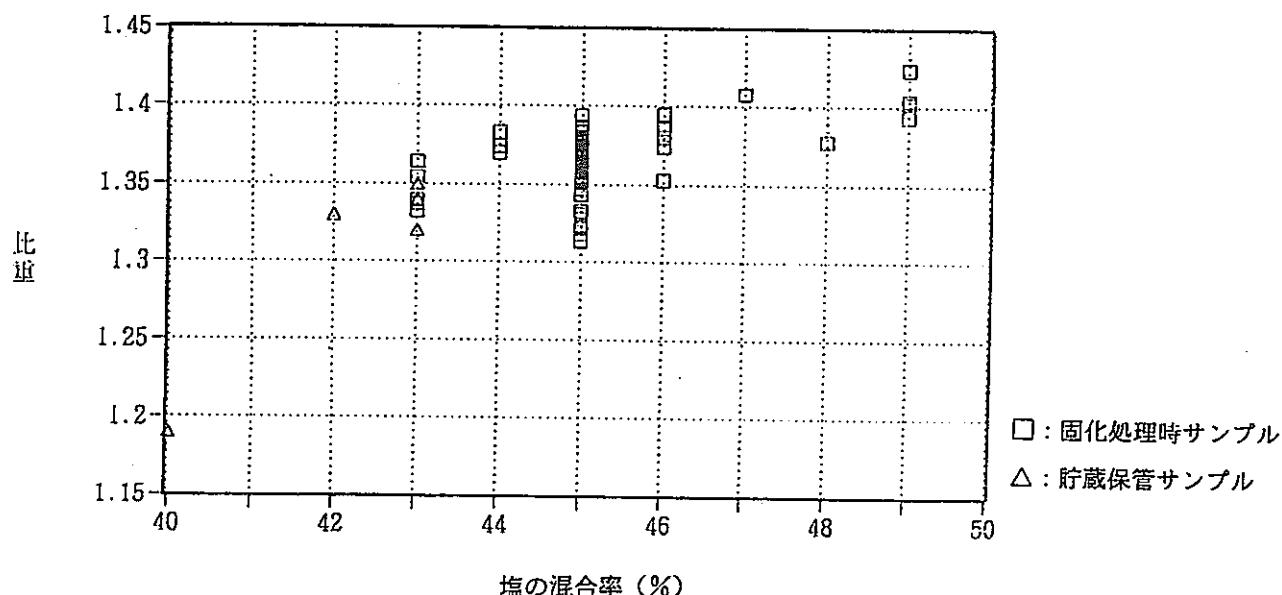


図-3 アスファルト固化体の比重と塩の混合率の関係

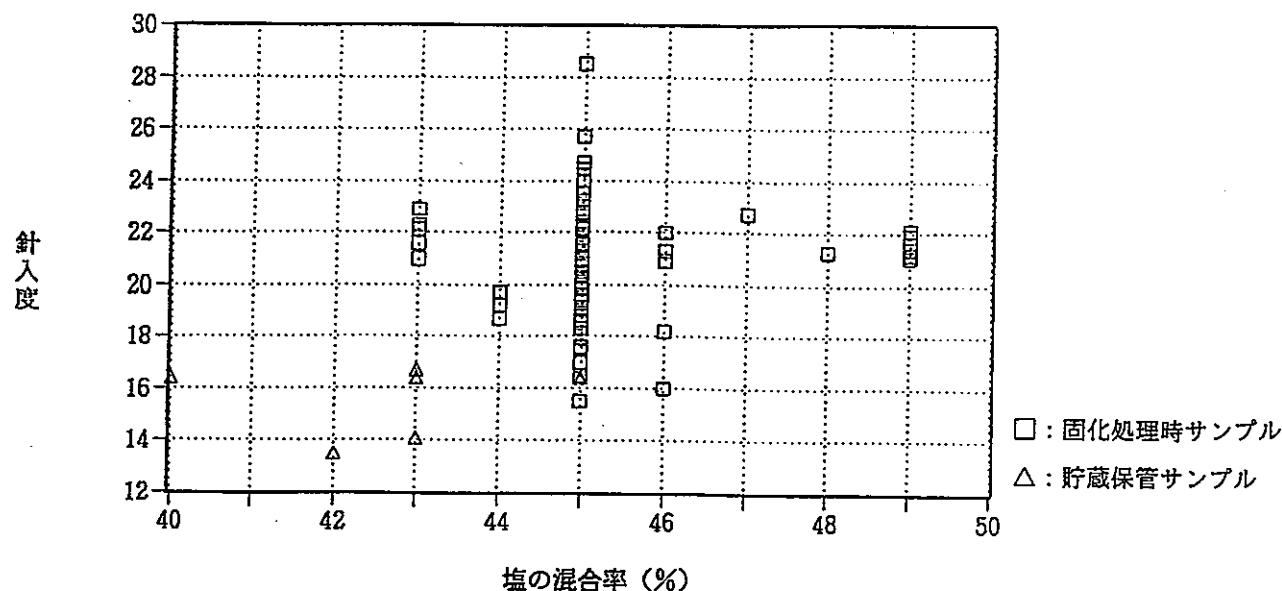


図-4 アスファルト固化体の針入度と塩の混合率の関係

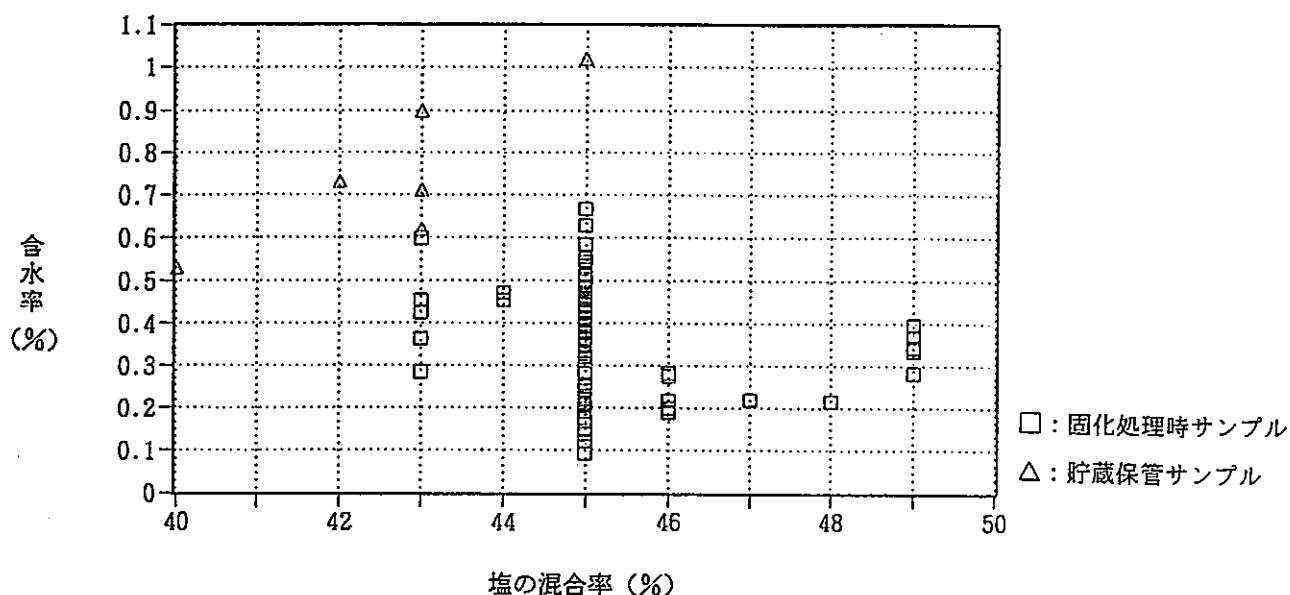


図-5 アスファルト固化体の含水率と塩の混合率の関係

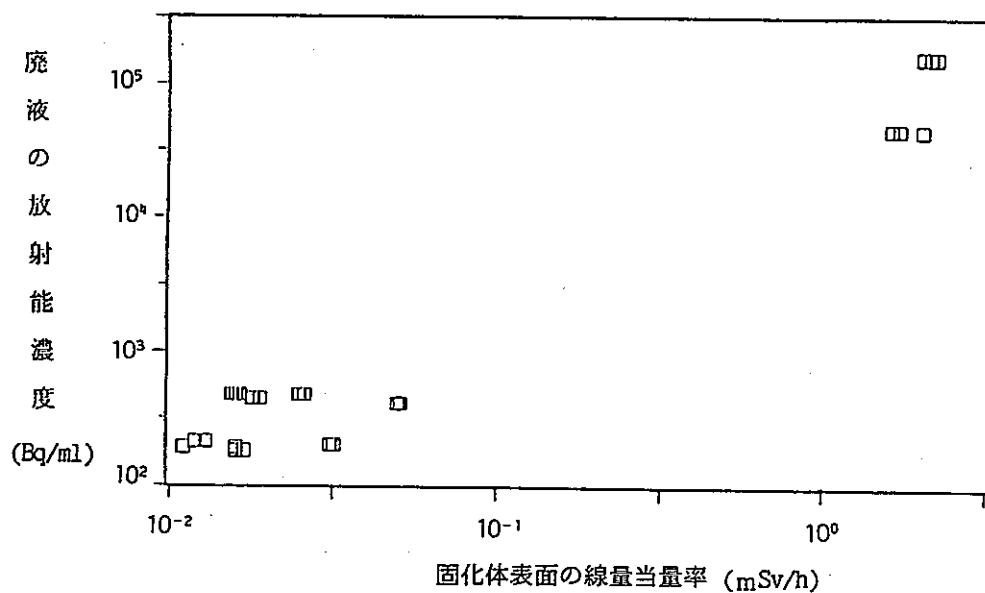


図-6 廃液の放射能濃度とアスファルト固化体表面の線量当量率との関係

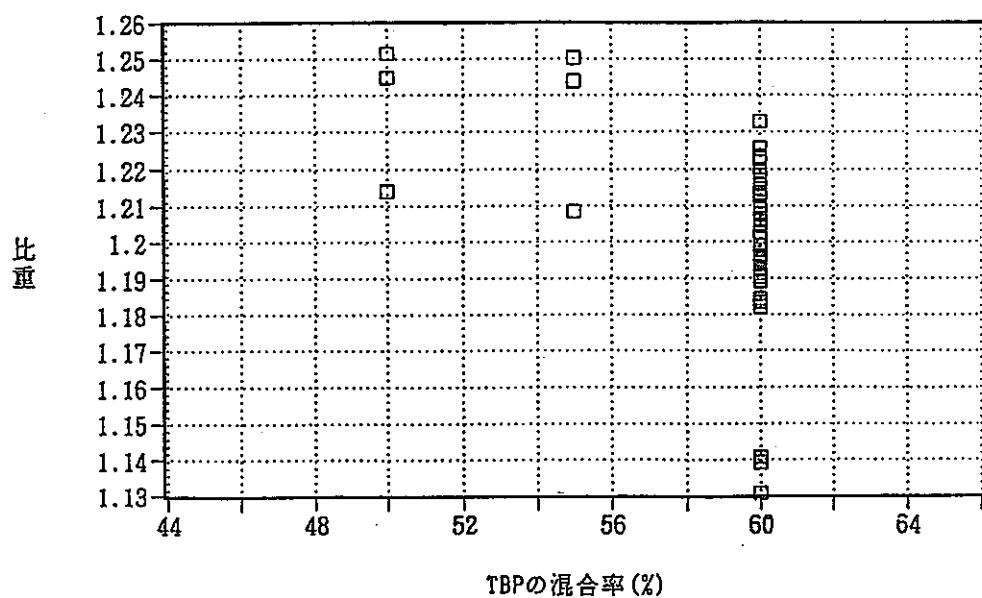


図-7 プラスチック固化体の比重とTBPの混合率の関係

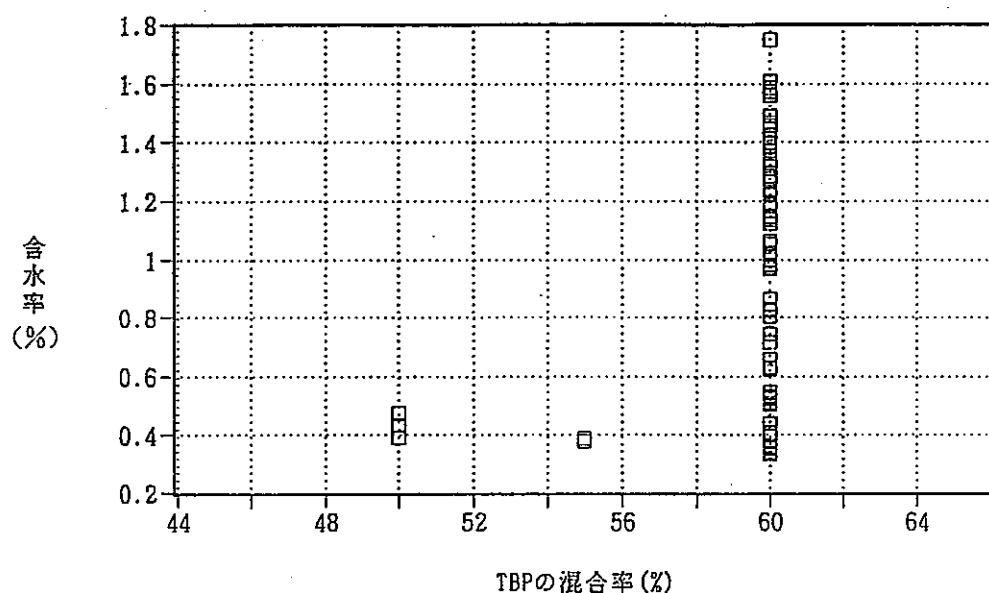


図-8 プラスチック固化体の含水率とTBPの混合率の関係

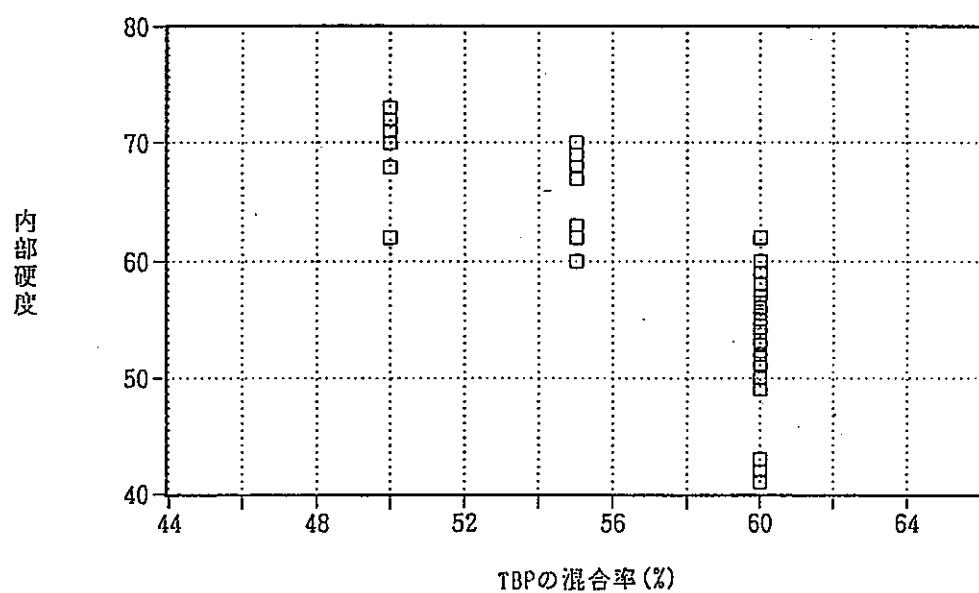


図-9 プラスチック固化体の内部硬度とTBPの混合率の関係

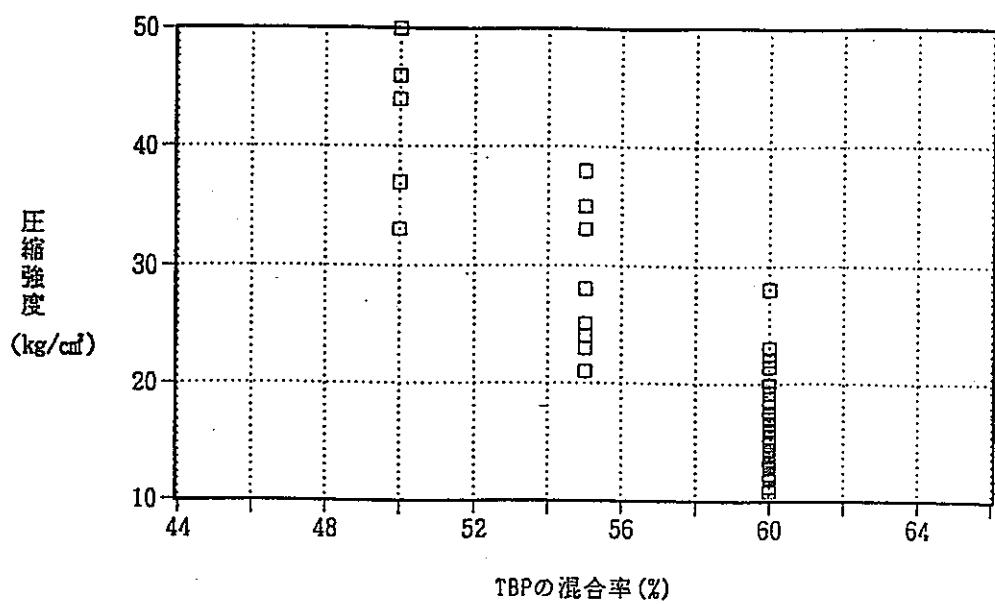


図-10 プラスチック固化体の圧縮強度とTBPの混合率の関係

## 2.2.4 考 察

### (1) アスファルト固化体の初期物性

図-3～5に示すとおり、比重は塩の混合率の増加に伴って大きくなる傾向にあるが、針入度及び含水率は塩の混合率や組成に相関は見られなかった。

γ核種については、γ核種分析の結果と固化処理の実績から、処理対象廃液中に含まれるγ核種の大部分が固化体中に移行していると思われる。

示差熱分析の結果については、280℃前後の吸熱ピークは、硝酸ナトリウム及び亜硝酸ナトリウムの溶融と考えられ、400℃～600℃付近にかけての発熱ピークは固化体の燃焼と考えられる。450℃付近のシャープな発熱ピークは硝酸ナトリウム及び亜硝酸ナトリウムの分解と思われる。また、750℃付近のピークは亜硝酸ナトリウムが過酸化ナトリウム次いで酸化ナトリウムとなる時の発熱であると考えられる。

熱重量測定については、550℃付近までの重量減少は、示差熱測定の結果と合わせて評価するとアスファルト固化体の燃焼による重量減少であると考えられる。

固化体表面の線量当量率については、図-6に示すとおり処理対象廃液中の全γ核種量に比例しており、処理対象廃液のγ核種量によって固化体表面の線量当量率を推定することができる。

固化体パッケージについては、材厚はすべてJISの公称値1.60mm±0.17mmの範囲にあり、外観観察した結果についても、小さな傷等が確認されたが、鋼板の地肌の見えた箇所はなく貯蔵保管時に問題となることはないと思われる。

### (2) プラスチック固化体の初期物性

図-7～10に示すとおりTBPの混合率を増加するにしたがって、比重、硬度、圧縮強度は小さくなる傾向にあった。

示差熱分析については、400℃から600℃にかけての発熱ピークがTBP及びエポキシ樹脂の分解によるものと思われ、650℃付近まで継続している。熱重量測定については、常温から200℃までの減量は主に回収TBPであり、200℃から600℃までの減量はエポキシ樹脂、添加剤及び硬化剤であると思われる。

### (3) 貯蔵固化体

運転開始当初に採取保管していたアスファルト固化体のサンプルの物性測定結果と採取保管していた固化体と同様の組成の固化体の初期データとの比較を行った。

その結果、針入度、比重、含水率の基本物性は初期データと大きな相違はなく有意な変化は見られなかった。

核種分析の結果は、初期データと同様の核種が検出されたが、核種の半減期に従い減衰しており、比較的半減期の短いRu-106は放射能濃度の低い固化体では検出限界以下であった。

示差熱・熱重量分析結果についても、初期データと同様の傾向を示し、有意な差は見られなかった。

固化体パッケージ（ドラム）の外観観察、ドラムの材厚測定を実施した結果、ドラム表面に若干の錆の発生が認められたが、ドラム材厚はJ I S規格を満足しており所要の材厚を有していた。

また、固化体表面の線量当量率は、処理対象廃液の核種分析結果から固化体製作時の線量当量率を推定した結果、放射能の減衰によって表面線量当量率も40%程度下がっており、Cs-137の含有量を把握すれば固化体の表面線量当量率を推定することが可能と思われる。

### 3. ま と め

アスファルト固化体及びプラスチック固化体の長期貯蔵時の健全性を確認するにあたっては、運転開始当初の固化体の物性を測定していないため、まず、現在製作された固化体の物性及び固化体のパッケージの材厚、外観を確認し、次に、固化処理時に採取し保管していたアスファルト固化体のサンプルの物性測定及び貯蔵保管しているアスファルト固化体のパッケージの材厚測定、外観観察を行い、両者を比較することにより実施した。

その結果、針入度、比重、含水率の基本物性及び熱特性は初期データと大きな相違はなく有意な変化は見られず、固化体中に含まれるγ核種は初期データと同様の核種が検出され、その濃度は核種の半減期に従い減衰していた。また、固化体表面の線量当量率も、放射能の減衰によって40%程度低下していることが確認でき、貯蔵保管している固化体の物性、固化体パッケージについて有意な変化は見られず健全であることを確認できた。

### 4. あ と が き

アスファルト固化処理施設は運転を開始してから約8年、廃溶媒処理技術開発施設は約5年しか経過しておらず経年変化を見るためには十分な時間ではなく、かつ、運転開始当初の固化体の物性を測定していなかったが、固化処理時に採取し保管していた固化体のサンプルの物性測定及び貯蔵保管している固化体のパッケージの材厚測定、外観観察を行い、現在製作された固化体の物性及び固化体のパッケージの材厚、外観と比較することにより、今までのところ貯蔵保管している固化体について有意な変化は見られず健全に貯蔵されていることを確認できた。

### 5. 参考文献

- (1) Regulating the Disposal of Low-Level Radioactive Waste : A Guide to Nuclear Regulatory Commission 10 CFR 61.

## 【耐震安全性】

# 核燃料施設の免震構法に関する研究－建物及び部分免震－

本社・工務建設室 大平 満  
檜垣 茂雄  
東海・ plutonium 燃料工場製造加工部 川又 博

## 1. 建物免震

核燃料施設に免震構法が適用できれば、耐震安全性の向上及び施設建設費の低減を図ることができる。本研究では、免震構法の適用に際して必要と思われる技術的課題（入力地震動の研究、フェイルセーフ機構の開発等）の解決を目的として以下の項目についてR & Dを行った。

- (1) 免震構造縮小モデルの加振試験
- (2) フェイルセーフ機構の実機適用性確認試験
- (3) 免震構造縮小モデルの地震観測
- (4) 免震設計ケーススタディ

## 2. 部分免震

耐震構造に替わる免震構法のうち部分免震（床免震を含む）は、既存の施設に適用可能であり安全性の向上及びコスト低減の効果が大きいことから、各種支承について加振試験、解析評価を行うとともにフェイルセーフ機構の試作、加振試験、解析評価を行った。

## II. 研究成果

### 1. 建物免震

- (1) 免震構造縮小モデルの加振試験

#### (a) 試験概要

すべりタイプ、鋼棒タイプ、高減衰タイプの3種類の免震装置を用いて、免震構造縮小モデル（上部構造は総重量8tの1層鉄骨フレーム）の製作及び各モデルに対して組み合わせるフェイルセーフ機構の試作を行い、これらについて振動台試験を実施した。各免震装置及びフェイルセーフ装置の概要を図-1に示す。

#### (b) 試験結果

- ① 各免震構造縮小モデルの応答は、非免震構造物の応答の1/3～1/8程度であり、良好な免震効果を確認できた。
- ② フェイルセーフ装置に関しては、すべりタイプに用いたゴムストッパーについて変位制御の上で難があり改良の必要が認められたが、ソフトランディング装置及びハードニングストッパー装置については、概ねフェイルセーフ装置として良好な性状が確認できた。

- (2) フェイルセーフ機構の実機適用性確認試験

#### (a) 試験概要

縮小モデルによる試験の結果を受けて、各装置の実機適用性を確認するための試験を実施した。

- ① すべりタイプについては、ゴムストッパーの改良を行うとともに、すべること自体をフェイルセーフとして取り扱うシステム（高減衰弾性すべり支承）に主眼をおいて、振動台

試験を行った。装置は、支承1個あたりの支持荷重を80tとして想定し、相似則で対応させた縮小モデル(2t)を用いた。

- ② 鋼棒タイプについては、縮小モデル(2t)をスケールアップし、準実規模(40t)の装置を作成し、動的加力試験を行った。
- ③ 高減衰タイプについては、縮小モデル(2t)をスケールアップし、500t積層ゴムを想定し、相似則に対応させた縮小装置(20t)について加力試験を行った。

(b) 試験結果

- ① 図-2に高減衰弾性すべり支承の復元力特性を示す。高減衰弾性すべり支承は、高減衰ゴムの特性により、変位の小さい範囲から非線型性を示し、変位の増加に伴ってせん断剛性は徐々に低下する。せん断歪が200%を超えるとすべりが生じ、せん断力が頭打ちとなり、600%を超える応答変位に対しても安定した大きな履歴曲線を示すことを確認した。また、ゴムストッパーの併用により、応答変位の抑制も有効になされたことがわかった。
- ② 図-3にソフトランディング装置と積層ゴムを組み合わせた装置の復元力特性を示す。ソフトランディング装置については、応答変位が積層ゴムの許容変位15cm(せん断歪として約120%)を超えて、積層ゴムからソフトランディング装置への荷重の乗り移りに伴う摩擦による減衰効果が現れ、かつ、積層ゴムの直径34cm(せん断歪として約270%)を超える変形に対しても安定した履歴特性を示すことを確認した。
- ③ 図-4にハードニングストッパーと高減衰積層ゴムを組み合わせた装置の復元力特性を示す。ハードニングストッパー装置の復元力特性は、高減衰積層ゴムとの組み合わせにより、初期剛性は小さいが水平変位11cm(せん断歪270%)あたりより滑らかに剛性が増大するハードニング特性を示すことを確認した。
- ④ 各タイプについて、試験のシミュレーション解析を行い、モデル化、解析手法の妥当性を確認した。

(3) 免震構造縮小モデルの地震観測

(a) 観測概要

振動台試験に用いた3体の免震構造縮小モデルを東海事業所構内の比較的軟弱な地盤上に並列に配置し、昭和63年10月より地震観測を行っている。加速度計を基盤層、地表面、基礎マット及び免震構造縮小モデル上に、相対変位計をモデルと基礎マット上の間に各々配置している。地震観測の概要を図-5に示す。

(b) 観測結果

- ① 図-6に観測地震の規模、震央位置及び震源深さを、図-7に速度応答スペクトルを、図-8に基盤及び地表面の加速度オービットを示す。敷地周辺に影響を与えている地震の震源は、概略、茨城県沖、敷地周辺、茨城県南西部、千葉県北部の4地域に分けることができ、茨城県沖及び敷地周辺の地震は比較的短周期成分が多く、茨城県南西部及び千葉県北部の地震は、比較的やや長周期成分が多い傾向であることを確認した。また、地震動の主軸はE-W方向が強い傾向であることが分かった。
- ② 図-9に基づきマットからモデル上部への加速度応答倍率(すべりタイプ)を示す。3体の免震構造縮小モデルは、入力加速度が50Galを超えると応答倍率がほぼ1.0以下になり、良好な免震効果を示していることが分かった。

#### (4) 免震設計ケーススタディ

##### (a) 概要

動燃事業団で計画中の核燃料施設を対象に免震構造の適用性の検討及び課題の摘出を行った。建物規模は、約62m×48mで高さ約45m、総重量約12万tである。

##### (b) 結果

建物重量が12万tにも及ぶため、積層ゴムは面圧を100kg/cm<sup>2</sup>と高いものを採用した。支持荷重は1300φで約1300t/個、1100φで約950t/個とし、それぞれ59個、77個を配置した。ダンパーは、動燃情報センターで用いた鉛ダンパーをサイズアップしたもの（直径30cm、高さ150cm）を140本とした。免震装置の配置の概略を図-10に示す。この装置構成による免震建物を曲げせん断棒モデルにモデル化し、東海事業所において策定している耐震設計用S<sub>2</sub>地震波を入力波として地震応答解析を行った結果、最大応答加速度は入力最大加速度に対して、約1/4に低減され、その免震効果が著しいことを確認した。図-11に入力波と建物最上階での応答波を示す。また、免震層の相対変位は、耐震設計用地震波に対しては約8cmであるが、長周期卓越波に対しては40cm程度の変位が想定されるため、放射性廃液配管の変形追従性と信頼性についてのR&Dが今後必要と考えられる。

## 2. 部分免震

### (1) 免震装置の加振試験

#### (a) 加振試験

免震装置の基本構造については、市場性の高い、二次元を対象とした滑り支承と転がり支承の免震装置とした。また、転がり支承の場合は、その特性を考慮し、トリガー機構及び減衰機構（オイルダンパー）を設けることにした。免震装置の概念図を図-12に示す。免震装置の形状は縦2880×横2880×高さ544mmで、重量は約1250kgである。

試験では、①免震装置の復元力特性、摩擦係数を求めるための静的加力試験、②免震装置の固有振動数、減衰定数を求めるための自由振動試験、③免震装置上に設置する供試体（制御盤）の固有振動数、減衰定数を求めるための周波数スウェーブ試験、④免震装置が動作し始める加速度を求めるための加速度スウェーブ試験、⑤免震装置の振動特性を求めるための正弦波加振試験、⑥免震装置の応答特性を求めるための地震波加振試験を行った。

また、解析手法の妥当性を確認するため、加振試験のシミュレーション解析を行った。

なお、加振試験で用いる地震波については、短周期型のEL-CENTRO波（3Hz応答波）、長周期型の八戸波（3Hz応答波）、さらにプルトニウム加工施設の設計用地震波であるSx波（2階応答波）とした。

#### (b) 試験結果

滑り支承、転がり支承の免震装置について以下の結果が得られた。

- ① 部分免震装置の加速度応答は入力にあまり依存せず、一定の加速度レベルになる。1000Gal入力の場合、転がり支承では100Gal程度、滑り支承では150Gal程度になる。この様子を図-13に示す。
- ② 上記①の特性は滑り支承の場合は、摩擦係数に依存し、転がり支承の場合は、トリガー設定値に依存する。滑り支承、転がり支承の摩擦係数は、0.094、0.012であった。
- ③ 部分免震装置の相対変位は入力加速度の増加に対して、ほぼ直線的に増加する。1000Ga

1入力の場合は、転がり支承、滑り支承とも最大で10cm程度である。この様子を図-14に示す。

- ④ 免震装置上の応答スペクトルは、滑り支承の場合、ピークが入力地震の卓越振動数付近になるが、転がり支承の場合、ピークが免震装置の固有振動数付近になる。この様子を図-15に示す。
- ⑤ 部分免震装置の復元力特性を折れ線型モデルとして数値解析を行うことにより、免震装置の挙動をほぼシミュレートできる。

## (2) フェイルセーフ機構の加振試験

### (a) 加振試験

フェイルセーフ機構とは、地震時に免震装置が過大な相対変位を生じた場合にも、その相対変位を抑制させ、かつ、そのときに発生する応答加速度を低減させる機能を持つものである。フェイルセーフ機構としてオイルバッファ型のものを2種類製作し、前述の免震装置（転がり支承）に取り付けた。その概要図を図-16に示す。

試験では、①オイルバッファ単体の抗力特性を求めるための要素試験（衝突試験、正弦波加振試験）、②フェイルセーフ機構の応答特性を求めるための地震波加振試験を行った。

また、解析手法の妥当性を確認するため、加振試験のシミュレーション解析を行った。

なお、オイルバッファの単体での衝突試験により得られた坑力特性を図-17に示す。

### (b) 試験結果

フェイルセーフ機構の加振試験の結果、以下の知見が得られた。

- ① オイルバッファ型のフェイルセーフ機構は、入力加速度レベルが高くなると免震装置に対して顕著な相対変位抑制効果がある。この様子を図-18に示す。

また、この時の応答加速度は非免震の場合より小さくすることが可能である。この様子を図-19に示す。

- ② オイルバッファ型のフェイルセーフ機構のバネ係数、減衰係数等の物性値は要素試験（衝突試験）により把握できる。また、これらの物性値を入力条件として数値解析を行うことによりフェイルセーフ機構が作動した場合の挙動をほぼシミュレートできる。

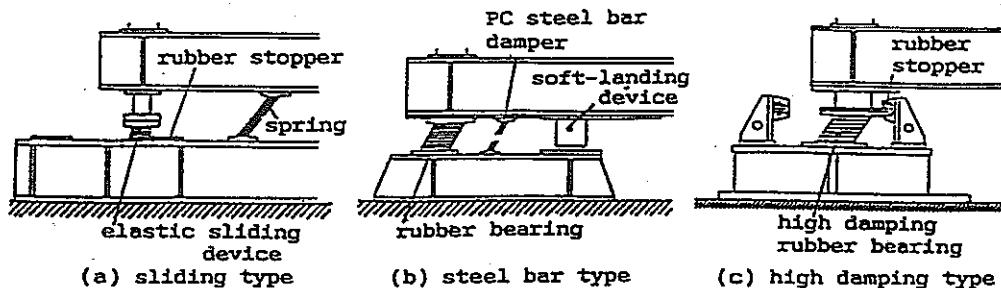


図-1 免震装置及びフェイルセーフ装置の概要

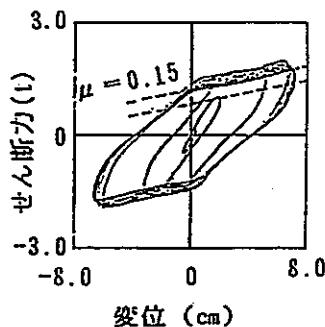


図-2 高減衰弾性すべり支承の復元力特性

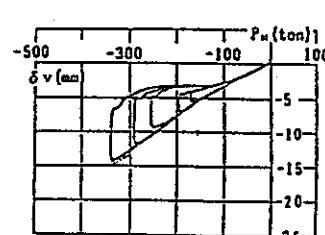


図-3 ソフトランディングの復元力特性

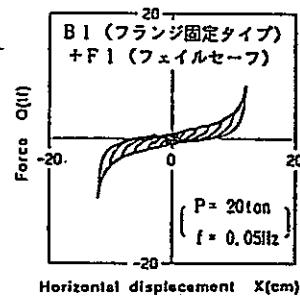


図-4 ハードニングストッパーの復元力特性

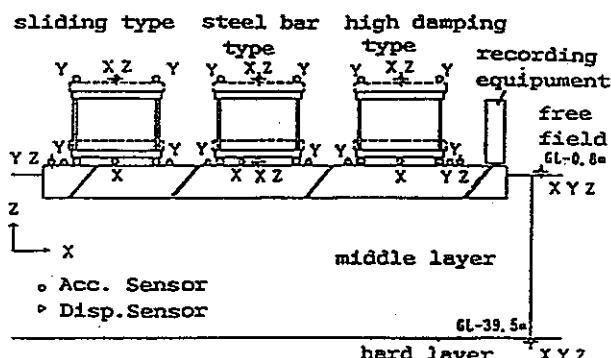


図-5 地震観測の概要

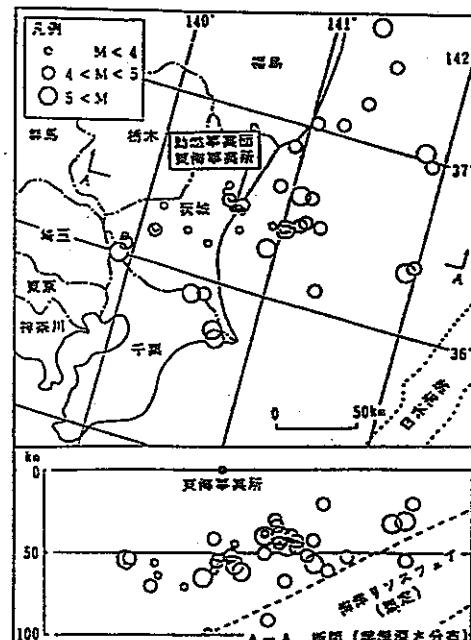


図-6 観測地震の規模、震央位置及び震源深さ

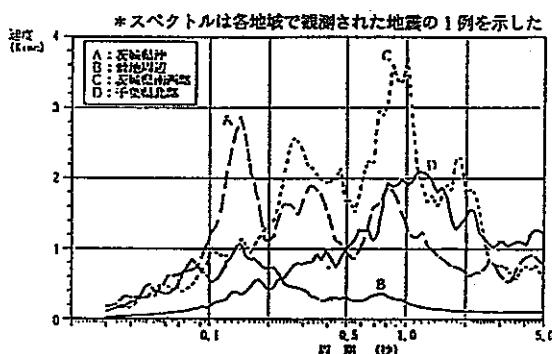
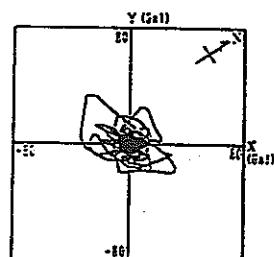
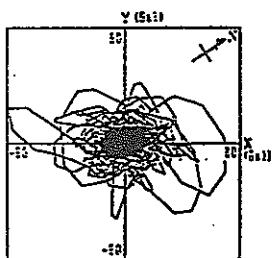


図-7 加速度応答スペクトル



### (a) 基础层



(b) 地表面

図-8 加速度オービット

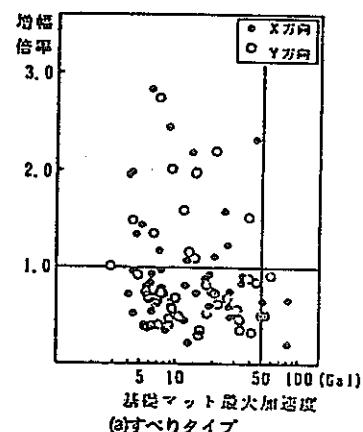


図-9 基礎マットーモデルの增幅倍率

凡例

タイツレーター ◎ : 1300φ  
● : 1100φ  
鉛ダンパー X : 300φ × 2

47600

61800

図-10 免税装置配膳図

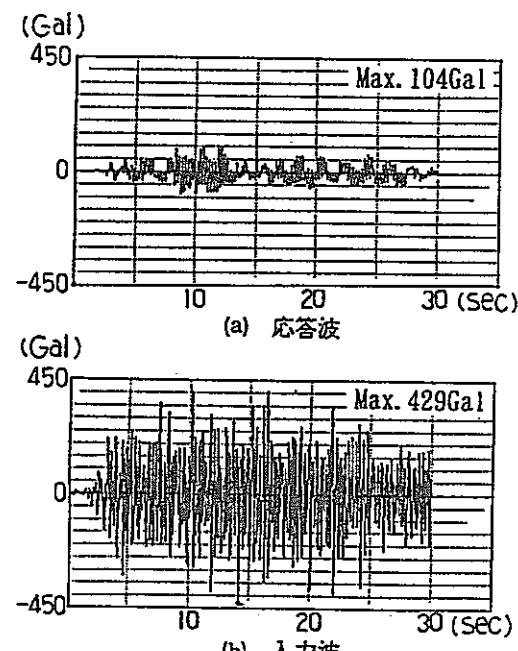


図-11 振動解析入力波及び応答波

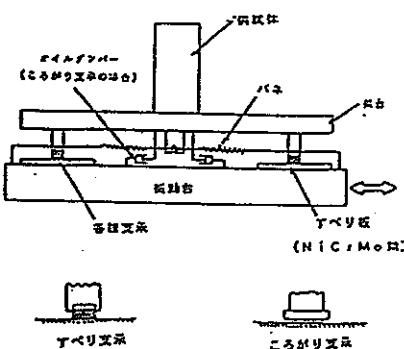


図-12 免震装置概念図

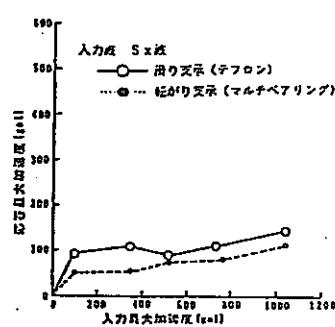
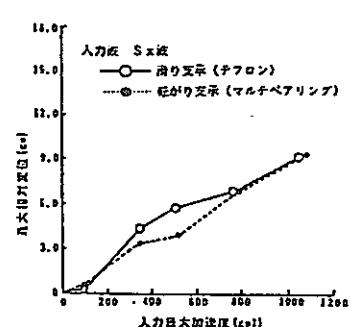


図-13 入力最大加速度と最大応答加速度 図-14 入力最大加速度と最大応答位変



#### 大加速度と最大応答

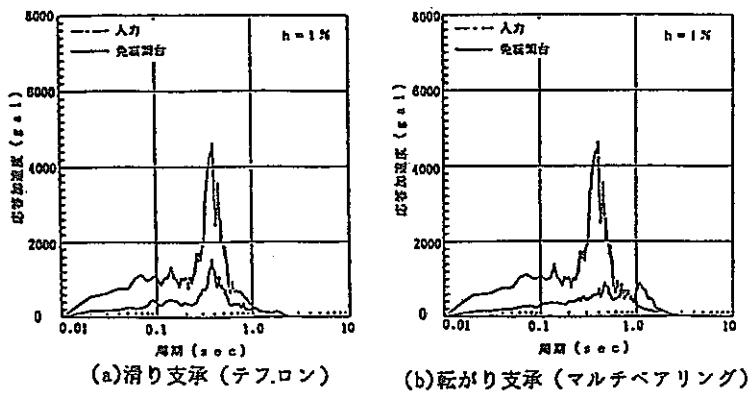


図-15 加速度応答スペクトル(Sx波 500Gal)

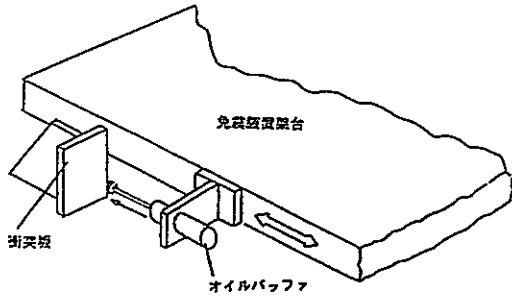


図-16 フェイルセーフ機構概要図

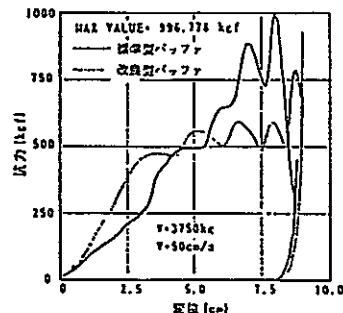


図-17 要素試験から得られた抗力特性

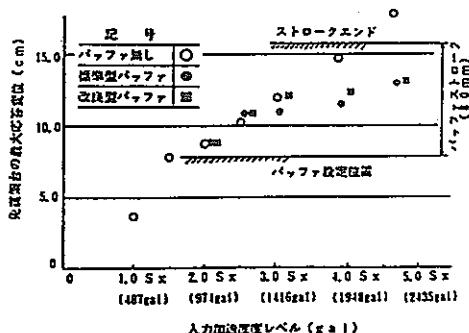


図-18 入力最大加速度と最大応答変位  
(入力波 Sx波)

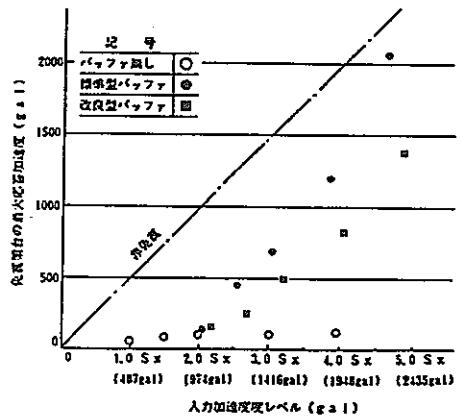


図-19 入力最大加速度と最大応答加速度  
(入力波 Sx波)

## 【確率論的安全評価】

# 再処理施設の信頼性評価手法の開発及び改良

東海・再処理技術開発部 小坂一郎  
東海・再処理工場 岩崎省悟

## I. 研究の概要

再処理施設の設計の合理化、運転・保守保全の最適化、施設改造設計の合理化に当たって、施設の稼働率を目安（パラメータ）とした評価が有効である。

再処理施設は機械的・化学的な種々の工程設備・機器から構成されており、多くのフローが関連しあっているとともにバッファータンク等の設置、腐食等の時間依存のある故障、計画停止により、既存の信頼性評価手法の調査検討を行った結果、年間の稼働率評価について既存の解析的な信頼性評価手法の直接的な適用は困難であることが明らかになった。このためモンテカルロシミュレーションに基づく稼働率評価（信頼性評価）コードの開発を実施した。また東海再処理工場の機器仕様データ、保全履歴データ、保全作業仕様データを収集し、データベース化に向けての検討を進めた。また、信頼性データに関する資料・主なデータバンクの調査を行い、公開文献等のデータを基に核燃料サイクル施設で使用される機器・設備の故障率データベースを作成した。

## II. 研究成果

### 1. 信頼性評価手法の開発

#### (1) 既存の評価手法の調査検討

再処理施設における信頼性評価に対しては次の事が要求される。

- ① ダイナミックな評価ができること（バッファ等の考慮）
- ② 故障モードに腐食等の時間依存性のあるものを考慮できること
- ③ 予備機・予備系列等を評価に取り込めるここと
- ④ 施設全体の稼働率を評価できること

既存の手法を調査し、上記の観点から既存手法の適用性について検討した。

システム要素の故障率を基にシステムの稼働率を評価する方法としては、フォールトツリーを用いる方法や状態遷移微分方程式を使用する方法等が用いられている。前者はシステムをその構成要素の不稼働を基本事象とし、システムの不稼働を頂上事象とするフォールトツリーの形に表し、基本事象の発生確率から頂上事象の発生確率を求めるものである。後者はシステムの状態をその構成要素の稼働・不稼働に基づいて分類し、状態  $i$  にある確率  $P_i$  を状態間の遷移確率をもとにした微分方程式から求める方法である。これらの手法を用いて再処理施設のような化学プラントの稼働率評価を行う場合には特に次の点が問題となり、解析的な稼働率評価手法の再処理施設への直接的な適用は困難である事が明らかになった。

#### ① 時間依存のある故障モードの取扱が困難

腐食等の時間依存のある故障モードについては要素の故障率を数値積分により計算し、これを基に稼働率を求める事になるが、機器・設備数の多いシステムに適用することには限界があると考えられる。

#### ② バッファ設置による稼働率の向上効果の評価が困難

解析的な稼働率評価ではバッファ内のインベントリの変動を考慮した評価を行うことはできないため、バッファが稼働率に及ぼす影響をシステム内の時間遅れ要素等の近似モデルで評価する事になる。

### ③ プラントの運転を考慮した評価が困難

プラントの立ち上げ等を考慮した評価はできない。

## (2) 稼働率評価コードの開発

上記の問題点を解決した信頼性評価が行えるよう設備機器の故障発生確率、修復時間、施設の運転計画をもとに施設稼働状態のモンテカルロ・シミュレーションを行い、その結果をもとに施設の稼働率を計算する稼働率評価コードを開発した。本評価コードは、対象施設に対して、機器の信頼性の変化、工程内バッファにより施設の稼働率がどのように変動するかを解析・評価することを目的としたものである。表1に解析的な評価手法との比較、図1に本コードの基本構成を示す。以下に本評価コードの主なモデルについて述べる。

### ① プロセスモデル

設備機器の故障の影響を原因別に考慮したシミュレーションを行う場合、施設を機器単位でモデル化することは必ずしも適当ではない。そこで評価システムではシミュレーションの対象とする施設を、i) 施設レベル、ii) ユニットグループレベル、iii) ユニットレベル、iv) 機器レベルの順に階層化してモデル化した。

階層構造の最上位は施設レベルであり、運転計画に基づいたプラントの運転状態の設定等が行われる。ユニットグループレベルは工程やバッファに相当する部分であり、プラント内における物質の受払量（ユニットグループの処理量・バッファ内インベントリ等）がシミュレーションにより決定される。ユニットグループはユニットにより構成され、ユニットは工程内の施設・設備に対応する。各ユニットには機器レベルで入力された故障モードを集約した故障モードが設定され、故障及び修復のシミュレーションが行われる。機器レベルはユニットを構成する機器の集合であり各機器には入力データにより故障モードが設定される。ここで設定された故障モードはユニットにおける機器のネットワークを考慮してユニットの故障モードとして再設定される。

### ② 故障・修復モデル

ユニットが停止するのはi) 施設の運転停止、ii) ユニットの保守、iii) ユニットの故障である。このうち施設の運転停止、ユニットの保守については開始・終了時間を入力により規定する。ユニットの故障についてはユニット毎に定められた故障モード毎にその発生確率及び修復関数を累積運転時間を変数として外部から与え、乱数を用いてその発生時期を決定する。本評価コードにおいては計算時間の節約からシミュレーションの開始時点ですべてのユニットの全故障モードに対し、故障発生までの時間、故障発生から修復完了までの時間、修復完了から次の故障発生までの時間を算出する。

### ③ 稼働率の算出

化学プラントのような系では、故障・正常の2状態だけではなく、部分的に修復中の状態や健全であっても完全フル操業しているとは限らない。このため本評価コードでは原子力発電所の設備利用率にあたる量を稼働率として定義した。

すなわち、実際の処理量 ÷ (定格処理能力 × 暴露時間) × 100% を稼働率とした。

故障ユニットを含むユニットグループの処理能力量は、ユニット処理能力をもとにフォー

ルトツリーの手法を用いたネットワーク解析により計算し、そのグループと接続する他のユニットグループの処理能力やバッファの受払能力との整合をとり最終的に決定される。このように求められたユニットグループの処理能力から施設処理量を求め、稼働率が算出される。本評価コードは、モンテカルロ法を用いてシミュレーション開始時点に決められた各ユニットの故障発生時間からタイムステップ毎に故障ユニットを特定し、ユニットおよびユニットグループ間のネットワーク解析によりそのタイムステップでの施設処理量をもとめ、特定期間（年間）の累積処理量を計算し、定格処理量との比較で施設稼働率を算出するコードである。

## 2. 信頼性評価データベースの整備

信頼性評価のためには評価手法とともにデータベースの開発が必要である。信頼性評価に用いられるデータは機器・設備の故障モード、故障率等であり、これらの信頼性データの収集、データベース化を進めた。

### (1) 文献等に基づく信頼性データの収集・データベース化

公開文献から核燃料サイクル施設等で使用れている機器装置類の信頼性に関するデータを収集・整理し、信頼性データベースの整備を行った。

対象とした公開文献は原子力・化学全般・工学全般・米国政府技術報告書等であり、収集したデータは、機器分類・機器名称・型式・用途・規格・故障モード・故障率・修理時間・適用分野・文献という項目で整理し、データベースを作成した。またこのデータベースファイルに対して目的の機器の故障データを検索する検索システムの作成を行った。

さらに、収集した信頼性データ（故障率等）から上述した信頼性評価コードで使用可能な確率分布関数への加工について検討を進めた。

### (2) 東海再処理工場の運転・保守データの収集

東海再処理工場で使用されている機器の機器仕様データ（寸法・材質等の技術仕様データ、製造データ、設置場所データ等）、保全履歴データ（保全計画・運転時間等の保全形態データ、原因・対策等の異常関係データ、部品名称・取替数等の部品データ、作業内容データ等）、保全作業仕様データ（保全周期等の作業管理データ、作業人工データ等）について収集し、汎用計算機によるデータベース化に向けての検討を進めた。

## III. 結論

モンテカルロ法に基づき施設の稼働率を計算し、対象施設に対して機器の信頼性の変化等により稼働率がどのように変動するかを解析する稼働率評価（信頼性評価）コードを開発した。また東海再処理施設の機器データ・運転保守データの収集を行うと共に、公開文献から信頼性データベースの整備を実施した。これらの成果は、施設設計における多重性・冗長性の効果に係わる検討、施設運転時における保守管理の最適化に係わる検討に資する。

表1 解析的手法との比較

項目	フォールトツリー	状態遷移微分方程式	シミュレーション
時間的依存性の故障モードの取扱い	要素のアンアベイラビリティを数値積分により計算する	要素の故障率及び修復率を微分方程式の定義域にわたって数値積分により計算し、これを係数とする状態遷移微分方程式を計算機で解く	故障モードの時間依存性については特別の配慮は不要
バッファの設置効果の評価	近似的なモデルにより稼働率の向上率を計算して、結果にかけるか、待機冗長モデル等により、故障率、修復率一定の1つの要素として扱う	同 左	バッファの容量、インベントリのレベル設定に応じた受払量の調整を考慮しながら、物質の流れによる故障の伝播をシミュレートすることにより、その効果を評価する
プラントの運転モードを考慮した評価	困 難	困 難	プラントの立ち上げや立ち下げを考慮することができる。 プロセスの時間遅れについての評価が可能
得られる稼働率	ある時点における瞬間アベイラビリティの平均値	ある期間における瞬間アベイラビリティの平均値	ある期間の平均アベイラビリティの確立分布に対する標本分布

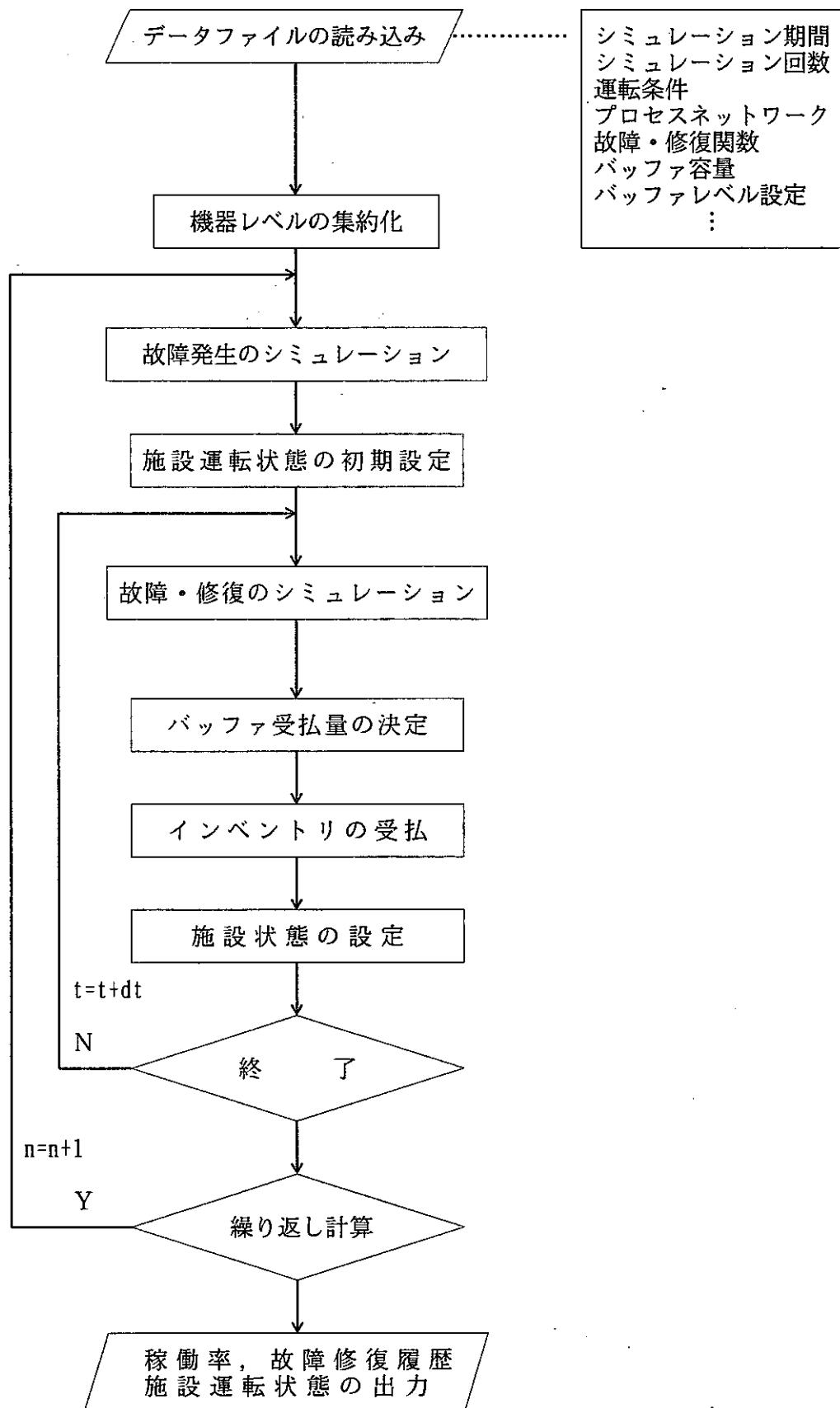


図1 本評価コードの基本構成

# 再処理施設の確率論的安全評価の実施

東海・安全管理部 野尻一郎

## I. 研究の概要

再処理施設の総合的な確率論的安全評価（P S A）を実施するにあたっての課題の検討、評価手法、評価コード等の開発・整備を目的として本研究を実施した。評価手法等の開発としては、西独P S Eプロジェクトにおいて開発された定常放出リスク解析コードS T A R及びフォールトツリー解析コードF T L及び米国で開発された火災解析コードF I R A C並びに爆発解析コードE V E N Tの導入・整備を行った。信頼性データの整備については、I A E A等から公開されている故障率データを基にして信頼性データベースを作成するとともに、故障率データベース管理システムの開発を行った。さらに、P S Aの適用として、中規模のモデルプラントを想定し、このうちの溶解工程及び分離精製工程について、S T A R、F T L等を用いて、平常時及び事故時における放射性物質の放出リスクを算出した。

## II. 研究成果

### 1. 評価コードの開発・整備

本研究において開発・整備した評価コードのうち、定常放出リスク解析コードS T A R及び火災解析コードF I R A Cについて、その概要を示す。

#### (1) S T A Rの概要

S T A Rは、F T Lコードを用いて評価された故障状態に対し、定常状態手法による核燃料サイクル施設における放射性物質の放出リスクを評価する会話形式プログラムであり、複数のモジュールにより構成されており、各種の期待値評価、解析結果のグラフ化等の機能を有する。図-1に計算の流れを示す。S T A Rでは、ソース及びバリアの数学的モデル／物理的モデル、ソース及びバリアの故障状態のフォールトツリーから得られるミニマルカットセット（F T Lにより算出）、基本事象の信頼性データと不確定性幅を用いて、すべての起こりうるシステム状態における放射性物質の放出期待値を評価する。

#### (2) F I R A Cの概要

F I R A Cは、もともと、放射性及び非放射性ソースタームの評価及び核燃料サイクル施設の換気系における火災時の熱及び物質輸送の評価を行うために開発されたコードであったが、さらに改良が加えられ、ゾーンタイプコンパートメント火災評価コードF I R I Nと結合され、施設内の火災時の過渡的状況を評価できる総合的なシステムである。F I R A Cシステムの概要を図-2に示す。F I R A Cにおいて評価される基本的な物質輸送現象は、飛沫同伴、対流、沈着及びろ過である。また、フィルタの目詰まり、ガスダイナミックス、物質輸送及び火災と放射性ソースタームとの相互効果が模擬される。

F I R A Cの整備にあたっては、日本原子力研究所で実施された再処理施設排気フィルタ事故時安全性実証試験の結果を用いて、検証計算を行い、試験データとの一致の度合いを検討した。この結果を図-3、4に示す。F I R A Cのみの計算（図-3）では、温度の上昇傾向、最大温

度いずれも良く一致しているが、FIRIN-FIRACの計算(図-4)では、実証試験の結果と比べて、温度上昇傾向、最大温度いずれも異なる結果となった。これらの結果より、今後、FIRINモジュールで行われる燃焼解析モデルについての検討が必要なことが明らかとなった。

## 2. 再処理施設におけるPSAの適用

### (1) モデルプラントの概要

モデルプラントの想定にあたっては、東海再処理工場(TRP)の設計等が有効に反映できる施設であることを念頭において、TRPの約3倍の処理能力を有し、TRPとほぼ同様の工程を有するものを考えた。工程及び設備については、溶解工程、分離精製工程、オフガス処理工程、冷却水・冷水設備及び蒸気・温水設備をモデルとして設定した。モデルの例として、溶解工程の概要を図-5に示す。

### (2) 事故事象

事故事象としては、溶解槽における臨界事故及び分離精製工程における溶媒火災を設定し、フォールトツリーを用いて、発生シナリオ、起因事象の検討を行った。フォールトツリーの作成にあたっては、モデルプラントのプラント条件をふまえ、さらに、関連する文献調査の結果を参考にして、以下に示す事象を考慮することとした。

#### (a) 溶解槽における臨界事故

- ・臨界安全形状の喪失
- ・プルトニウムの蓄積
- ・低燃焼度燃料の溶解

#### (b) 分離精製工程における溶媒火災

- ・溶媒の漏洩
- ・着火源の存在

フォールトツリー解析(FTA)は、FTLコードを用いて行った。故障率データについては、本研究において作成した信頼性データベース及びIAEA等から公開されているデータベースにおいて整備されたデータを用いた。FTAの例として、溶解槽における臨界事故のフォールトツリーを図-6に示す。

### (3) 放射性物質の放出リスクの算出

放射性物質の放出リスクの算出は、STARコードを用いて行った。この評価にあたって、以下に示すモデルを作成した。

#### (a) システムの放出ツリー

#### (b) バリアの故障状態のフォールトツリー

#### (c) ソースタームについての平常時及び事故時に対応するシステムモデル

#### (d) 換気系の各バリアについての健全及び故障状態に対応するシステムモデル

STARを用いることにより、システムの放出ツリーにより表される全ての放出パスについて、放出リスクが算出される。なお、FTAにあたっては、事故事象の評価と同様の解析コード及び故障率データを用いた。算出されたリスクは、ファーマーダイアグラム、余累積分布関数等として表した。ここでは、溶解槽における臨界事故の評価を例にして、放出リスク算出の手順を示す。

溶解槽における臨界事故では、発生する事故の規模に応じて、放射性物質の放出の経路として、オフガス処理系を経る放出及びセル換気系を経る放出の2つを設定した。オフガス処理系のバリアについては、凝縮器、除湿器及び冷却器についての故障解析をFTAを用いて行った。また、ヨウ素フィルタ及びHEPAフィルタについては独立に故障モードを想定した。これら一連の評価に用いた放出ツリーの例を図-7に示し、結果の例としてファーマーダイアグラムを図-8に示す。

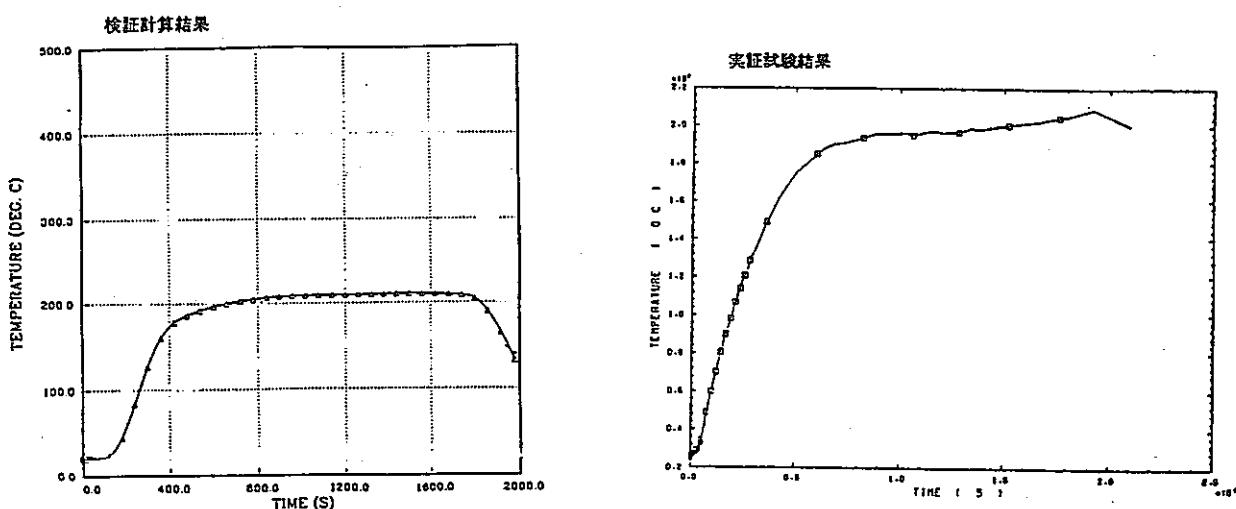
### 3. 成果のまとめ

本研究において想定したモデルプラントは、概念設計もしくは基本設計レベルのプラントイメージではあったが、PSAとして必要な結果が得られ、本研究において導入・整備したSTAR並びFTLは、いずれも再処理施設のPSAに適用できる見通しを得られた。今後は、本研究で想定したモデルプラントの他の工程についてもPSAを適用するとともに、TRP等詳細設計レベルのプラントについてもPSAを適用し、システムモデルの整備を行う。また、評価コードの開発・整備では、放射性物質の放出の動的評価を行うため、FIRACの整備を継続するとともに、動的放出リスク解析コードRIDOの導入・整備を行う計画である。

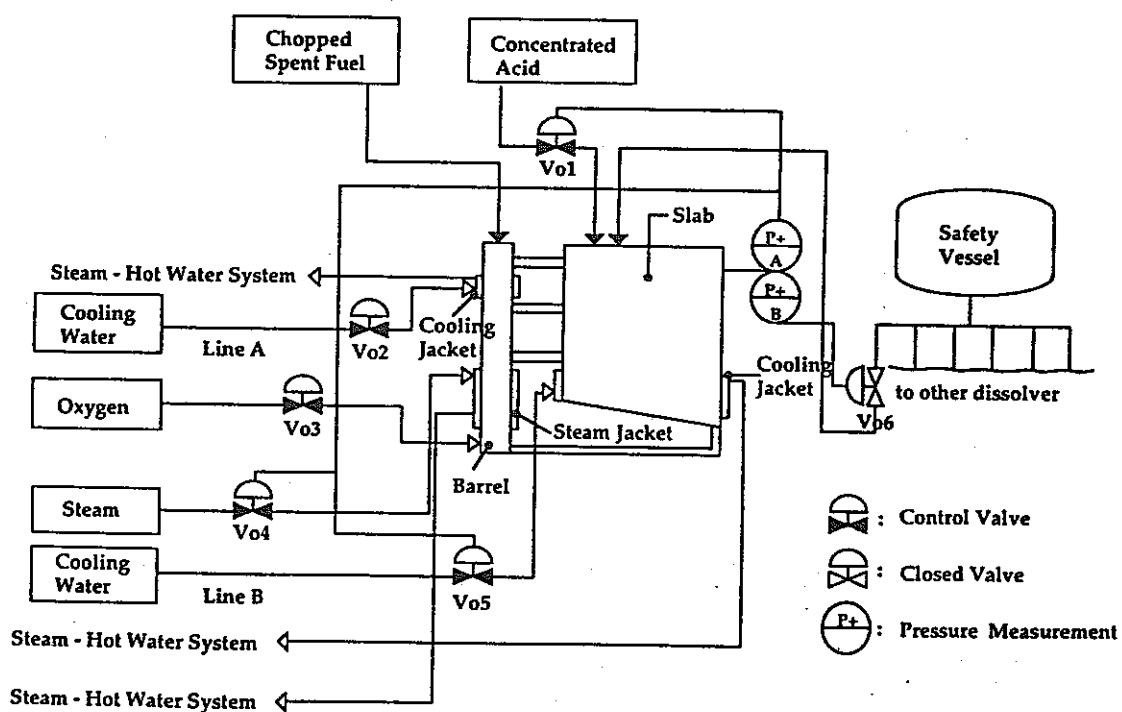
システム信頼性解析の面からは、FTAが有効なことはわかったが、反面、フォールトツリーの作成に大きな労力を要することが明らかになった。このため、今後の詳細設計レベルでのPSAの適用に対応するため、起因事象、発生シナリオの検討の合理化・効率化を図るために、事象の同定手法であるHAZOP、FMEA等が再処理施設について自動的に行えるPSA支援システムの開発に着手する。

### 参考文献

- 金盛、バックエンドにおける安全性研究プロジェクト, PNC N1510 86-001, 1986
- Status Report on the EPRI Fuel Cycle Accident Risk Assessment, NP-1128, 1979
- Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook, NUREG-1320, 1988
- Perkins, W. C., et al, Potential Safety-Related Incidents with Possible Applicability to a Nuclear Fuel Reprocessing Plants, DP-1558, 1980



図一 1 FIRAC検証計算結果



図一 2 モデルプラント溶解工程

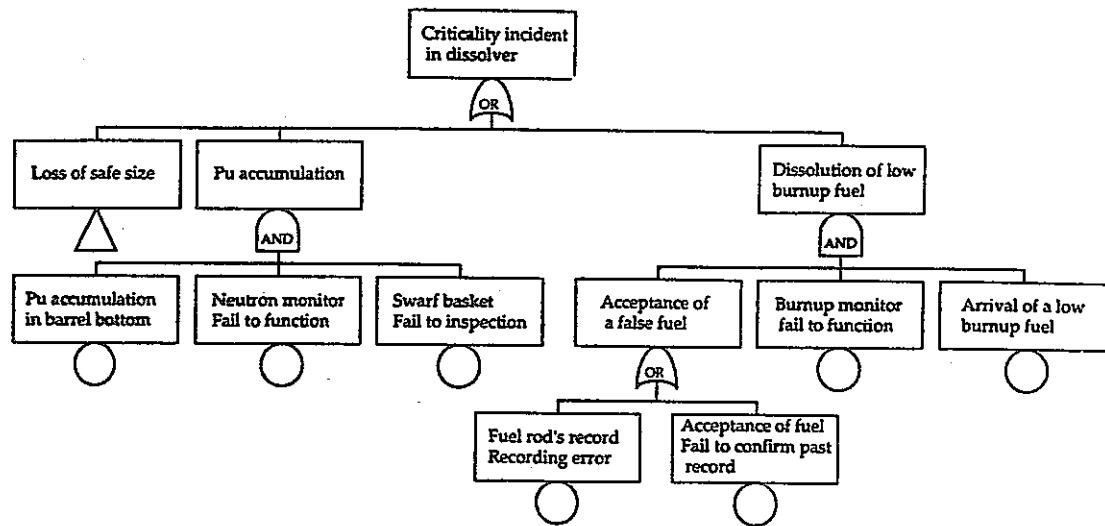


図-3 溶解槽の臨界事故のフォールトツリー（1）

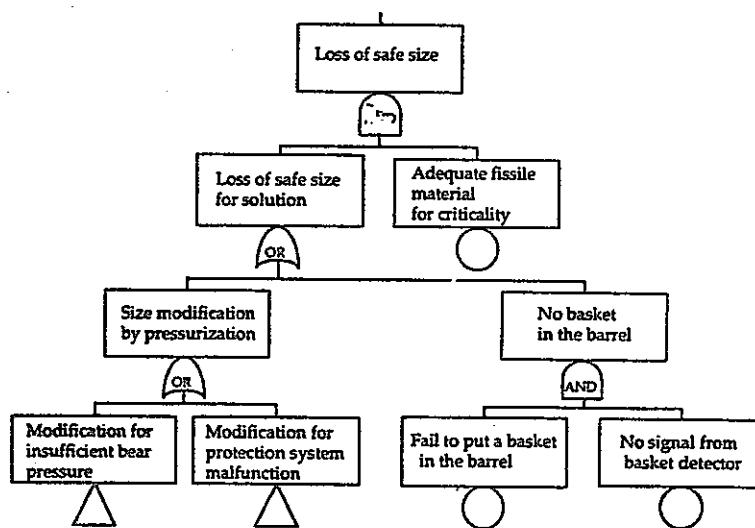


図-4 溶解槽の臨界事故のフォールトツリー（2）

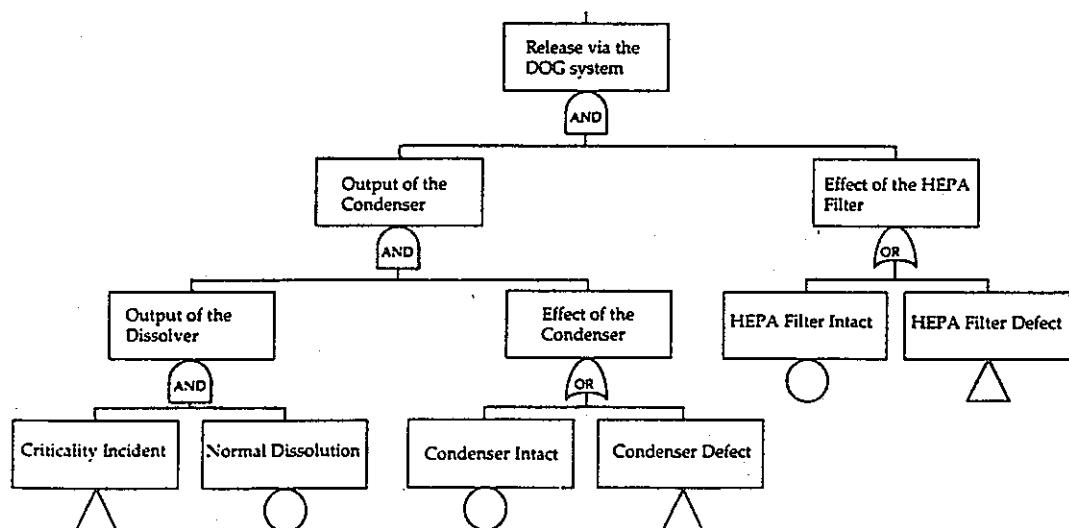


図-5 溶解オフガス系の放出ツリー

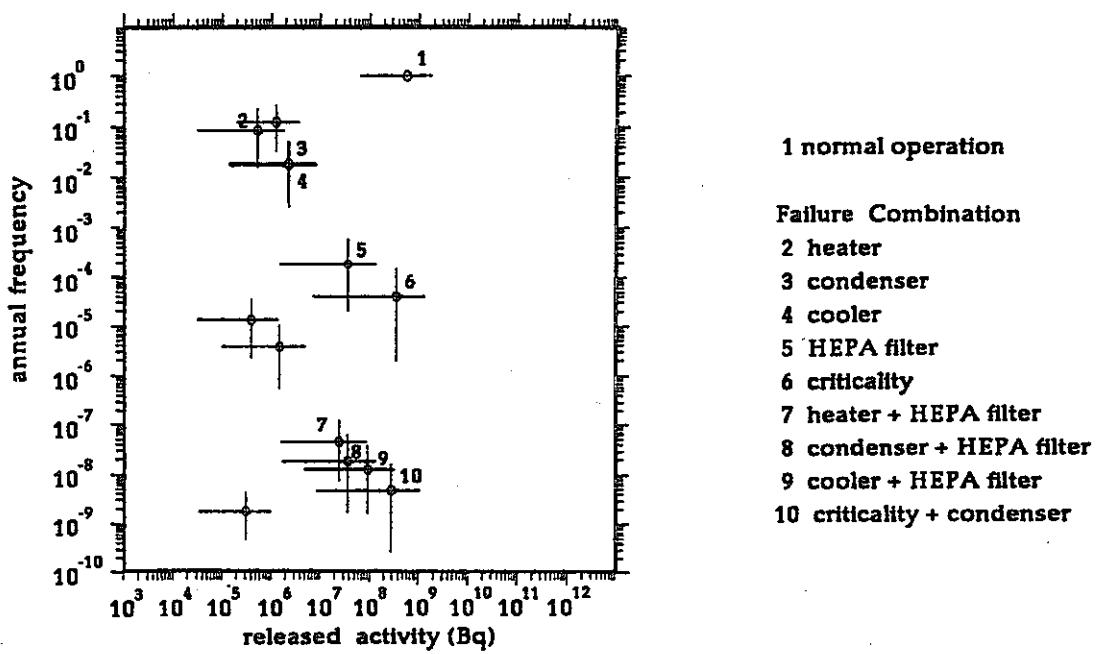


図-6 溶解オフガス系からの放射性物質放出のファーマーダイアグラム

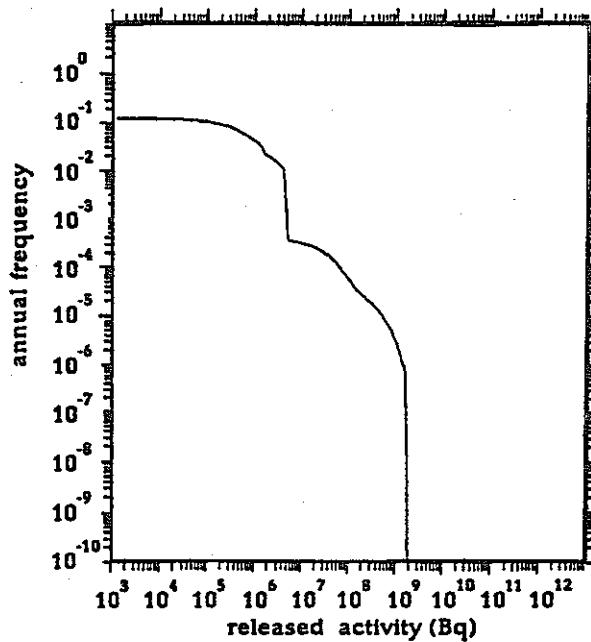


図-7 溶解槽の臨界事故の余累積分布関数

# 確率論的安全評価の核燃料施設技術基準への適用

本社・安全部 金 盛 正 至

## I. 研究の概要

核燃料施設の確率論的安全評価の各国での進展状況を調査し、その結果から、核燃料サイクル施設の技術基準にとり、重要な情報を整理した。イギリスでは、『原子力化学プラントに対する安全審査指針』の中で、事象の発生頻度と被ばく線量の判断レベルが示され、事業者はこれに対応に確率論的安全評価を行っている。フランスでは事象の発生頻度と被ばく線量の判断レベルが安全審査の段階で事業者により用いられている。また、ドイツにおいても決定論的な安全評価に加えて、設備の信頼性評価が安全審査の段階で実施されていた。さらに、アメリカにおいては過去に計画された商業用の再処理施設等において、確率論的安全評価が実施されてきている。これらの内容から、技術的な基準を判断するまでの情報を整理した。

## II. 研究成果

### 1. イギリスの事例

#### (1) 安全評価指針類の整備等

イギリスでは1983年に安全審査指針(SAP)を公布している。(改定予定) THORPに適用して安全審査が実施されている。安全審査では立地評価は行わず、施設について、①設計、②建設、③運転開始前の3段階に分けて各段階で審査を行う。基本的には事業者BNFLに安全評価及び安全設計の責任があるので、BNFL内に独自の安全審査委員会を設け、安全解析書が作成される。NIIはそれを審査する。

#### (2) 想定事故の区分、判断レベル、評価方法等

##### ① 事故区分、判断レベル、確率論的安全評価

SAPでは事故区分、判断レベルの原則を次のように示している。

<u>事故発生確率 (P)</u>	<u>判断レベル</u>
i) $P > 1/30 \text{ y}$	$1/30 \times [\text{appropriate annual dose limit}]$
ii) $1/30 \text{ y} > P > 1/3000 \text{ y}$	$1 \times [ \quad " \quad ]$
iii) $P < 1/3000 \text{ y}$	$20 \times [ \quad " \quad ]$

したがってNIIは施設の内部事象及び外部事象による事故の発生確率を評価する必要があり、PRAが応用されている。発生確率として $10^{-6}/\text{y}$ が判断基準であり、これにより小さい確率の事故は除外する。これは施設の安全設計の過程で事故シナリオと共に明らかにされる。原則的に原子炉の事故選定の考え方へ準じており、一群のフォールトに対して最悪のケース(Bounding Case)を選び、事故評価を効果的に進めることとしている。これまで公開されたPSA報告としてはTHORPに対するHAWの評価例等がある。

##### ② 事故の選択

リスク評価では、外部被ばく、内部被ばく、臨界、火災・爆発、異常気象、地震、外部電源喪失、機器破損、オーバーフロー、閉塞についてリスクへの寄与を考慮する。

外部事象では航空機の墜落、異常気象、地震、タンカーの爆発などについて検討している。航空機の墜落では軽飛行機、重旅客機、軍用機の3区分を考え、主として軍用機の墜落を対象に評価する。まずイギリス全土についてこれまでの統計に基づいて $10^{-6} \sim$

$10^{-7} / \text{y} \cdot \text{km}^2$  の確率係数が得られている。事故の選定という点では、事故群をいくつかのグループに分類し、それぞれのグループのうち影響が最大と考えられる事故 (bounding case) を抽出して発生確率の評価を行う。確率のみで施設防護の必要性を検討するのではなく、確率×影響のリスクによって総合的に判断を行う。異常気象の発生確率は、風力等については最近50年間のデータを、また気温については30年間のデータに基づいている。プラントの運転開始後の信頼性については、運転手順に従い十分な安全運転管理がなされているか否か、Operational assessmentにおいて示される。

### (3) その他施設安全の考え方

#### ① 安全上重要な設備と単一故障の考え方

安全上重要な設備は環境影響度による区分が中心であるが、それ以外にも火災防止、耐震、稼働率などの観点からの分類もあり得るとしている。単一故障の原則がすべての系に適用できるかは、実プラントでの事故シナリオに基づいた十分な検討が必要であるとしている。電源喪失については、フォールト・ツリー解析によって、重要度を決定できるとしている。電源喪失後2時間以内で対応できるかが重要であるとの報告がある。臨界事故については、液系の最大分裂数として、 $2 \times 10^{10}$  が望ましく、臨界評価は安全裕度をシステムとして考慮して行うこととなっている。

## 2. フランスの事例

### (1) 安全評価指針類の整備等

現在核燃料サイクル施設に対し『基本安全規則』を整備しており、章毎に完成し公開されてきている。今までに臨界と火災及び固体廃棄物について公開されている。

### (2) 想定事故の区分、判断レベル、確率論的安全評価

#### ① 判断レベル

事故発生確率が再処理施設合計で $10^{-6} / \text{y}$  以下のものは許容されるものとして評価の対象から除外する。La Hagueについてはworkshopが10程度あるのでそれぞれのworkshopに対しての除外レベルは $10^{-7} / \text{y}$  となる。これ以上の発生確率の事故に対しては

事故発生確率 (P)	判断レベル
$10^{-1} / \text{y} \cdot \text{ws} > P > 10^{-3} / \text{y} \cdot \text{ws}$	$S_3 (= 0.1 \times 500 \text{ mrem})$
$10^{-3} / \text{y} \cdot \text{ws} > P > 10^{-5} / \text{y} \cdot \text{ws}$	$S_2 (= 1 \times 500 \text{ mrem})$
$10^{-5} / \text{y} \cdot \text{ws} > P > 10^{-7} / \text{y} \cdot \text{ws}$	$S_1 (= 30 \times 500 \text{ mrem})$

[註] ws:workshop  $10^{-1} / \text{y}$  以上のものは運転対応としている。

上記の判断レベル  $S_1, S_2, S_3$  に現在は( )内の値を使用する。 $S_1$  を $500 \text{ mrem}$  (平常における年線量限度) の30倍としているが、これは緊急時対策指標線量 (Emergency Reference Level) である。事故時には勿論この線量となるまで何も対策を講じないということではないが、めやすのレベルとして用いる。事故時評価では、発生確率の低減と影響低減について、両者とも評価には不確実性が含まれているので、どちらの低減に努力するかはケースバイケースで決定される従来の決定論的な手法と PRAを組み合わせて、事故を選択し、区分している。

#### ② 事故の選択及び区分

決定論的な手法を中心とするものは臨界、外部事象であり、火災と人的要素は中間に位置するものである。フランスでは、現在、次のような事故シナリオを考えている。

##### a. 内部事象

腐食, 火災・爆発, 圧力上昇又は低下, 冷却機能の低下, 負荷の喪失, 臨界, 電源喪失, 故障等

b. 外部事象

洪水, 雪, 風, 地震, 航空機墜落, 外部爆発等

また, S<sub>1</sub> 事象として HLW廃液タンクの冷却機能の低下を取上げているが, 15時間以内に復旧すれば, S<sub>2</sub> 事象の区分として分類される。

③ 航空機墜落事故

PRA の評価方式は, 原子炉で用いられているものと同じであり, 発生確率が  $10^{-7} / \text{y}$  以上であれば設計上の対応をとることとしている。

④ 臨界事故

臨界事故の規模として, 実験で定めた  $5 \times 10^{18} \text{ fission}$  を考えており, この影響は公衆よりもむしろ従業員に対する影響をみるために評価されている。この事故は確率として  $10^{-5} \sim 10^{-7} / \text{y}$  の範囲で影響するとして S<sub>1</sub> 区分である。

(3) その他の施設安全の考え方

- 火災・爆発事故については, まず発生防止が重要であり, 爆発に対するサンドフィルタ, ジクザグカラムなど影響緩和対応の強化は考えられていない。
- 閉じ込めについては, 多重系を考えており, 原則として公衆に対して 3 重, 従業員に対して 2 重となっている。そのとき, 第 1 のものは種々のコンポーネントであり, 第 2 はセルと換気系, 第 3 は建屋と換気系である。ただし, SF貯蔵プールについては燃料体被覆, 水, 2 重セルの 4 重となっている。
- 電源喪失については, 外部電源, サイトの発電機, 重要な工程毎の発電機に加えて, 移動型の発電機を設置している。
- 安全上重要な系は事故シナリオによって異なるものであり, 事故の発生防止対策の堅牢性(発生確率)の検討の中で明確化されている。従って, 単一故障等の考え方にはなっていない。

### 3. 西ドイツの事例

(1) 安全評価指針類の整備等

ドイツでは

原子力法 (Atomic Energy Act), 放射線防護令 (Radiological Protection Ordinance), 原子力施設からの放出及びモニタリングに関する指針, 再処理施設立地選定基準, 液体, 気体廃棄物の測定方法に関する基準, 平常時被ばく線量計算方法に関する指針等が完備している。

上述の法などは非常に総括的なものであるので, Safety Requirementsにおいては具体的な安全対策を示すこととしている。その内容は定義, 放射線管理 (プラント内及び環境), 臨界, 火災/爆発, 崩壊熱, 換気系とオフガス処理系, 外部事象, 小トラブル運転, 廃棄物などから構成されている。

(2) 想定事故の区分, 判断レベル, 評価方法等

① 事故の分類

立地選定基準があり, 立地の予備審査は行うが, 立地評価のための事故は考えない。

事故は incidents と accidents に区分され, 決定論的手法で評価している。しかし, 事故発生確率は判断のベースとなるので確率計算はしている。その場合 WAK工場のデータ,

一般の化学工場のデータが活用できるとしている。

事故評価には、下記のような小事故(DBA)と大事故(DBAを超えるもの)を考えている。しかし仮想的なものは考えていない。

a. 小事故

機械的損傷、漏洩、異常な化学反応、誤操作、エネルギー損失、冷却機能の低下、オフガス処理／換気系の機能低下、安全上重要な計測系の故障、移送ミス、火災爆発、臨界

b. 大事故

飛行機事故、外部爆発、地震

(3) その他施設安全の考え方

① 単一故障等

単一故障の原則が例外なく適用され、安全設計あるいは安全評価がなされている。火災防止対策として、セル内には消火器は設置せず、セル内酸素の濃度低減(8~10%)など火災の拡大防止対策が検討されている。電源供給系として、外部2系列を設置し、安全上重要な設備について独立の2系列(内部ディーゼル発電機)を設置している。機器、施設等の配置を十分に検討しているので、大事故の同時発生は考えていない。

② 閉じ込めの考え方

最低限2重であり、安全上重要な設備については3重(例えば、タンク、パイプ、セル、建屋)となっている。また、プラント内の爆発に対しても常にHEPAフィルタの機能が維持できることが明らかとなったとの報告がある。

③ 飛行機事故

評価はGRSの方法でなされ、WA-350に対して飛行機墜落の確率は $10^{-6}/y$ 程度である。このように、確率は低いが、念のためファントム-2に対して影響評価を実施し、その結果、WA-350の工程機器について、内壁までの影響がないことが報告されている。

#### 4 アメリカの事例

(1) 安全評価指針類の整備等

アメリカでの再処理施設の安全評価は、原子炉の評価手法に従って行われてきた。また、NCRの政策声明書では、リスクの基準について示されている。

法令10CFR(TITLE 10 of the Code Federal Regulation, アメリカ連邦規則第10編)と指針R.G3.26(Regulatory Guide)があり、再処理施設の許認可に関して定められた安全解析書のフォーマット及び環境報告書の提示が義務付けられている。

個別の安全評価の実績に基づいて、DOEでの施設(再処理施設を含む)に対する評価指針(FINAL DRAFT)及びアメリカの燃料サイクル施設に対する事故解析のハンドブックが作成されている。

(2) 事故分類

統一的な指針で定められていないが、EXXONプラントに対する些少事象・小事象の分析結果、EXXONプラントに対する設計基準事故例の解析、Barnewell プラントに対する解析実施例等多数の報告があり、PSAが積極的に活用されている。

(3) その他施設安全の考え方

前途の指針の中で、再処理施設(PUREX法)を構成する各種の施設について、安全解析書で考慮すべき事故(内部事象及び外部事象)が提案されている。再処理施設の設計は設備

の構成に多くの差異があるので一義的には定まらないが、可能性を確認すべき事故を洗い出すには、有用な知見を示している。

このような考慮すべき事故に対して、それらの解析方法がハンドブックの型式でまとめられている。この内容は、事故事象を具体的に評価するに際して考慮すべき物理・化学的現象、そのモデル化及び入力パラメータなどが、長年の米国のお安全評価の実績及び実験データを駆使してまとめられている。

## 5. 結 論

核燃料施設技術基準は、再処理等の施設を整備している国々で整備が進んでいる。これらの国々の中で PSAが最も利用されているのはイギリス、アメリカであり、仏国においても重要な判断材料として利用されている。

イギリス、フランスにおいては、事故の発生頻度と公衆への影響が関連づけられており、安全審査上で重要な役割を果たしている。これらの結果は、利用が容易なようにデータベース化している。

## 参考文献

- (1) 核燃料物質取扱施設及び設備の技術基準の調査（II），鈴木篤之 他，  
PNC J1545 88-002 , 1988
- (2) 核燃料物質取扱施設及び設備の技術基準の調査（III），鈴木篤之 他，  
PNC J1545 89-002 , 1989
- (3) 確率論的安全評価の核燃料施設基準への適用，金盛正至 野尻一郎，  
PNC TN1410 92-016 , 1992