

本書は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。 2001. 6. 20

[技術情報室]

## 浮遊PuO<sub>2</sub>エアロゾルのグローブボックス内の挙動研究

1991年9月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

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

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001



## 浮遊 $\text{PuO}_2$ エアロゾルのグローブボックス内の挙動研究

佐藤寿人\*，蛭町 秀\*\*，磯前裕一\*\*\*  
川又 博\*，廣田栄雄\*

### 要 旨

プルトニウム燃料施設では、プルトニウムの環境への影響の評価のため、排気口出口での核燃料物質の年間放出量を算出する必要があるが、この計算過程で、移行率を用いる。しかし、この移行率のバックデータについては、各施設の運転実績からのデータがあるのみでグローブボックス内での移行率試験は行われていなかったため、 $\text{PuO}_2$ 粉末を収納する粉末容器の開口面積、グローブボックスの換気回数をパラメータとする移行率試験を行うことにした。

本試験により次のような知見を得た。

- 1) 移行率Ⅰ（発生した $\text{PuO}_2$ エアロゾルが排気口に移行する割合）及び移行率Ⅱ（粉末容器内の $\text{PuO}_2$ 粉末重量に対して $\text{PuO}_2$ エアロゾルが排気口に移行する割合（通常呼ばれている移行率））は、粉末容器の開口面積が増加するにしたがって増加する。
- 2) 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Ⅰ及び移行率Ⅱは、換気回数の影響よりグローブボックス内の気流状態の影響を受ける傾向がある。
- 3) 本試験における移行率Ⅰ及び移行率Ⅱの最大は前者が0.56、後者が $1.3 \times 10^{-5}$ であった。  
なお、このときの試験条件は $\text{PuO}_2$ 粉末重量：1490g、粉末攪拌時間：5分間、粉末容器開口面積 100 $\text{cm}^2$ 、グローブボックス換気回数：3回/hであった。

---

\* プルトニウム燃料工場設備課  
\*\* 安全管理部安全技術課  
\*\*\* 原子力技術(株)

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 試験方法 .....	2
2.1 試験試料 .....	2
2.1.1 同位体組成 .....	2
2.1.2 粒度分布 .....	4
2.2 PuO <sub>2</sub> エアロゾル発生方法 .....	6
2.3 サンプルング方法 .....	6
2.4 $\gamma$ 線によるPuO <sub>2</sub> 重量の推定 .....	6
2.5 試験条件 .....	13
3. 試験結果 .....	15
3.1 粉末容器開口率の影響 .....	15
3.1.1 粉末容器上及び排気口でのPuO <sub>2</sub> サンプルング結果 .....	15
3.1.2 移行率I .....	20
3.1.3 移行率II .....	21
3.2 グローブボックス換気回数の影響 .....	23
3.2.1 粉末容器上及び排気口でのPuO <sub>2</sub> サンプルング結果 .....	23
3.2.2 移行率I .....	25
3.2.3 移行率II .....	25
4. まとめ .....	27

## 1. はじめに

プルトニウム燃料施設では、プルトニウムの環境への影響の評価のため、排気口出口での核燃料物質の年間放出量を算出する必要がある。算出にあたっては、次式が用いられている。

$$Q = (1 - (FE)) \cdot (TR) \cdot Q_0$$

ここで、

Q：排気口出口における核燃料物質の年間放出量

(FE)：フィルタの実効捕集効率

(TR)：工程から排気系への核燃料物質の移行率<sup>\*1)</sup>

Q<sub>0</sub>：工程の年間核燃料物質取扱量

しかし、この式で用いるフィルタの実効捕集効率、移行率についてはデータが少ないため、安全側の値を用いているのが実状である。このような背景から国の安全研究計画の一環としてグローブボックス内のPuO<sub>2</sub>エアロゾル挙動に着目した試験を行うことにした。

本試験では、グローブボックス内で発生したPuO<sub>2</sub>エアロゾルの排気系への移行率に着目し、PuO<sub>2</sub>粉末を収納する粉末容器の開口面積、グローブボックスの換気回数をパラメータとする試験を行った。

なお、本報告書の中ではPuO<sub>2</sub>エアロゾルという用語をしばしば用いているが、これはエアロゾル工学の分野での定義とは若干違った意味で用いている。すなわち、エアロゾル工学分野での定義は「分散相は固体または液体の粒子からなり、分散媒は気体からなるコロイド系である。」としているが、本報告書では、粒子径等の物性値にこだわらず、PuO<sub>2</sub>粉末が何らかの力を受けて空気中に舞い上がった状態の粒子を総称してPuO<sub>2</sub>エアロゾルと呼ぶことにしている。

\*1)：グローブボックス内でPuO<sub>2</sub>粉末等を取り扱う過程において、PuO<sub>2</sub>粉末等の一部が浮遊等によりグローブボックス排気口に移行する場合、移行率は次式で与えられる。

$$(\text{移行率}) = \frac{(\text{排気口に移行するPuO}_2\text{粉末等の重量})}{(\text{取り扱うPuO}_2\text{粉末等の重量})}$$

## 2. 試験方法

グローブボックス内でPuO<sub>2</sub>粉末を粉末攪拌装置により攪拌し、PuO<sub>2</sub>エアロゾルを発生させ、グローブボックス内の各位置でパーソナル・ダスト・サンプラによりPuO<sub>2</sub>エアロゾルをサンプリングする。試験の概要を図-2.1.1に示す。

また、試験用のPuO<sub>2</sub>粉末について予めγ線とPuO<sub>2</sub>重量に関する検量線を作成して、これによりサンプリングしたPuO<sub>2</sub>エアロゾルのγ線量から重量を測定し、移行率を求める。

### 2.1 試験試料

試験に用いたPuO<sub>2</sub>粉末は、昭和47年にBNFLから購入したものであり、Amが多く含まれているためにγ線の線量当量が高いものであった。重量は1490gであった。

なお、このPuO<sub>2</sub>粉末は、シュウ酸沈澱法により得られたものである。

#### 2.1.1 同位体組成

本試験に用いたPuO<sub>2</sub>粉末の同位体組成を表-2.1.1に示す。なお、分析日は昭和59年8月1日である。

表-2.1.1 同位体組成

核種	比率(w%)
Pu-238	9.84
Pu-239	64.90
Pu-240	21.78
Pu-241	9.46
Pu-242	3.02

Am-241 41,250ppm

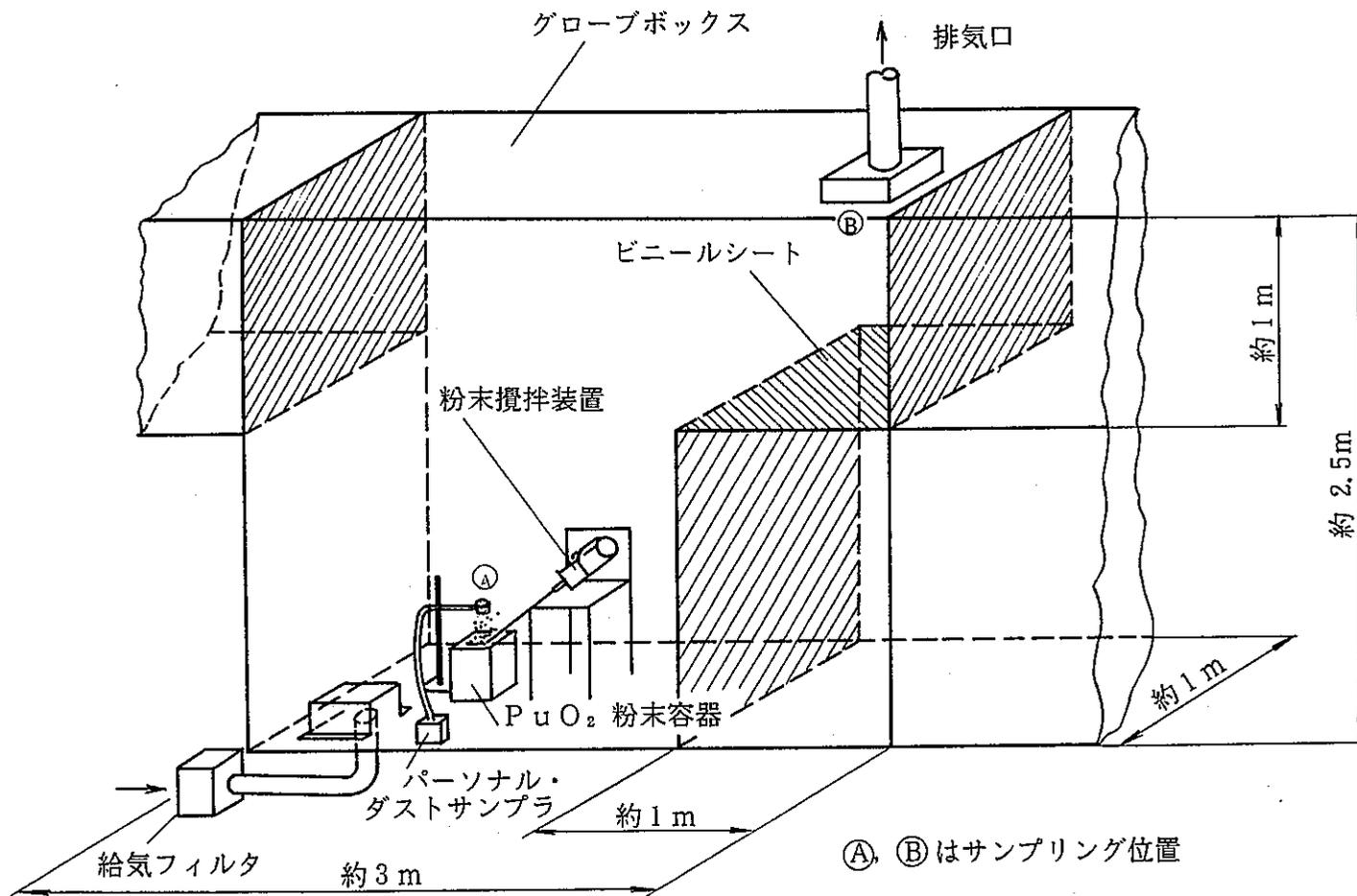


図-2.1.1 試験概要図

## 2.1.2 粒度分布

本試験に用いたPuO<sub>2</sub>粉末と同じロットではないが、同一プロセスによる粉末の粒度分布を参考として表-2.1.2 及び図-2.1.1 に示す。これは、コールターカウンタで測定したものである。このため、1.59  $\mu\text{m}$ 以下の径については測定できなかったものと考えられる。

表-2.1.2 粒度分布

径 ( $\mu\text{m}$ )	個数分布 (%)	径 ( $\mu\text{m}$ )	個数分布 (%)
1.26	0.0	8.00	2.7
1.59	0.0	10.1	1.0
2.00	18.6	12.7	0.4
2.52	22.8	16.0	0.1
3.17	20.0	20.2	0.0
4.00	17.1	25.4	0.0
5.04	11.3	32.0	0.0
6.35	6.0	40.3	0.0

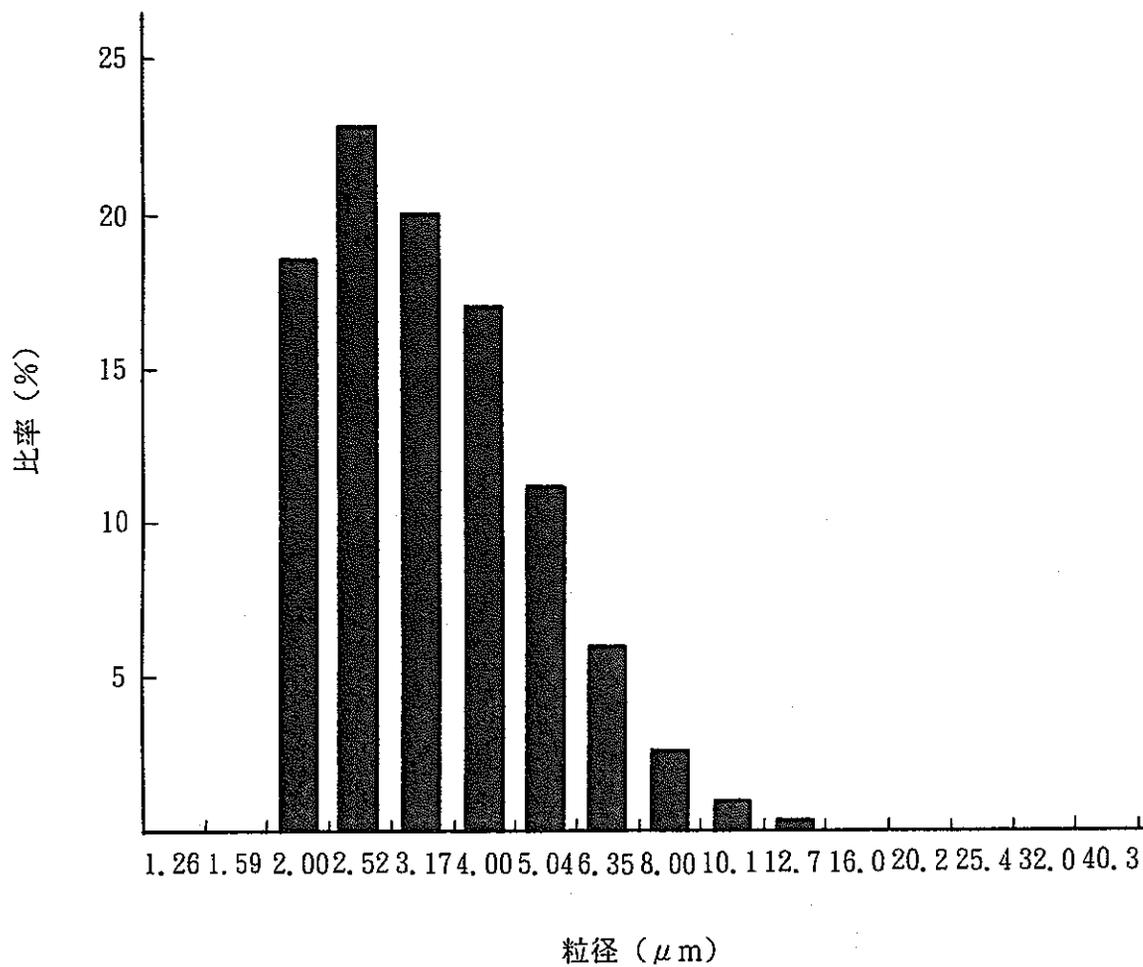


図-2.1.2 PuO<sub>2</sub> 粉末の粒度分布

## 2.2 PuO<sub>2</sub> エアロゾル発生方法

グローブボックス内でPuO<sub>2</sub>粉末を粉末攪拌装置により攪拌し、PuO<sub>2</sub>エアロゾルを発生させた。粉末攪拌装置の回転数は100RPMとした。粉末攪拌装置の写真を図-2.2.1に示す。

なお、この方法は、PuO<sub>2</sub>エアロゾルが安定に発生すると考えたために採用した。

## 2.3 サンプリング方法

発生したPuO<sub>2</sub>エアロゾルは、粉末容器の真上と排気口でパーソナル・ダスト・サンプラによりサンプリングした。パーソナル・ダスト・サンプラの流量は、1ℓ/minとした。この本体の写真及びサンプリングヘッドの概要を図-2.3.1及び図-2.3.2に示す。

また、粉末容器上及びグローブボックス排気口に設置したサンプリングヘッドの設置状況を図-2.3.3及び図-2.3.4に示す。

## 2.4 γ線によるPuO<sub>2</sub>重量の測定

サンプリングしたPuO<sub>2</sub>エアロゾルのγ線の線量当量からPuO<sub>2</sub>重量の測定するため、試験に用いたPuO<sub>2</sub>粉末の重量とγ線の線量当量の関係を予め求めた。この結果を表-2.4.1及び図-2.4.1に示す。この重量と線量当量には最小二乗法によると以下の関係式が成り立つ。

$$Y = 32205 \cdot X$$

Y : γ線の線量当量 (μSv/h)

X : PuO<sub>2</sub>粉末の重量 (g)

また、サンプリングしたPuO<sub>2</sub>エアロゾルのγ線の線量当量は、サンプルをグローブボックスの別のエリアでグローブを介して電離箱により測定した。この際バックグラウンドを下げるため、グローブ周辺は鉛のブロックで遮へいた。

表-2.4.1 重量と線量当量の関係

重量 (g)	線量当量 ( $\mu\text{Sv/h}$ )
0.004	67
0.007	297
0.012	366
0.017	547
0.034	1000以上

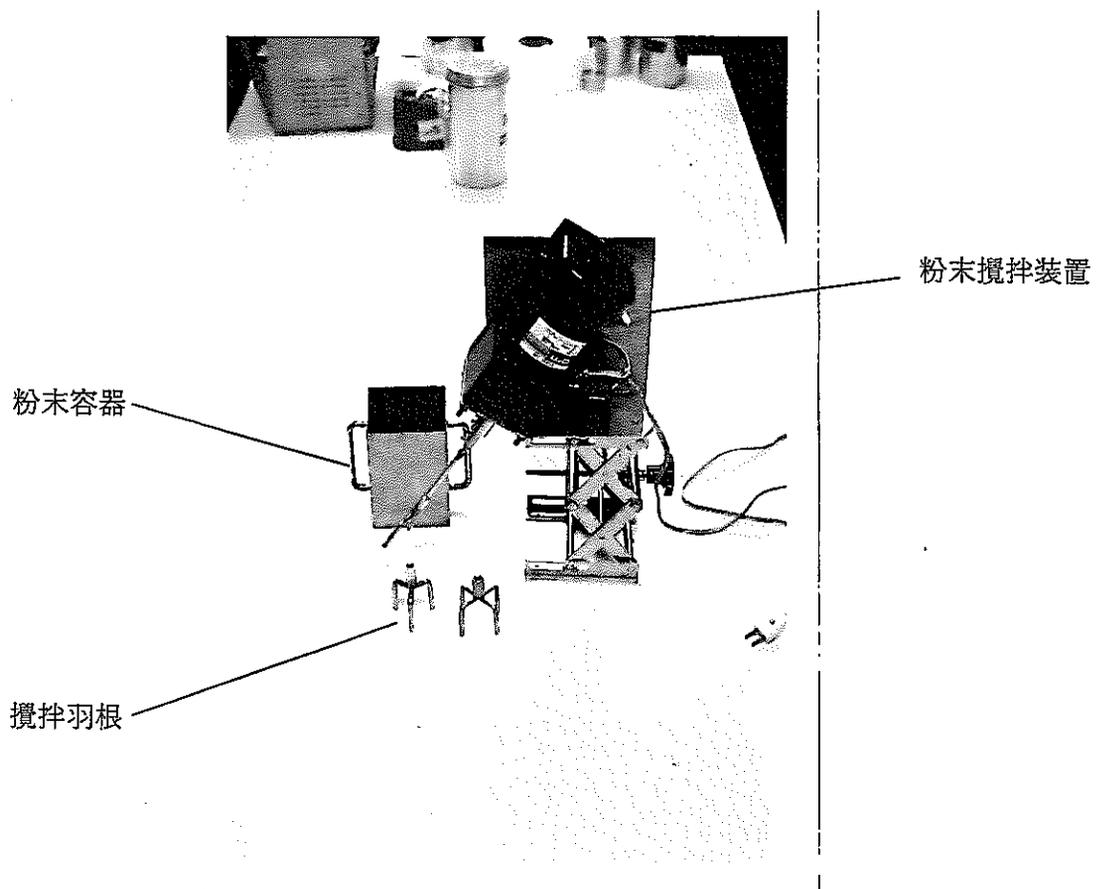


図- 2. 2. 1 粉末攪拌装置

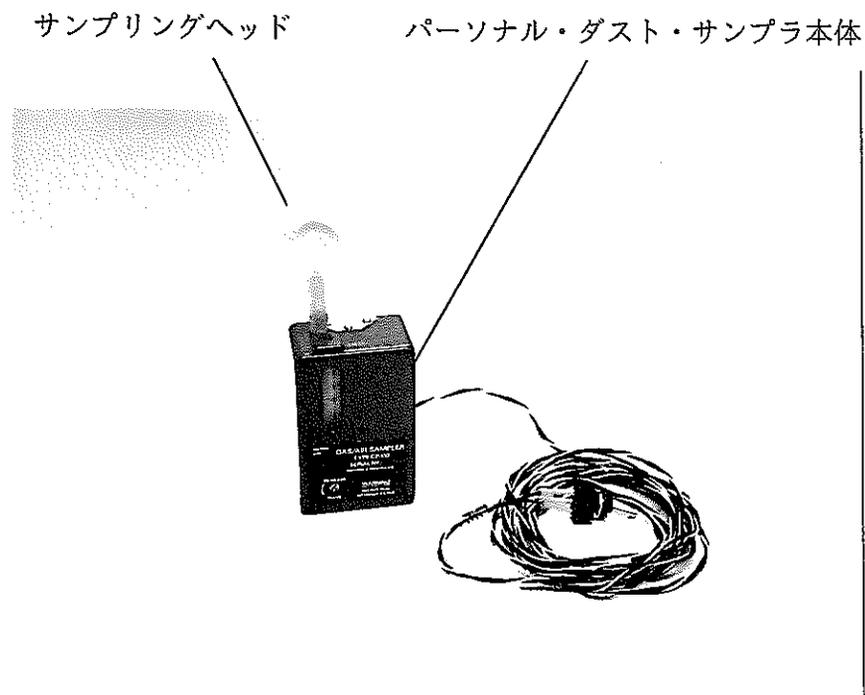


図2. 3. 1 パーソナル・ダスト・サンプラ

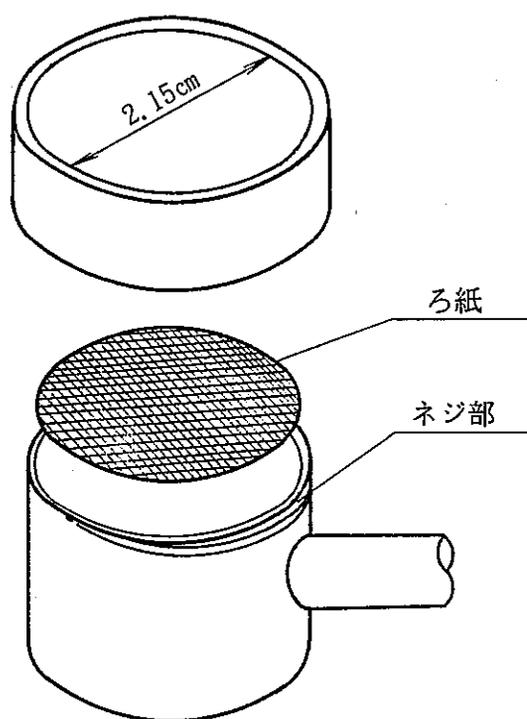


図-2.3.2 サンプルングヘッド

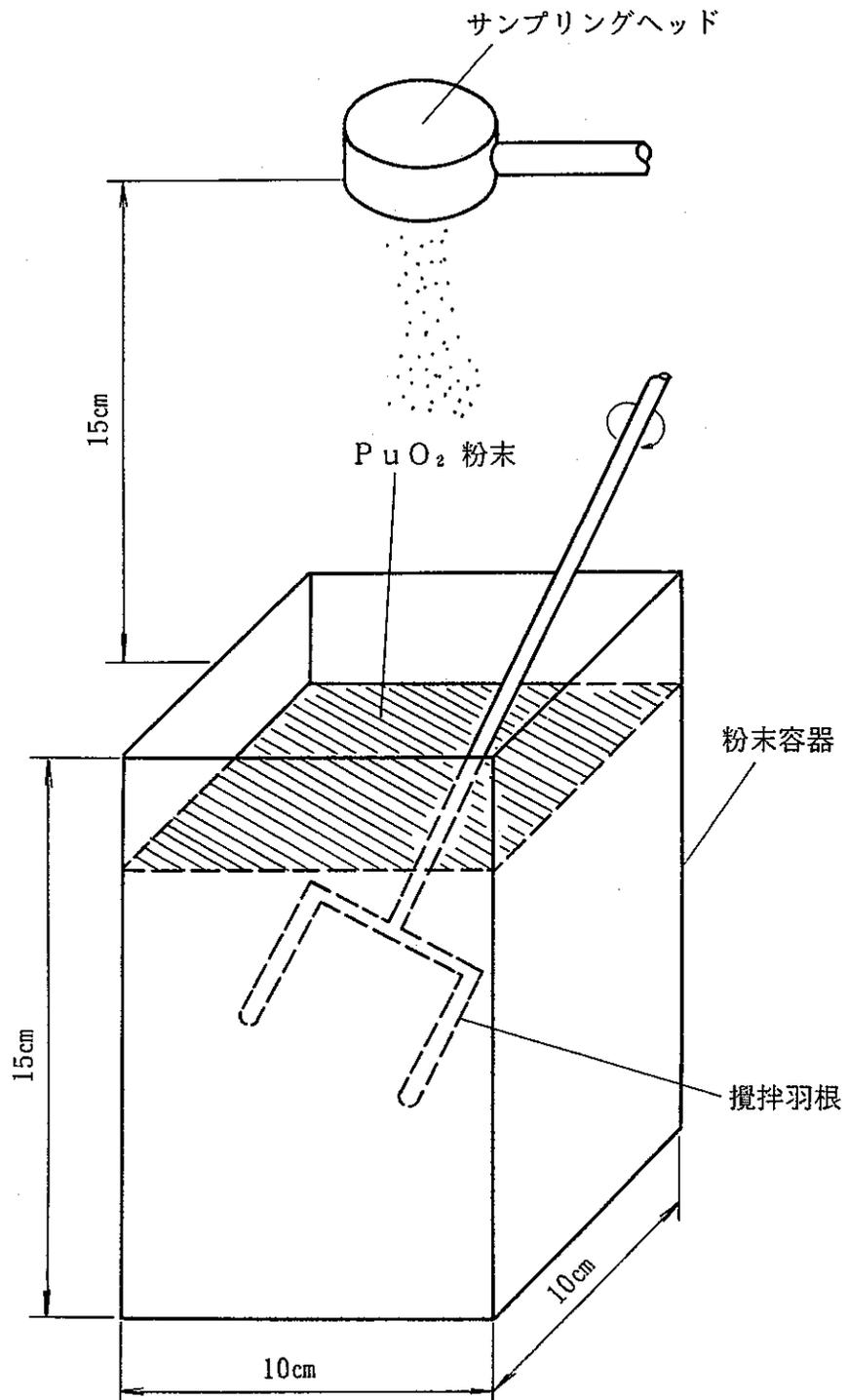


図-2.3.3 粉末容器上のサンプリング

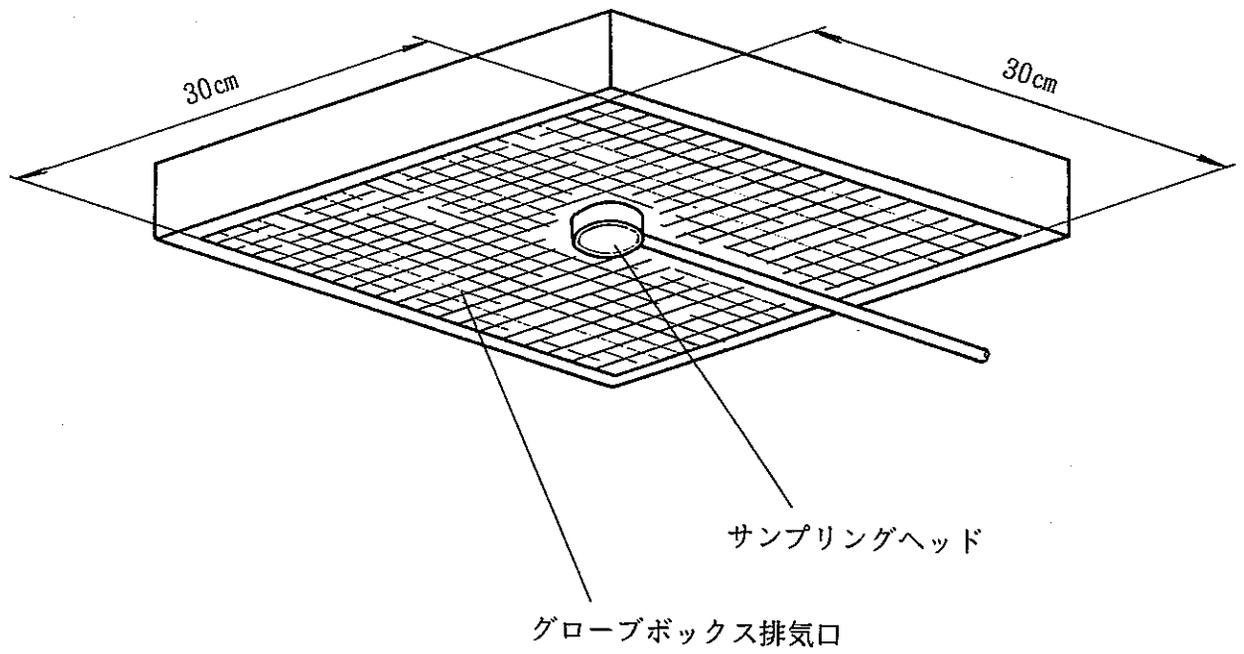


図-2.3.4 排気口のサンプリング

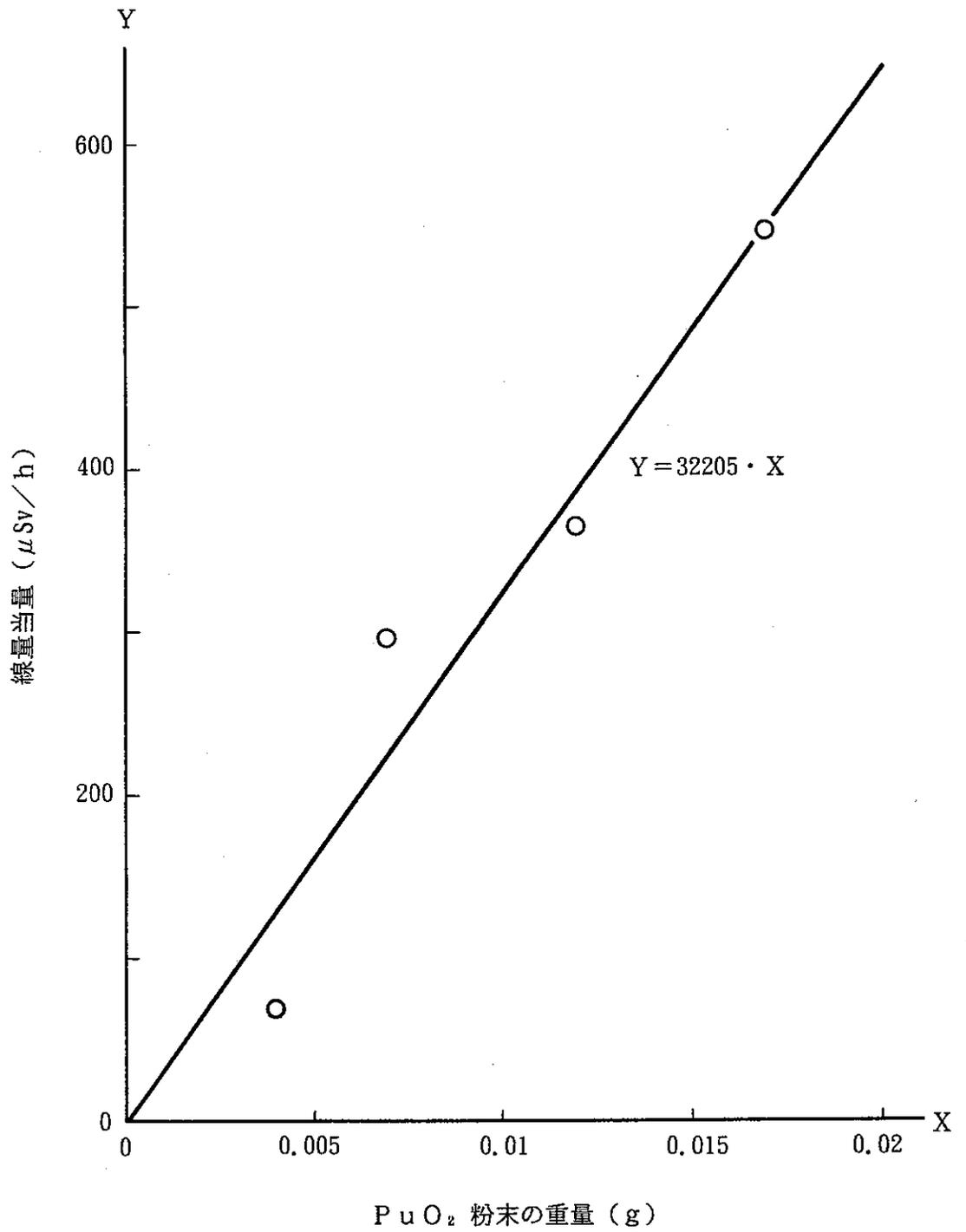


図2.4.1 PuO<sub>2</sub> 粉末の重量と線量当量の関係

## 2.5 試験条件

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にして1つの試験ケースについて3回試験を行った。これらの試験条件を表-2.5.1に示す。粉末容器開口率は、10、50、100%、グローブボックス換気回数は3、8、14回/hに設定した。

また、排気口でのサンプリング時間は、発生したPuO<sub>2</sub>エアロゾルが排気口へ移行し続ける時間（予め、蛍光磁粉を用いたコールド試験からこの時間を求めた）に安全率を考慮して設定した。

なお、粉末容器の開口率とは、粉末容器の開口面積(100cm<sup>2</sup>)に対する開口面積の比率である。

表-2.5.1 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	換気回数	排気口でのサンプリング時間
1	1490 g	5 min	10%	3回/h	210min
2			50%	3回/h	
3			100%	3回/h	
4			100%	8回/h	105min
5			100%	14回/h	60min

また、グローブボックス内の換気回数を変化させた場合のグローブボックス内の気流の状態を図-2.5.1に示す。

換気回数3、14回/hでは、グローブボックス中央部に滞留が生じているが、換気回数8回/hの場合は、滞留は生じず、気流が天井部に衝突し、天井部を這うようにして排気口に移行する。

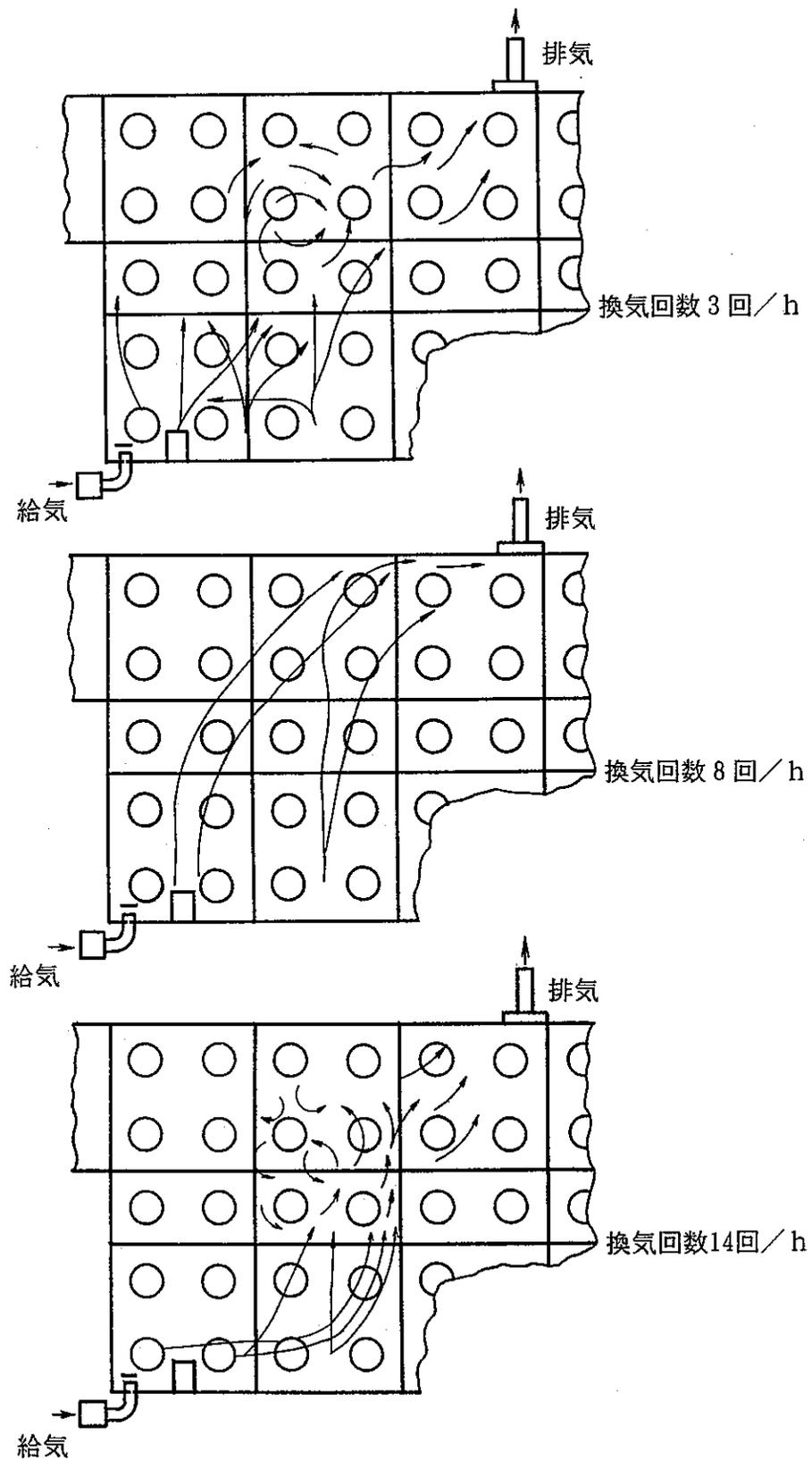


図-2.5.1 グローブボックス気流状態

### 3. 試験結果

試験結果では、粉末容器開口率の影響及びグローブボックス換気回数の影響について述べる。

#### 3.1 粉末容器開口率の影響

##### 3.1.1 粉末容器上及び排気口でのPuO<sub>2</sub>のサンプリング結果

粉末容器の開口率を変化させた場合の粉末容器上でサンプリングされたPuO<sub>2</sub>のγ線による線量当量率、これから換算したPuO<sub>2</sub>重量並びに粉末容器外に出たPuO<sub>2</sub>重量を表-3.1.1及び図-3.1.1、図-3.1.2に示す。

これらのことから、粉末容器上でサンプリングされたPuO<sub>2</sub>重量は開口率が増えることにより増加していることが分かる。一般的には開口率が変化してもこの値は一定と考えられるが、開口面積が小さいと粉末容器内で発生したPuO<sub>2</sub>エアロゾルが容器外に出ていく過程で粉末容器内の壁面等へ付着あるいは沈降し、結果として容器外に出ていく割合が少なくなったものと考えられる。

また、グローブボックスの排気口でサンプリングされたPuO<sub>2</sub>のγ線による線量当量率、これから換算したPuO<sub>2</sub>重量並びに排気口へ移行したPuO<sub>2</sub>重量を表-3.1.2及び図-3.1.3、図-3.1.4に示す。

これらのことから、排気口に移行したPuO<sub>2</sub>重量については粉末容器の開口率が増えることにより直線的に増加することがわかる。

表-3.1.1 粉末容器開口率と粉末容器上でのPuO<sub>2</sub>サンプリング結果

粉末容器 開口率 (%)	粉末容器上でサンプリング されたPuO <sub>2</sub> のγ線に よる線量当量率 (μSv/h)	粉末容器上でサンプリング されたPuO <sub>2</sub> 重量 (g) W1	粉末容器外に出た PuO <sub>2</sub> 重量 (g) TW1
10	7.2	$2.2 \times 10^{-4}$	$6.1 \times 10^{-4}$
50	20.0	$6.4 \times 10^{-4}$	$8.5 \times 10^{-3}$
100	40.8	$1.2 \times 10^{-3}$	$3.6 \times 10^{-2}$

表-3.1.2 粉末容器開口率と排気口でのPuO<sub>2</sub> サンプルング結果

粉末容器 開口率 (%)	排気口でサンプルングさ れたPuO <sub>2</sub> のγ線に よる線量当量率 (μSv/h)	排気口でサンプルングさ れたPuO <sub>2</sub> 重量 (g) W <sub>2</sub>	排気口へ移行した PuO <sub>2</sub> 重量 (g) TW <sub>2</sub>
10	0.8	$2.4 \times 10^{-5}$	$6.2 \times 10^{-3}$
50	1.8	$5.6 \times 10^{-5}$	$1.4 \times 10^{-2}$
100	2.6	$8.1 \times 10^{-5}$	$2.0 \times 10^{-2}$

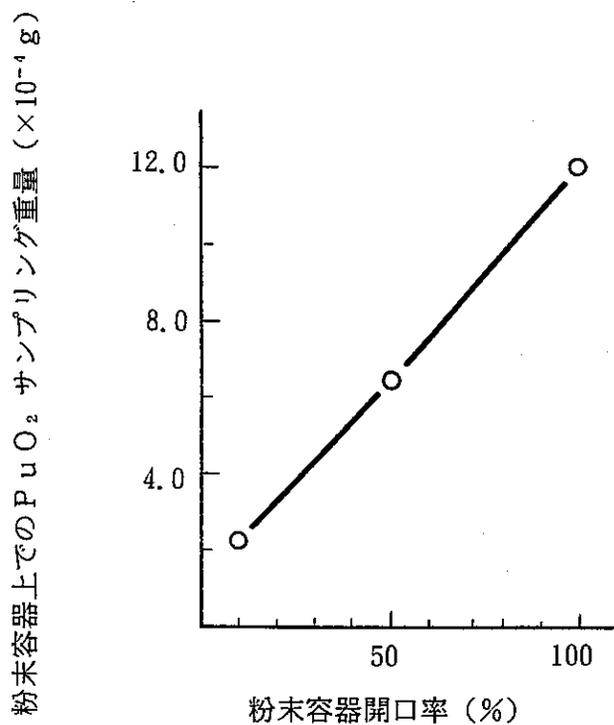


図-3.1.1 粉末容器開口率と粉末容器上でのPuO<sub>2</sub> サンプル重量の関係

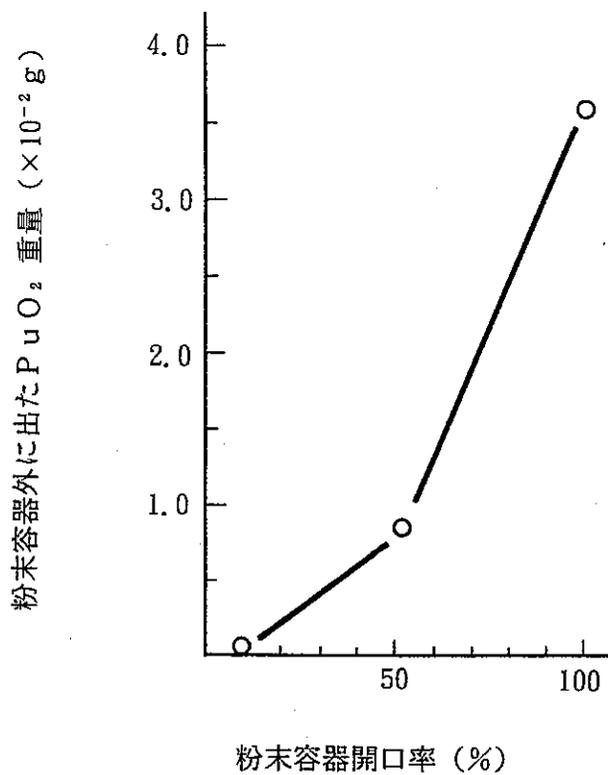


図-3.1.2 粉末容器開口率と粉末容器外に出たPuO<sub>2</sub> 重量の関係

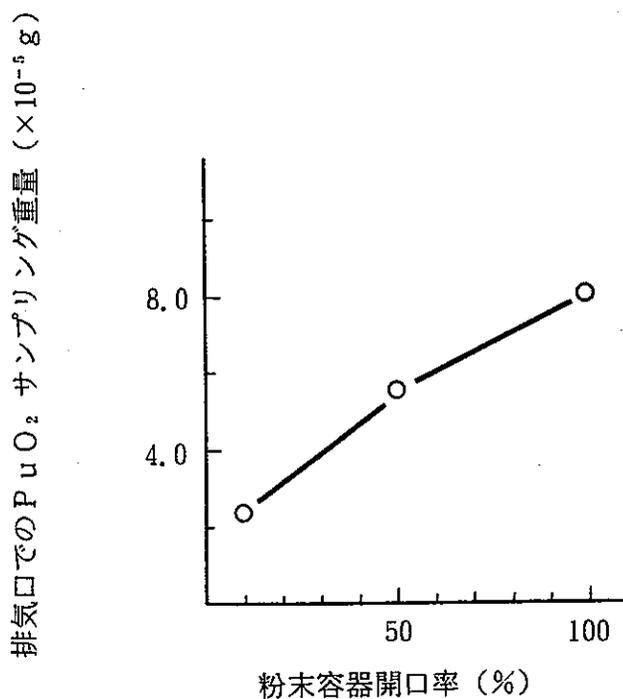


図-3.1.3 粉末容器開口率と排気口でのPuO<sub>2</sub> サンプル重量の関係

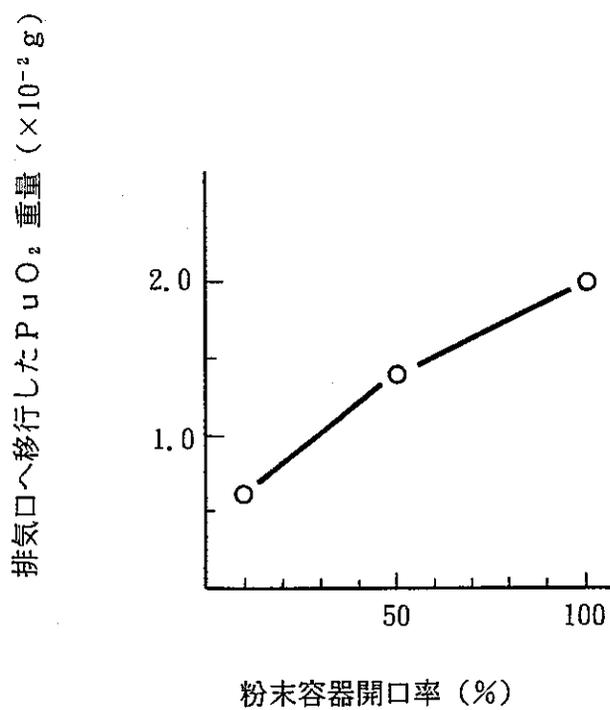


図-3.1.4 粉末容器開口率と排気口へ移行したPuO<sub>2</sub> 重量の関係

なお、サンプリングされた  $\text{PuO}_2$  の  $\gamma$  線による線量当量率から  $\text{PuO}_2$  重量に換算した方法及び粉末容器外に出た  $\text{PuO}_2$  重量、排気口へ移行した  $\text{PuO}_2$  重量を求めた方法を以下に示す。

1) サンプリングされた  $\text{PuO}_2$  の  $\gamma$  線による線量当量率から  $\text{PuO}_2$  重量への換算

前述したように試験で使用したプルトニウム粉末の重量と  $\gamma$  線による線量当量率は次の関係があるため、この関係から求める。

$$W = (1/32205) \cdot R$$

W :  $\text{PuO}_2$  重量 (g)

R :  $\gamma$  線による線量当量率 ( $\mu\text{Sv/h}$ )

2) 粉末容器外に出た  $\text{PuO}_2$  重量

粉末容器上でサンプリングされた  $\text{PuO}_2$  重量に P. D. S サンプルングヘッドの面積と粉末容器の開口面積の比を乗じて求める。これは、粉末容器からは均一にプルトニウムエアロゾルが発生しているものと考えたためである。

$$TW1 = W1 \cdot (A1/A)$$

TW1 : 粉末容器外に出た  $\text{PuO}_2$  重量 (g)

W1 : 粉末容器上でサンプリングされた  $\text{PuO}_2$  重量 (g)

A1 : 粉末容器の開口面積 ( $\text{cm}^2$ )

(10%の場合 : = 10 $\text{cm}^2$ )

(50%の場合 : = 50 $\text{cm}^2$ )

(100%の場合 : = 100 $\text{cm}^2$ )

A : P. D. S サンプルングヘッドの面積 ( $\text{cm}^2$ )

(= 3.63 $\text{cm}^2$ )

3) 排気口へ移行した  $\text{PuO}_2$  重量

排気口でサンプリングされた  $\text{PuO}_2$  重量にパーソナル・ダスト・サンプラのサンプリングヘッドの面積と排気口の開口面積の比を乗じて求める。

$$TW2 = W2 \cdot (A2 / A)$$

TW2 : 排気口へ移行したPuO<sub>2</sub> 重量 (g)

W2 : 排気口でサンプリングされたPuO<sub>2</sub> 重量 (g)

A1 : 排気口の開口面積 (cm<sup>2</sup>)  
(= 900cm<sup>2</sup>)

A : サンプリングヘッドの面積 (cm<sup>2</sup>)  
(= 3.63cm<sup>2</sup>)

### 3.1.2 移行率 I

粉末容器の開口率を変化させた場合に、粉末容器内で発生したPuO<sub>2</sub> エアロゾルがグローブボックス排気口まで移行する割合（以下「移行率 I」という。）を表-3.1.3及び図-3.1.5に示す。

これらのことから、粉末容器開口率が増加することにより移行率 I は増加する傾向があることが分かる。

表-3.1.3 粉末容器開口率と移行率 I

粉末容器開口率 (%)	移行率 I
10	0.17
50	0.39
100	0.56

なお、移行率 I は次の考え方により算出した。

$$TR1 = TW2 / HW1$$

TR1 : 移行率 I

TW2 : 排気口へ移行したPuO<sub>2</sub> 重量 (g)

HW1 : PuO<sub>2</sub> エアロゾルの発生重量 (g)

PuO<sub>2</sub> エアロゾルの発生量は、粉末容器の開口率 100%

の場合の粉末容器外に出る  $\text{PuO}_2$  重量 ( $= 3.6 \times 10^{-2} \text{ g}$ ) とした。また、この値は、開口率が変化しても同じと仮定した。その理由は、 $\text{PuO}_2$  エアロゾルの発生条件は同じであるため、粉末容器内では同じ量のエアロゾルが発生していると考えたためである。

### 3.1.3 移行率Ⅱ

粉末容器の開口率を変化させた場合に、試験で使用した  $\text{PuO}_2$  粉末重量を基に発生した  $\text{PuO}_2$  エアロゾルがグローブボックス排気口まで移行する割合（以下「移行率Ⅱ」という。）を表-3.1.4及び図-3.1.6に示す。

これらのことから、粉末容器開口率が増加することにより移行率Ⅱは増加する傾向があることが分かる。

表-3.1.4 粉末容器開口率と移行率Ⅱ

粉末容器開口率 (%)	移行率Ⅱ
10	$4.2 \times 10^{-6}$
50	$9.4 \times 10^{-6}$
100	$1.3 \times 10^{-5}$

なお、移行率Ⅱは次の考え方により算出した。

試験で使用した  $\text{PuO}_2$  粉末重量と排気口に移行したエアロゾル移行量の関係から移行率Ⅱを次の式により求める。

$$\text{TR}2 = \text{TW}2 \cdot (1/W)$$

TR2 : 移行率Ⅱ

TW2 : 排気口へ移行した  $\text{PuO}_2$  重量 (g)

W : 試験で使用した  $\text{PuO}_2$  粉末重量 (g)  
(=1490 g)

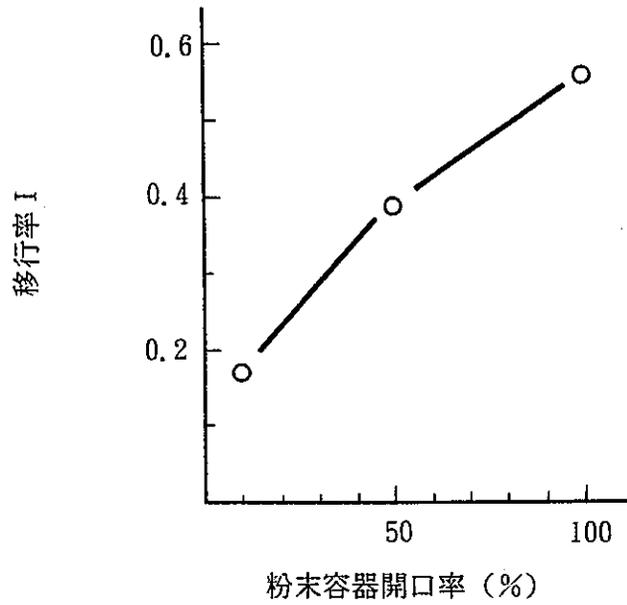


図-3.1.5 粉末容器開口率と移行率 I の関係

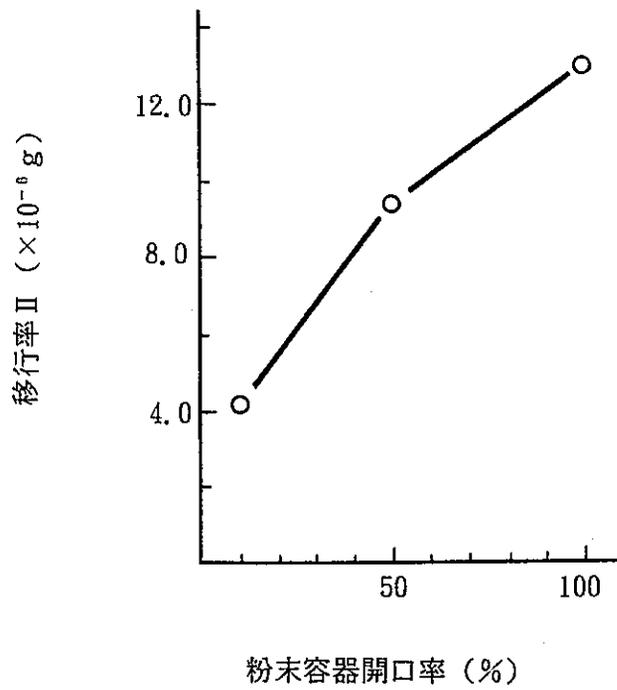


図-3.1.6 粉末容器開口率と移行率 II の関係

### 3.2 グローブボックス換気回数の影響

#### 3.2.1 粉末容器上及び排気口でのPuO<sub>2</sub> サンプルング結果

グローブボックスの換気回数を変化させた場合のグローブボックスの排気口でサンプルングされたPuO<sub>2</sub> のγ線による線量当量率、これから換算したPuO<sub>2</sub> 重量並びに排気口へ移行したPuO<sub>2</sub> 重量を表-3.2.1及び図-3.2.1、図-3.2.2に示す。

これらのことから、排気口へ移行したPuO<sub>2</sub> 重量は、換気回数3回のときが最も多く、次に14回、8回の順となっていることが分かる。ところが、一般的には換気回数が増加すると、グローブボックス内の風速が早くなり、重力沈降等の影響が小さくなるため、排気口に移行する割合が増加すると考えられるが、本試験ではこの傾向は得られなかった。この原因としては、グローブボックス内の気流の影響によるものと考えられる。すなわち、換気回数3、14回/hの場合は、グローブボックス中央部に滞留が生じているが、換気回数8回/hの場合は、滞留は生じず、気流は天井部に衝突し、天井部を這うようにして排気口に移行している。このため、8回/hの場合はこの移行の過程で、PuO<sub>2</sub> エアロゾルが天井部等に付着したため、移行量が減少したものと考えられる。(図-2.5.1参照)

なお、グローブボックスの換気回数を変化させた場合の粉末容器上でのPuO<sub>2</sub> サンプルング重量は、グローブボックス内の気流の影響で十分なサンプルングができなかったため、前述の換気回数3回、開口率100%のときの $3.6 \times 10^{-2}$  gとする。

表-3.2.1 グローブボックス換気回数と排気口でのPuO<sub>2</sub> サンプルング結果

グローブボックス 換気回数 (回/h)	排気口でサブリグされたPuO <sub>2</sub> のγ線による線量当量率 (μSv/h)	排気口でサブリグされたPuO <sub>2</sub> 重量 (g) W <sub>2</sub>	排気口へ移行したPuO <sub>2</sub> 重量 (g) TW <sub>2</sub>
3	2.6	$8.1 \times 10^{-5}$	$2.0 \times 10^{-2}$
8	1.3	$4.0 \times 10^{-5}$	$9.9 \times 10^{-2}$
14	2.3	$7.1 \times 10^{-5}$	$1.8 \times 10^{-2}$

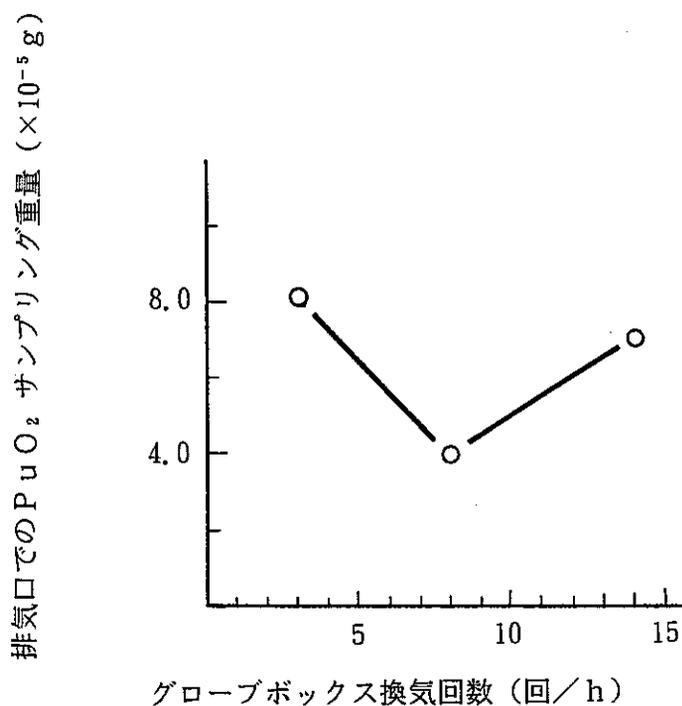


図-3.2.1 グローブボックス換気回数と排気口でのPuO<sub>2</sub> サンプル重量の関係

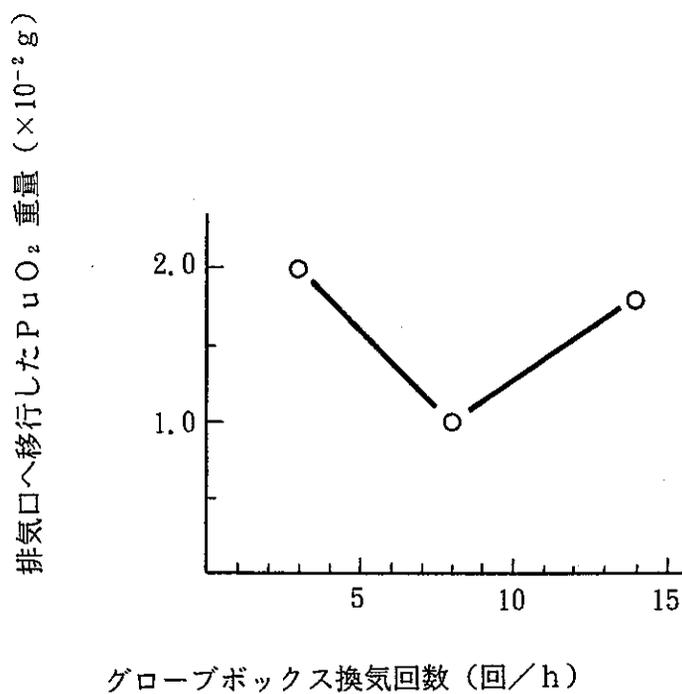


図-3.2.2 グローブボックス換気回数と排気口へ移行したPuO<sub>2</sub> 重量の関係

### 3.2.2 移行率 I

グローブボックスの換気回数を変化させた場合の移行率 I を表-3.2.2 及び図-3.2.3 に示す。なお、移行率 I 算出の考え方は前述の通りである。

これらのことから、移行率 I は換気回数 3 回のときが最も高く、次に14回、8 回の順となっていることが分かる。この原因については、前述の3.2.1 と同じと考えられる。

表-3.2.2 グローブボックスの換気回数と移行率 I

グローブボックス換気回数 (回/h)	移行率 I
3	0.56
8	0.28
14	0.50

### 3.2.3 移行率 II

グローブボックスの換気回数を変化させた場合の移行率 II を表-3.2.3 及び図-3.2.4 に示す。なお、移行率 II 算出の考え方は前述の通りである。

これらのことから、移行率 II は換気回数 3 回のときが最も高く、次に14回、8 回の順となっていることが分かる。この原因については、前述の3.2.1 と同じと考えられる。

表-3.2.3 グローブボックスの換気回数と移行率 II

グローブボックス換気回数 (回/h)	移行率 II
3	$1.3 \times 10^{-5}$
8	$6.6 \times 10^{-6}$
14	$1.2 \times 10^{-5}$

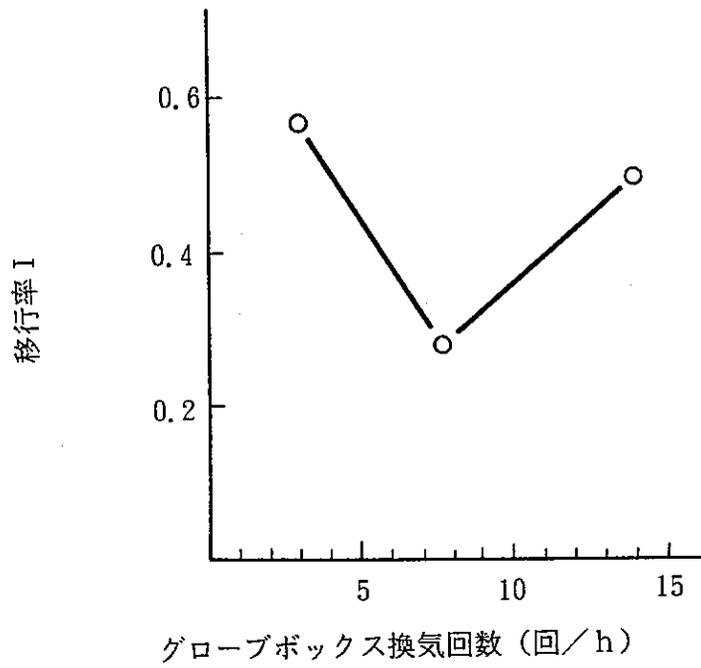


図-3.2.3 グローブボックス換気回数と移行率 I の関係

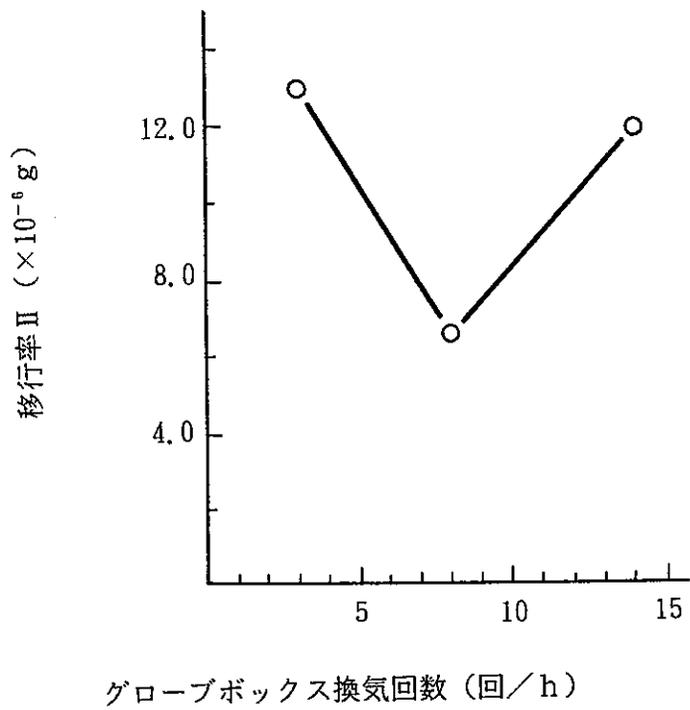


図-3.2.4 グローブボックス換気回数と移行率 II の関係

#### 4. ま と め

本試験により得られた結果をまとめて以下に示す。

- 1) 移行率Ⅰ〔発生したPuO<sub>2</sub>エアロゾルが排気口に移行する割合〕及び移行率Ⅱ〔粉末容器内のPuO<sub>2</sub>粉末重量に対してPuO<sub>2</sub>エアロゾルが排気口に移行する割合（通常呼ばれている移行率）〕は、粉末容器の開口面積が増加するにしたがって増加する。
- 2) 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Ⅰ及び移行率Ⅱは、換気回数の影響よりグローブボックス内の気流状態の影響を受ける傾向がある。
- 3) 本試験における移行率Ⅰ及び移行率Ⅱの最大は前者が0.56、後者が $1.3 \times 10^{-5}$ であった。  
なお、このときの試験条件はPuO<sub>2</sub>粉末重量：1490g、粉末攪拌時間：5分間、粉末容器開口面積100cm<sup>2</sup>、グローブボックス換気回数：3回/hであった。

次に上述の結果を基にMox燃料製造工程を想定し、考察を加えることにする。

##### (1) 第三開発室の粉末工程での移行率の推定

粉末工程におけるグローブボックス内設備は、PuO<sub>2</sub>粉末を取り扱う場合、クローズドで取り扱っているため、通常の使用状態では、PuO<sub>2</sub>粉末が設備外に舞い上がる開口は無い。したがって、取り扱いインベントリからの移行率Ⅱは限りなくゼロに近いものと考えられる。

しかし、実際には、グローブボックス内でPuO<sub>2</sub>粉末を長期間使用しているとPuO<sub>2</sub>粉末による汚染は避けられない。この原因は、以下の理由による。

設備から粉末容器にPuO<sub>2</sub>粉末を移し変える際には、密封状態で移し変えるが、移し終わった後もエアロゾルの舞上がりがある。このため実際には、舞い上がったエアロゾルを沈降させる目的で、5分間程度の沈降時間を設定し、その後粉末容器を設備から切り離している。しかし、微少な粒径のエアロゾルは、この時間では沈降せずに、切り離したときに粉末容器からグローブボックス内に浮遊する。

このメカニズムをエアロゾルの発生機構として、移行率を推定することにする。

## (前提条件)

- ・粉末容器に移し変える  $\text{PuO}_2$  重量は20kgとする。(実際は  $\text{Mox}$ で20kg)
- ・粉末容器に  $\text{PuO}_2$  粉末が入った状態で、粉末表面から開口部までの高さは20cmとする。  
(実際は、15cmであるが、安全側とした。)
- ・  $\text{PuO}_2$  粉末を設備から粉末容器に移し変えた直後に発生する  $\text{PuO}_2$  エアロゾルの重量は  $3.6 \times 10^{-2}$  gとする。(本試験での最大発生量)
- ・  $\text{PuO}_2$  粉末を設備から粉末容器に移し変えた直後に発生する  $\text{PuO}_2$  エアロゾル粒子の総個数は  $10^8$  個とする。これは、以下の式で求めた。

$$(\text{総個数}) = \frac{3.6 \times 10^{-2}}{\Sigma (\text{粒径毎の粒子の重量}) \times (\text{粒径毎の存在割合})}$$

なお、(粒径毎の存在割合)は本試験で用いた  $\text{PuO}_2$  粉末の粒度分布がそのままエアロゾルになったとする。

- ・沈降時間は5分間とする。
- ・移行率  $I$  は0.56とする。(本試験での最大)
- ・エアロゾル粒子個数の減少は、重力沈降のみと考える。(凝集による粒子個数の減少も考えられるが、今回は  $1 \text{ cm}^3$  当りの粒子個数が  $10^4$  程度となるので無視できる。)

## (計算)

粒子の重力沈降速度  $V_s$  は以下の式で求められる。

$$V_s = \frac{\rho_p g d_p \left( 1 + 2A \frac{\lambda}{d_p} \right)}{18 \eta}$$

$$A = A_0 + B \exp \left( \frac{C d_p}{2 \lambda} \right)$$

ここで、 $\rho_p$  : 粒子の密度 =  $11.46 \text{ (g/cm}^3\text{)}$

$g$  : 重力加速度 ( $\text{cm/sec}^2$ )

$d_p$  : 粒子の直径 (cm)

A : 補正係数、 $A_0=1.25$ 、 $B=0.44$ 、 $C=1.10$

$\eta$  : 空気の粘性係数 $=1.828 \times 10^{-4}$  (g/cm·sec) (23°C、1気圧)

$\lambda$  : 空気分子の平均自由行程 $=6.81 \times 10^{-6}$  (cm) (23°C、1気圧)

前述の式から、各々の粒径毎に重力沈降速度を求め、5分間での沈降距離を求めると、粒径が $1.4 \mu\text{m}$ を越えると20cmに達する。つまり、エアロゾル粒子は $\text{PuO}_2$ 粉末表面に沈降して、消滅してしまう。

このため、粒径が $1.4 \mu\text{m}$ 以下の粒子がグローブボックス内に浮遊すると想定する。ここで、 $1.4 \mu\text{m}$ 以下の粒子の存在個数はエアロゾル総個数の10%と仮定する。(粒径は $0.1 \sim 1.4 \mu\text{m}$ が平均に分布しているものとする。)

このことから、グローブボックス内に浮遊する $\text{PuO}_2$ 重量は、以下の式で求められる。

(エアロゾルの総個数)  $\times$   $\Sigma$  (粒径毎の浮遊する割合)  $\times$  (粒子の重量)

なお、(粒径毎の浮遊する割合)は、粒径毎の沈降距離と20cmの比率からを計算する。

この結果は、 $1.3 \times 10^{-5}$  (g) となる。

これにより浮遊率は  $(1.3 \times 10^{-5}) / (20 \times 10^3) = 6.5 \times 10^{-10}$

となる。

従って、最終的に移行率IIは、これに移行率Iを乗じて、

$$6.5 \times 10^{-10} \times 0.56 = 3.6 \times 10^{-10} \text{ となる。}$$

また、これを実際の操業に合わせて年間の粉末工程での移行率を求めると次のようになる。

$$\begin{aligned} & 10 \text{ (工程)} \times 2 \text{ (回/日・工程)} \times 2 \text{ (容器/回)} \times 200 \text{ (日/年)} \times 3.6 \times 10^{-10} \\ & = 2.9 \times 10^{-6} \end{aligned}$$

この値は、以前に行われた第二開発室を対象とした施設全体の移行率調査結果 $1.07 \times 10^{-5}$ と比較すると、1桁小さくなっている。また、現在用いている移行率 $10^{-5}$ よりも小さくなっている。

以上のことから、現在用いている移行率の値は安全側の値であるといえるが、この値を変更するためには、実工程での移行率の試験を行い、多くのデータの蓄積が必要と考えられる。

(2) グローブボックスの内装設備の有無による影響

換気回数を変化させた場合の試験において、換気回数8回/hのときに気流によりエアロゾルが天井面に衝突し、付着した結果、移行率が最も小さくなるという結果から、衝突によるエアロゾルの付着は移行率を著しく低減させる効果があるといえる。

このことを実際のグローブボックスに当てはめて考えると、内装設備が設置されていた場合は、気流の状態によりエアロゾルは内装設備に衝突し、付着して移行率は低減すると推定される。

特に、最近では、自動化を前提にした内装設備が多いため、その大きさは大きくなる傾向があるので、衝突による移行率の低減効果はますます大きくなると考えられる。

(3) グローブボックスの大きさによる影響

エアロゾルの発生源から排気口までの距離は、移行率に影響を与えられられる。本試験では、移行率Iは最大で0.56であったが、グローブボックスが大きくなった場合は、この値は小さくなると推定される。これは、移行する距離が長くなるとその移行過程でエアロゾルが重力沈降等によりグローブボックス床面等に沈着して全体の移行量が減少すると考えられるためである。

(参考文献)

1. 高橋幹二、“基礎エアロゾル工学”、1972、養賢堂
2. 松井浩、吉田芳和、“排気系におけるエアロゾルサンプリング条件”、日本原子力学会誌、Vol.15、No.3(1973))
3. 山本清明 等、“プルトニウム燃料第二開発室におけるプルトニウム移行率調査結果について”、動燃技術資料、1987、PNC SN8410 87-06