

JAERI - M
90-059

NUCEF臨界実験のための
プルトニウム溶液燃料調製試験装置の製作

1990年3月

桜井 聡・平田 勝・阿見 則男・白田 重和
阿部 治郎・若松 幸雄・館盛 勝一・福島 奨
栗原 正義・小林 岩夫

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。
入手の問合せ先は、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村
和子、イ申町）に連絡してください。このほか、財団法人原子力広済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布も行なわれています。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 出田軽印刷所

NUCEF 臨界実験のためのプルトニウム溶液燃料調製試験装置の製作

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

桜井 聡・平田 勝⁺・阿見 則男・日田 重和
阿部 治郎⁺・若松 幸雄・館盛 勝一・福島 奨⁺
栗原 正義⁺・小林 岩夫

(1990年2月22日受理)

燃料サイクル安全工学研究施設 (NUCEF) の原子が関連施設で使用するプルトニウム硝酸溶液燃料 (Pu: 60 kg) の調製方法を確証するため、「酸化プルトニウム溶解性モックアップ試験」が計画された。この試験は、電解酸化法による 100 g 規模の酸化プルトニウムの溶解、プルトニウム精製のための原子価調整、ならびにプルトニウムに含まれる²⁴¹Am および溶解時に添加した銀の除去を目的としたプルトニウム精製からなる。本試験を実施するために、溶解、原子価調整および精製装置、ならびにこれらの装置を格納し、プルトニウム溶液を取扱うためのグローブボックスを大洗研究所燃料研究棟に製作・整備した。本報告では、これらの装置およびグローブボックスの設計条件、仕様および性能試験について述べる。

本試験装置およびグローブボックスの製作は、昭和62年度電源特別会計による科学技術庁からの受託研究「昭和62年度再処理施設臨界安全性実証試験」の一部である核燃料取扱設備等モックアップ試験の一環として実施されたものである。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 大洗研究所管理部

Mock-up Apparatus for Preparation of Plutonium Fuel Solution
for Criticality Experiments at NUCEF

Satoshi SAKURAI, Masaru HIRATA⁺, Norio AMI, Shigekazu USUDA
Jiro ABE⁺, Sachio WAKAMATSU, Shoichi TACHIMORI
Susumu FUKUSHIMA⁺, Masayoshi KURIHARA⁺ and Iwao KOBAYASHI

Division of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 22, 1990)

The mock-up test program for dissolution of plutonium dioxide was planned to determine the preparation method of plutonium nitrate solution for criticality experiments at the Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility (NUCEF). The program consists of dissolution of plutonium dioxide by electrolytic oxidation method, valence adjustment and extractive purification of plutonium from ^{241}Am and silver.

This report describes the design conditions, specifications and performance of the experimental apparatus and the glove box.

Keywords: Mock-up Apparatus, Plutonium Fuel Solution, Dissolution, Valence Adjustment, Purification, Glove Box, NUCEF, Design Condition, Specification, Performance

The mock-up apparatus were made under the Research Program of F.Y. 1987 for the Criticality Safety of the Reprocessing Plants, entrusted by the Science and Technology Agency, Japan.

+ Department of Administrative Service, Oarai Research Establishment, JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. 酸化プルトニウム溶解装置	2
2.1 設計条件	2
2.2 仕様と製作	2
2.3 性能試験	3
3. 原子価調整装置	4
3.1 設計条件	4
3.2 仕様と製作	4
3.3 性能試験	5
4. プルトニウム精製装置	5
4.1 設計条件	5
4.2 仕様と製作	6
4.3 性能試験	6
5. グローブボックス	7
5.1 設計条件	7
5.2 仕様と製作	7
5.2.1 グローブボックス本体, 架台および遮蔽体	7
5.2.2 給排気系	8
5.2.3 警報装置系	8
5.2.4 外部との取合い	9
5.3 性能試験	10
6. あとがき	10
謝 辞	11
参考文献	11
付録 分析機器の整備	28
A. 光ファイバー型吸光度計	28
B. γ 線放射能測定装置	29
C. 滴定装置	30

Contents

1. Preface	1
2. Equipment for dissolution of plutonium dioxide	2
2.1 Design conditions	2
2.2 Specifications	2
2.3 Performance tests	3
3. Equipment for plutonium valence adjustment	4
3.1 Design conditions	4
3.2 Specifications	4
3.3 Performance tests	5
4. Equipment for plutonium purification	5
4.1 Design conditions	5
4.2 Specifications	6
4.3 Performance tests	6
5. Glove box	7
5.1 Design conditions	7
5.2 Specifications	7
5.2.1 Glove box, supports and shielding materials	7
5.2.2 Ventilation system	8
5.2.3 Safety alarm system	8
5.2.4 Inlet connections	9
5.3 Performance tests	10
6. Afterword	10
Acknowledgements	11
References	11
Appendix Installation of analytical instruments	28
A. Fiber type photospectrometer	28
B. γ -ray measurement system	29
C. Automatic titrator	30

1. はじめに

日本原子力研究所東海研究所に建設が進められている燃料サイクル安全工学研究施設（NUCEF）では、主に臨界実験装置において、合計約 60 kg のプルトニウム(Pu)を含有する硝酸溶液燃料を使用する予定である¹⁾。計画では、このPu硝酸溶液燃料は、NUCEFに整備される核燃料取扱設備で、プルトニウムとウランの混合酸化物を溶解、NO_x ガスの吹込みによりPu原子価を4価に調整、リン酸トリブチル（TBP）を用いた抽出法により精製したのち、蒸発濃縮して調製する。

著者らはPu硝酸溶液燃料の調製法について、硝酸に難溶性²⁾の酸化プルトニウム（PuO₂）を原料として使用する場合を想定し、その溶解法を中心に検討してきた。文献調査の結果から、溶解時に Ag⁺ を添加し、これを電解反応により強力な酸化剤(Ag²⁺)に酸化し、その酸化作用によりPuO₂を溶解する電解酸化法³⁾が最も確実かつ安全であり、しかも精製設備および廃棄物処理設備等での腐食などの問題も少ないという結論に達した。本溶解法をNUCEFに適用し、Pu硝酸溶液燃料の調製方法を確証することを目的に、昭和61年度より「再処理施設臨界安全性実証試験」の核燃料取扱設備等モックアップ試験の1項目として「酸化プルトニウム溶解性モックアップ試験」を開始した。すでに、10 g規模のPuO₂の溶解試験を実施し、本溶解法が工学的規模にスケールアップ可能であるとの見通しを得ている⁴⁾。

しかし本溶解法を、NUCEFに想定されている溶解処理能力 Pu 1 kg/日までスケールアップするには、NUCEFの設計条件を考慮した溶解槽を用いて、より大規模の試験を行い、装置設計上のプロセスデータを得る必要がある。一方、得られた溶解液中の6価のPu(PuO₂²⁺)をTBP抽出法による精製に適した4価のPu(Pu⁴⁺)に調整する方法としては、NO_xガス吹込み法が有効であるとされている⁵⁾。しかし、工程条件などについて詳細な報告は公開されていないため、その有効性を確認し、最適条件を求める必要がある。さらにNUCEF精製工程では、放射線管理上および臨界実験の精度上の要求から²⁴¹Amの除染係数として10³を目標としてフローシートを決定しているが、その性能を実験的に評価する必要がある。

これらの試験を行うため、NUCEFに設置される各機器および工程条件を模擬して、100 g 規模のPuO₂溶解、Pu原子価調整およびPu精製の各試験のための装置を製作した。また、これらの試験装置を格納するため、大洗研究所燃料研究棟に新たにグローブボックスを整備した。

本報告では、これらの試験装置について、NUCEFに設置される機器との比較を重点に報告する。またグローブボックスはPu取扱量(100 g)が多く、硝酸雰囲気となるなど苛酷な条件で使用され、かつ多目的な利用のため外部に設置した機器との取合い部が多いという特色を有しているので、製作上とくに注意をはらった点について、設計条件、仕様および性能試験としてまとめた。さらに、Puおよび²⁴¹Am等の分析のために整備した機器について付録にまとめた。

2. 酸化プルトニウム溶解装置

2.1 設計条件

NUCEFの前処理設備の現在の設計では、沸騰硝酸中で1日あたり〔Pu 1 kg+ U 1.5 kg〕を溶解し、Pu 80 g/ℓ、U 120 g/ℓ、HNO₃ 4.05 M の溶解液 12.7 ℓを得る計画である。溶解時間は、混合酸化物が粉末である場合には2時間を想定している。また溶解槽の設計条件として、槽直径はPuO₂-H₂O系の臨界制限値6.4 cm以下である。電解酸化法によるPuO₂溶解をNUCEFに適用する際には、これらの条件のうちPuの処理容量が重要である。

本試験で使用する溶解槽の構造は、その処理容量のNUCEF規模までのスケールアップが、本溶解槽の高さを大きくし、液量を増加させることにより容易に対応できるものとする。さらに溶解槽の設計にあたっては、NUCEFの精製設備との整合性を確保するため、上記条件のうち以下を考慮する。すなわち、溶解後のPuの原子価と濃度および硝酸濃度の調整を容易にするため、溶解液中のPu濃度は100 g/ℓ、硝酸濃度は4 Mとする。溶解時間は比較的短時間で終了するために2時間程度とする。一方、溶解槽直径にPuO₂-H₂O系の制限値 6.4 cmを採用する場合、電解酸化法を採用した溶解槽の設計自体が非常に困難になるので、これを採用しない。NUCEFに設置する溶解槽では、個別に臨界安全解析を行う等により未臨界度を確保することとなる。

さらに、溶解装置の製作にあたっては、上記の他に以下を考慮した。試験で使用するPuの量は、グローブボックスのPu取扱制限値 100 g以下とする。溶解液の温度を一定に保つ。溶解液の採取を可能とする。非常に酸化性の強いAg²⁺に対して、耐腐食性を有する材料を使用する。溶解槽は、耐食性のほかに視認性も考慮する。電気分解により陰極から発生する水素ガスおよび一酸化窒素の除去を考慮する。被曝の低減化、溶液の漏洩および機器の転倒防止などの安全対策を施す。

2.2 仕様と製作

PuO₂溶解装置は図1に示すように溶解槽、定電流電源、恒温槽およびガス洗浄器で構成した。各構成機器の個別仕様を以下に示す。

(1) 溶解槽

溶解槽の構造を図2および写真1に示す。槽内径は110 mmとした。Pu取扱量と目的濃度から、容量を1 ℓ、槽高さを170 mmとした。100 gのPuを2時間程度で溶解することから、電解電流は最大10 Aとした。電解電流、銀濃度0.05 M、および電極に使用する白金網の形状(φ0.12 mm、55メッシュ)の条件で、高いAg²⁺生成効率を得ること³⁾を考慮して、陽極の形状は円筒形(φ100×H100 mm)に決定した。陰極液量は、多孔質のアルミナ製隔膜の寸法(φ36×H150 mm)の制限から80 mlである。これに8 M HNO₃を入れ、10 Aで2時間の電解を行った後のHNO₃濃度(約4 M)においても、電流密度が水素ガスの発生する条件(2.5 A/cm²)⁴⁾を超えないように陰極表面積を確保するため、陰極形状は円筒

形(φ16×H85 mm)とした。容器はバイレックスガラス製で、恒温水を循環させるジャケットを設けた。また、槽上面にはサンプリング孔と熱電対の挿入孔を設けた。液温の測定にはクロメル-アルメル熱電対を使用した。

(2) 定電流電源

電解電流は、グローブボックス外部に設置した定電圧定電流電源(北斗電工(株)製、HA-320、最大出力電流±20A)から、電流導入端子(5.2.4(3)参照)を介してグローブボックス内の溶解槽に供給した。

(3) 付加装置

溶解槽のジャケット部に供給する恒温水の温度は、冷却機(小林理化器械(株)製 KDT-102、温度範囲-5~40°C)とヒータ(HETO製、ポンプ内蔵型 04PT623、温度範囲 0~100°C、制御精度±0.05°C)により制御する。恒温槽はステンレス鋼で、内部に断熱材を含む二重構造として、保温性を確保した。

溶解液の攪拌には、大トルク型マグネチックスターラ(井内盛栄堂製、HS-4SP、回転数 50 ~ 1400 rpm)を使用し、回転子は棒型を用いた。

被曝の低減化を図るため、溶解槽前面に含鉛ガラス(Pb 2 mm相当)を設置した。また、転倒防止のため、スタンドを組立て、溶解槽をこれに固定した。さらに溶液が漏洩した場合の汚染拡大を防止するため、溶解槽および攪拌機はバットの中に設置した。

(4) ガス洗浄系

溶解槽陰極部から発生する一酸化窒素(NO)は、空気により二酸化窒素(NO₂)に酸化した後、直列に接続したガラスフィルタ付ガス洗瓶3基とブロウ(イワキ製、ダイヤフラムエアポンプ APO32、最大流量3 ℓ/min)によりグローブボックス内に排気するようにした。第1段目のガス洗瓶に NO₂の吸収のため水酸化ナトリウム溶液を、第2段目のガス洗瓶にガス洗浄のため純水をそれぞれ入れた。ブロウ保護のためのミスト除去を目的として、第3段目に空のガス洗瓶を設けた。配管には塩化ビニール製のチューブを使用した。

2.3 性能試験

溶解装置の基本的な性能試験は、酸化セリウム粉末を用いたコールド試験によって行った。定電流を通じることにより溶解液は褐色を呈し、Ag²⁺が生成することを確認した。また攪拌機により、酸化セリウム粉末が溶解液に均一に攪拌された。溶解液の温度は、恒温槽から恒温水を循環させることで一定に保つことが可能であった。陰極から発生するNOは、空気によりNO₂に酸化され、2基のガス洗瓶にほぼ完全に吸収された。

3. 原子価調整装置

3.1 設計条件

NUCEFにおいては、調整設備の戻液受槽(容量130 ℓ)でNO_x ガスの吹込みを行う。ここで、参考となる基本フローシートは蒸発缶で濃縮されたPu溶液中のPuの原子価を4価に調整するもので、室温においてPu 50 g/ℓ、U 200 g/ℓ、HNO₃ 6 M の溶液120 ℓに対して、NO_xガス吹込法により5時間での処理を想定している。NO_xガスの組成はNO、NO₂、N₂ 各33%、流量は 1.7 Nm³/h、NO_xガス発生装置の能力は7.27 Nm³/h以上である。

電解酸化法で得られる溶解液の原子価調整を行う場合の液量は、溶解槽の洗浄液による希釈を考慮すると 20 ℓと想定される。このことから、本試験のために製作する原子価調整槽では、溶解液量に対する NO₂ガス流量の比が上記条件範囲を含むように NO₂ガスの吹込量を可変とする。溶解試験で得られるPu溶液 1 ℓを用いて10回程程度の試験を行うことから、原子価調整槽の容量は100 mlとする。原子価調整の最適条件を求めるため、液温の制御を可能とする。そのほか、装置の設計においては、耐腐食性、被曝の低減化など溶解装置と同様な考慮をした。

3.2 仕様と製作

原子価調整装置は図3に示すように、原子価調整槽、NO₂ ガス供給系、および恒温槽等で構成した各構成機器の個別仕様は以下の通りである。

(1) 原子価調整槽

原子価調整槽の構造を図4および写真2に示す。NO₂ ガスの有効利用を図るため、試験液の深さは約50 mmとし、排気系へのミストの飛散を防ぐため、液上部の空間は約100 mmとした。この結果、槽の寸法は内径60 mm、高さ150 mmである。NO₂ ガスの供給は、試験液中での分散性を良くするため、ガラスフィルタを介して行う。容器はバイレックスガラス製で、液温を一定に保つためにジャケットを設け、これに恒温水を循環させることとした。また槽上部には、サンプリング孔および温度測定用熱電対の挿入孔を設けた。

(2) 二酸化窒素ガス供給系

ガスポンペの四酸化二窒素(N₂O₄)を50℃に加温して NO₂に分解し、これを流量計およびフィルタを経由して原子価調整槽に供給することとした。ガス流量の調整は面積式流量計(日本フローセル製、0.1~1 Nℓ/min)と調節弁で行った。NO₂ に対する安定性を考慮し、テフロン膜を用いたフィルタ(日本ミリポア社製、WGFG02PS1)を使用した。グローブボックス外のSUS316配管は、NO₂の凝縮を防止するためにテープヒータを巻いて加温した。NO₂ に対する耐食性を考慮し、パッキング類はバイトンを使用した。グローブボックス内の配管には塩化ビニールチューブを用いた。

(3) その他

付加装置およびガス洗浄系は、PuO₂溶解装置と共用とした。攪拌機の回転子は、NO₂ガスの分散性を良くするために4枚羽根付円盤型とした。

3.3 性能試験

原子価調整槽に入れた所定量の純水にNO₂ガスを吹込み、NO₂ガスが試験液中に分散して供給されること、およびその流量が安定していることを確認した。恒温水を槽のジャケット部に循環させることにより、試験液の温度は一定に保たれた。また原子価調整槽上部の過剰なNO₂ガス（赤褐色）は、ガス洗浄系により回収され、排気されるガスは無色であった。

なお、コールド試験を通じて明らかになったNO₂ガスに対する各種材料の安定性を概説すれば、テフロン膜のフィルタは、NO₂ガスを150時間以上通じて、目詰りなどの問題が生ぜず健全である。一方、一般に空気導入系に使用されるフィルタ（日本ミリポア社製、WGGB 06WS1）のポリスルホン酸製の膜は、NO₂ガスに対して耐食性がない。同様にナイロンも全く耐食性がなく、ネオプレンは長期の接触により著しい軟化、塩化ビニルは着色および変質、ペークライトは脆化、バイトンは硬化、等がそれぞれ認められた。

4. プルトニウム精製装置

4.1 設計条件

NUCEFの精製設備では、抽出9段、洗浄7段のミキサセトラ（ミキサ容積0.68ℓ、セトラ容積2.86ℓ）を用いてTBP抽出法により、アメリカウムおよび核分裂生成物などを除去する計画である。図5に示した基本フローシートは、臨界実験に使用したPu-U混合硝酸溶液燃料の精製を行うもので、1日あたり8時間の運転でPu 1 kg、U 4 kgが処理可能である。Pu単味の溶液を精製する場合は、これからUを除いたフローシートにより行う。（電解酸化法を採用した場合もPu溶液の精製は同様に行う。）このフローシートの妥当性の検証と必要なミキサセトラの性能の評価を小型のミキサセトラを用いた試験により行うには、工程の運転条件がNUCEFのそれを模擬できるものでなければならない。ミキサ部攪拌効率の比較は現時点ではできないので両方ともほぼ同一と仮定した。また、ミキサセトラの性能に与える影響がもっとも大きいものとして、ミキサセトラへの各供給液の組成および流量比が同一であり、抽出器内における有機相および水相の滞留時間がNUCEF精製工程と同程度となるように考慮した。すなわち、NUCEFの抽出-洗浄バンクのセトラ部における滞留時間は、第1～9段（Pu抽出部）における水相が7.3分、有機相が9.3分、第10～16段（洗浄部）における水相が31.7分、有機相が9.3分である。処理量と各供給流量比率等をもとに決定した試験フローシートを図5に示す。

その他に次の点を考慮した。すなわち、使用後の解体廃棄および必要に応じた各バンクの段数の変更を可能とするために、一段のミキサセトラごとに分離できる構造とする。攪拌器モータ及び電気配線接続部は硝酸雰囲気での耐腐食性を考慮する。グローブ操作上の安全のため、装置の端部は面取り

をする。有機溶媒(30%TBP-n-dodecane)と硝酸(3 M)に耐性を有する材質とし、特に本体は、内部が観察できるように透明な材質とする。ミキサセトラ間の溶液の移動はポンプ等を使用せず重力によるものとする。溶液の漏洩および汚染の拡大防止、ならびに機器の転倒防止の対策を施す。

4.2 仕様と製作

ミキサセトラでの有機相および水相の滞留時間をNUCEF精製設備と同程度とするため、セトラ容積 64 mL、ミキサ容積 11 mLとした。ミキサセトラ一単位の概略を図6に示す。攪拌器用のモータは、各段に1基ずつ設け、2基の駆動用直流電源(抽出-洗浄バンクと還元-逆抽出バンクに1系統、2台の希釈剤洗浄器にもう1系統を充てる)により、バンク毎の攪拌機の回転数を制御することとした。また、故障したモータを容易に交換できるように、モータ部の脱着はワンタッチ方式とし、腐食防止のためアクリル製カバーをつけた。セトラ上面には開口を設け、サンプリングのほか、吸光度測定用プローブ(付録A.(4)参照)、温度センサ等を必要に応じて挿入可能とした。セトラ部の有機相と水相の界面位置の調節は、側面に螺旋状のスリットを切ったテフロン製の堰を回転させ、堰からオーバーフローする水相の高さを調整することで行うこととした。堰上部には、堰の引抜き、回転を容易に行うための治具に合わせた溝と切り欠きを設けた。また、堰には、その下部の水相のみを取り出せるように軸に添って穴をあけた。ミキサ部の残液の抜取りのため、有機相のオーバーフロー流路上端は、ミキサセトラ本体上面まで貫通とした。ミキサセトラ本体には、左右に各一つ、下部に一つの保温用温水流路を設けた。

ミキサセトラの構成は、10段を有する抽出-洗浄バンクと、8段を有する還元-逆抽出バンク、および3段からなる2系統の希釈剤洗浄器とした。必要な段数を組合せた後、ステンレス鋼製のタイロッド4本で固定した。各段の接合面の水相および有機相流路からの漏洩防止のため、OリングはHNO₃と有機溶媒に耐性を持つニトリルゴム製とした。また、給液ユニットを挿入することで、任意の位置に溶液の供給を可能とした(図7)。Puフィード液、抽出溶媒および洗浄用希釈剤の供給は、グローブボックス内に設置した4基の電磁定量ポンプ(イワキ製、EX-A10SH-100S)によって行った。スクラブ液および逆抽出液は、グローブボックス外に設置した同機種のポンプから、液体導入系(5.2.4(4)参照)を介して供給した。

ミキサセトラは図8および写真3に示すように階段状の架台に設置し、重力により各バンク間の液体の円滑な移動を容易とするため各段の間隔は可変とした。ミキサセトラおよび架台が転倒しないことは解析により確認し、架台は十分な剪断応力を有するスタッドボルト(M6)4本でグローブボックス底面に固定した。さらに架台の各段上面には、滑り防止のためゴムマットを敷き、その上に万一の汚染拡大防止用のアクリル製トレイを設けた。

4.3 性能試験

グローブボックス内に設置する前に、使用状態に組立て、水と30% TBP-n-dodecane を用いてコールド試験を実施し、有機相と水相の対向流が得られ、攪拌・分離が行われることを確認した。また、その流量は、NUCEF精製工程の条件に対して、十分な余裕があった。さらに、水相と有機相を入れたまま24時間放置し、接続部等から洩れが無かった。

5. グローブボックス

5.1 設計条件

HNO₃溶液中でのPuO₂の溶解、NO₂ ガス吹込法によるPuの原子価調整、およびミキサセトラによるPu精製を行うため、グローブボックス内部は相当苛酷な腐食性雰囲気となる可能性がある。したがって、本グローブボックスの製作にあたっては、耐食性に優れた材料を使用する。

また、本グローブボックスの設置場所は燃料研究棟調製室(101号室)とし、グローブボックスの排気系は既存のダクトに接続する。調製室内の配置および排気ダクトとの関係を図9に示す。

さらに、グローブボックスの性能は、施設検査等で要求される以下の7項目を満足しうるものとする。

- 1) 負圧維持：グローブボックス内圧力は、周辺の作業環境(設置する室内の気圧)に対して、常時 -30 ± 20 mmAq を維持すること。また、負圧破壊および超過警報の設定圧力はそれぞれ -5 および -55 mmAq であること。
- 2) 気密性能：グローブボックスの気密性は、漏洩率 0.1 vol%/h 以下であること。
- 3) 耐圧強度：グローブボックスの耐圧強度は ± 150 mmAq であること。これは推定される最大負圧である排気ダクト圧力(約 -130 mmAq)に耐えうる強度であるためである。
- 4) 耐震安全性：内装機器を設置したグローブボックス全体が水平地震力 0.36 に耐えうる構造強度を有すること。
- 5) 換気回数：排気風量が、グローブボックスの換気回数として10回/h以上であること。
- 6) 遮蔽性能：グローブボックス周辺作業位置での線量当量率が1時間あたり $20 \mu\text{Sv}$ を超えないこと(これは、核燃料物質の使用等に関する規則第2条の5第10項に定められた遮蔽性能、「人が常時立ち入る場所における外部放射線の線量当量を一週間につき1ミリシーベルト以下とする能力を有する構造であること。」を満足するための基準である)。従来のグローブボックスのでは、精製後400日を経過したPu(精製直後の同位体組成(重量%)は、²³⁹Pu 1.0、²³⁹Pu 75.0、²⁴⁰Pu 18.5、²⁴¹Pu 5.0および²⁴²Pu 0.5とする)の使用を考慮しているのに対し、本グローブボックスでは、精製後²⁴¹Puの1半減期(14.4年)を経過したPu 100 gを1回の試験で取扱うこととし、外部被曝の解析では従来のグローブボックス以上に留意する。
- 7) グローブボックス内温度：常時60°Cを超えないように、グローブボックス内温度を管理すること。

5.2 仕様と製作

5.2.1 グローブボックス本体、架台および遮蔽体

図10および写真4にグローブボックスの概要および外観を示す。硝酸酸性雰囲気下で使用するため、耐腐食性に優れたステンレス鋼(SUS304L、厚さ 6 mm)の板材を用いて、その本体(幅2,250 mm×高さ

1,000 mm×奥行1,000 mm)を製作した。

グローブボックスは両面操作型とし、窓面は厚さ 10 mmの透明アクリル樹脂製で、各面10個のグローブポート(PNC-II型、直径8インチの黒色ベークライト樹脂製)を取りつけた。グローブボックス側面には内径300 mmのSUS304製の物品搬出入口を、また、他方の側面には隣接するグローブボックスとの連結ポート(SUS304製、内径300 mm)を設けた。これらのポートの内蓋は、カウンタバランス付SUS304製とし、閉時には気密が得られる構造とした。

グローブボックスを取り付ける架台(高さ900 mm)は、等辺山形鋼(SS41製、幅90 mm×厚さ10 mm)による溶接組立構造とした。耐震設計上十分な安全裕度を有するよう、架台とグローブボックス本体は、M8のスタッドボルト16本を用いて固定した。さらに、架台と建屋床面は、M10のアンカーボルト32本で固定した(図11参照)。

使用する最も厳しい条件について外部被曝線量を評価した結果を考慮し、設計条件を満足するために、グローブボックス窓面の遮蔽体には厚さ 50 mmの透明含鉛アクリル樹脂(鉛当量2 mm、協和ガス化学株式会社(現クラレ株式会社)製)を使用した。これは相当な重量(片面一枚あたり約100 kg)であるため、グローブボックス本体に固定して架台のみで支持することは行わず、衝立型の遮蔽材として、グローブボックス本体より分離して設置することで十分な耐震安全性を確保した。

5.2.2 給排気系

図12に給排気系統図を示す。給気系はSUS304製3インチ配管を使用した。給気口部に設置した電動三方弁(SUS304製、口径3インチ)により、給気を空気とアルゴンガスに切換えることが可能である。電動三方弁を介して供給される給気は、300 mm角のアスベストセパレータ付のHEPAフィルタ(定格風量 3.85 m/h、捕集効率 99.97%以上)を通過後、グローブボックス内に設けたディストリビュータを通して供給した。

電動三方弁は、手動切替と自動切替の選択が可能とした。自動切替を選択時は、グローブボックス内温度が60°Cを超えたとき、グローブボックス内に設置した温度上昇検出素子でこれを検知し、消火のために給気を空気から自動的にアルゴンガスに切換わる。また、給気がアルゴンガスの際には、グローブボックスの負圧が -10 mmAq 以上になると、アルゴンガス供給系配管に設けた電磁弁が閉じて負圧破壊を防止する。この圧力調節は、別に設置する接点付微圧指示計によって行う。

排気系は、給気側と同様に、SUS304製3インチ配管と、300 mm角のアスベストセパレータ付の高性能エア(HEPA)フィルタを使用した。グローブボックスまたはダクトの急激な負圧変動を緩和するため、排気系には背圧ダンパを設けた。

5.2.3 警報装置系

グローブボックスに発生した下記の異常は、現場で警報と表示灯で発報すると同時に、燃料研究棟の集中監視盤へ発信する。

1)グローブボックス負圧異常：グローブボックス負圧が破壊(-5 mmAq 以上)および超過(-55 mmAq 以下)した場合に、ステンレス鋼製ダイヤフラム式上下限接点付微圧指示計(目盛範囲 $-150 \sim +$

50 mmAq) により検出し、警報を発信する。これらの警報は自己保持と自動復帰の選択を可能とし、グローブボックス使用時は前者に、無人時は後者に設定する。

- 2) グローブボックス内温度異常：グローブボックス内温度が60°Cを超えたときに、グローブボックス天井部に設置し接点接触式の温度上昇検出素子により検出し、警報を発信すると同時にグローブボックスへの給気を空気からアルゴンガスに切換える。

5.2.4 外部との取合い

本グローブボックスは、多目的な利用のため、吸光光度計用ファイバ、電流、液体などのグローブボックス内への導入部分が多いことと、 γ 線測定窓の設置に特徴がある。これらについて以下に述べる。

- 1) 光ファイバ導入系：吸光光度計の光ファイバをグローブボックス内に導入するため、天井部に直径36 mmの穴を設け、エポキシ樹脂で光ファイバをフランジに封着することで気密性を確保した光ファイバ導入用フランジ(図13参照)2式を設置した。フランジとグローブボックスの気密は、バイトン製パッキンにより確保した。
- 2) γ 線測定窓：低エネルギーの γ 線を測定するため、厚さ5 mm、直径80 mmの亚克力樹脂製の測定窓をグローブボックスの物品搬出入口側に設けた(図14参照)。使用しない時には、グローブボックス内外に、Oリングにより固定するSUS304製の蓋と、ネジ込み式のSUS304製の蓋をそれぞれ取り付けられる構造とした。
- 3) 電流導入系：電気信号、動力用交流および直流電流をグローブボックス内に導入するため、フランジ型貫通電流導入端子3式を連結ポートが設置されている側面に設置した。これらに使用した導線の種類および数は、 ϕ 0.5 mmの耐熱ビニル電線31本(電気信号)、600V MLFC 3.5 mm² 12本(動力用交流)、および600V MLFC 5.5 mm² 11本(直流電流)である。フランジは、導線の撚りを戻した部分をエポキシ樹脂でフランジに封着することで気密性を確保する構造である。
- 4) 液体導入系：Pu精製実験に使用する試薬類を導入するため、SUS304製配管、グローブボックス内側の逆止弁、外側のニードルバルブからなる液体導入配管3式を、連結ポートが設置されている側面に設けた。
- 5) 気体導入系：原子価調整試験等に使用するため、物品搬出入口側に、気体導入系3式(窒素(N₂)ガス用1式、NO₂ガス用2式)を設けた。グローブボックス貫通部はSUS316製の1/4インチ配管を溶接し、グローブボックス内外にニードルバルブ、外側バルブの上流側にガスライン用HEPAフィルタおよび流量計を設けた。フィルタは、万一の逆流による気体導入系の汚染拡大を防止するため、粒径0.3 μ mの微粒子に対する捕集効率99.97%以上とする。N₂ガス用フィルタには日本ミリポア社製、WGGB06WS1を、NO₂用フィルタには同社製、WGFG02PS1をそれぞれ使用した(3.2(2)参照)。
- 6) 予備導入口：グローブボックス内外面に盲フランジを取りつけたSUS304製の2インチ配管を、グローブボックス左右側面に各3式を設けた。

5.3 性能試験

グローブボックスの製作にあたり、工場製作過程および現場設置時に外観検査、寸法検査を実施し、品質管理には万全を尽くした。グローブボックスの閉じ込めに直接関係する構造部については、工場において材料とミルシートとの照合確認を行い、溶接部については液体浸透探傷試験法により溶接欠陥がないことを確認した。科学技術庁の施設検査の対象である項目のうち、とくに重要であるものを以下に述べる。

(1) 気密試験

グローブボックスの漏洩率は大気圧比較法で測定した。これは、グローブボックス内圧力を -60 mmAq以下とした後に給排気系を遮断し、負圧の変化を測定し、得られた値について測定時の温度および大気圧の変化を補正して漏洩率を算出する方法である。温度変化はグローブボックス内に設置したベックマン温度計(読取り精度 0.1°C)を用いて、室内の大気圧はフォルタン型気圧計を用いてそれぞれ測定した。一時間にわたって測定した結果、漏洩率は 0.013 vol%/hであり、原子力安全局の施設検査の基準値 0.1 vol%/hを十分満足した。また、原子力安全局の施設検査には含まれていないが、自主検査として実施したフロンガスを用いたハロゲンリーク試験(検出限界 1×10^{-4} atm.cc/sec)による耐圧漏洩試験では、 150 mmAqの加圧条件下で漏洩は検出されなかった。

(2) 警報試験

負圧異常警報は設定値ですみやかに警報を発信し、現場および燃料研究棟集中監視盤での警報吹鳴および表示灯点灯を確認した。

温度上昇警報試験では、 57°C の温風を温度検出器に吹きつけ、警報作動までの時間を測定した。その結果、 18 秒で警報が作動し、三方弁が作動して給気が空気からアルゴンに切換えられることを確認した。

6. あとがき

装置の設計・製作、許認可申請、および性能検査等を予定期間内に完了することは、かなり厳しい日程であったが、製作した試験装置ならびにグローブボックスの性能は満足できるものであった。

これらの作業において特に注意した点は、1)大量(100 g)のPuを取扱うため被曝の低減化、Pu溶液容器の転倒防止、漏洩防止等の安全対策、2)強酸(HNO_3)、 NO_2 ガス等の使用のため、装置、グローブボックスのみならず、配管、フィルタ、Oリング等の材質についても耐食性を配慮した選択、3)種々の試験、分析を行うために、グローブボックスの取合部が多くなり、それらの整合性と気密性に対する注意、4)グローブボックスの製作にあたっては、その表面線量率を低くするため、厚い遮蔽体(含鉛アクリル 50 mm)を使用したこと、さらに、5)耐震設計を満足するための衝立型遮蔽体の採用である。

なお、これらの装置を用いた試験の成果は別の機会に報告する予定である。

謝 辞

以上の作業は東海研究所燃料安全工学部と大洗研究所管理部との研究協力の体制で行った。大久保義春大洗研管理部長、平野見明前燃料安全工学部長（現、環境安全研究部長）、市川達生燃料安全工学部長には多くの労をとっていただいた。また、半田宗男プルトニウム燃料研究室長はじめ燃料研究棟の多くの方々より、安全性の面から貴重な助言をいただいた。さらにミキサセトラの製作に関し、環境安全研究部群分離研究室の山口五十夫氏からご指導をいただいた。ここに謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) 例えば、I.Kobayashi, et al. : "ISCS '87" Proc.of International Seminar on Nuclear Criticality Safety, Oct. 19-23, Tokyo, Japan, p29 (1987)
- 2) H.D.Greiling and K.H.Lieser : Radiochimica Acta 35, 79 (1984)
- 3) 例えば J.Bourges, et al.: CEA-CONF-8280 (1985)
- 4) 桜井聡、他 : 日本原子力学会誌 31, 1243 (1988)
- 5) O.J.Wick (editor) : "Plutonium Handbook", The American Nuclear Society, Illinois, vol.2, p424 (1980)

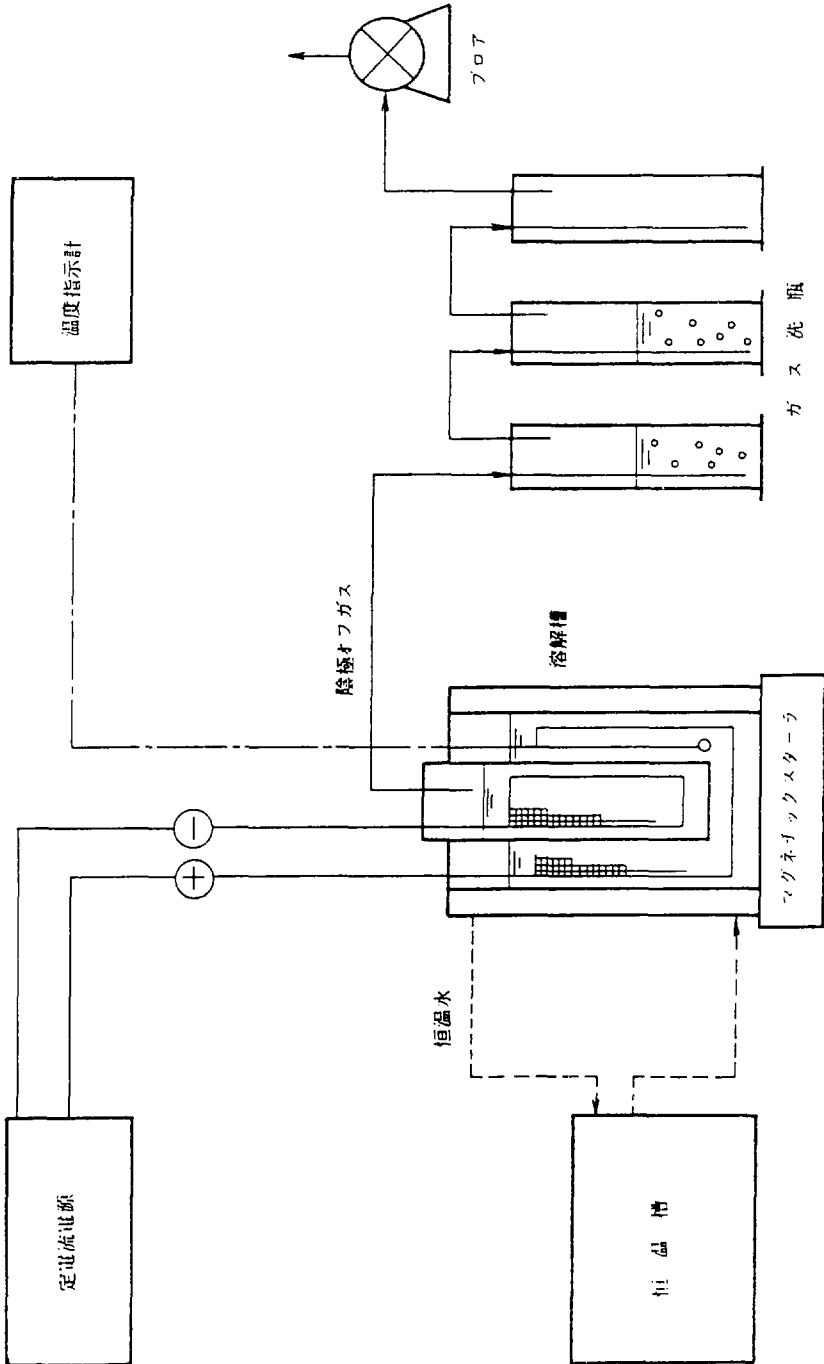


図1 酸化ブルトニウム溶解装置の構成

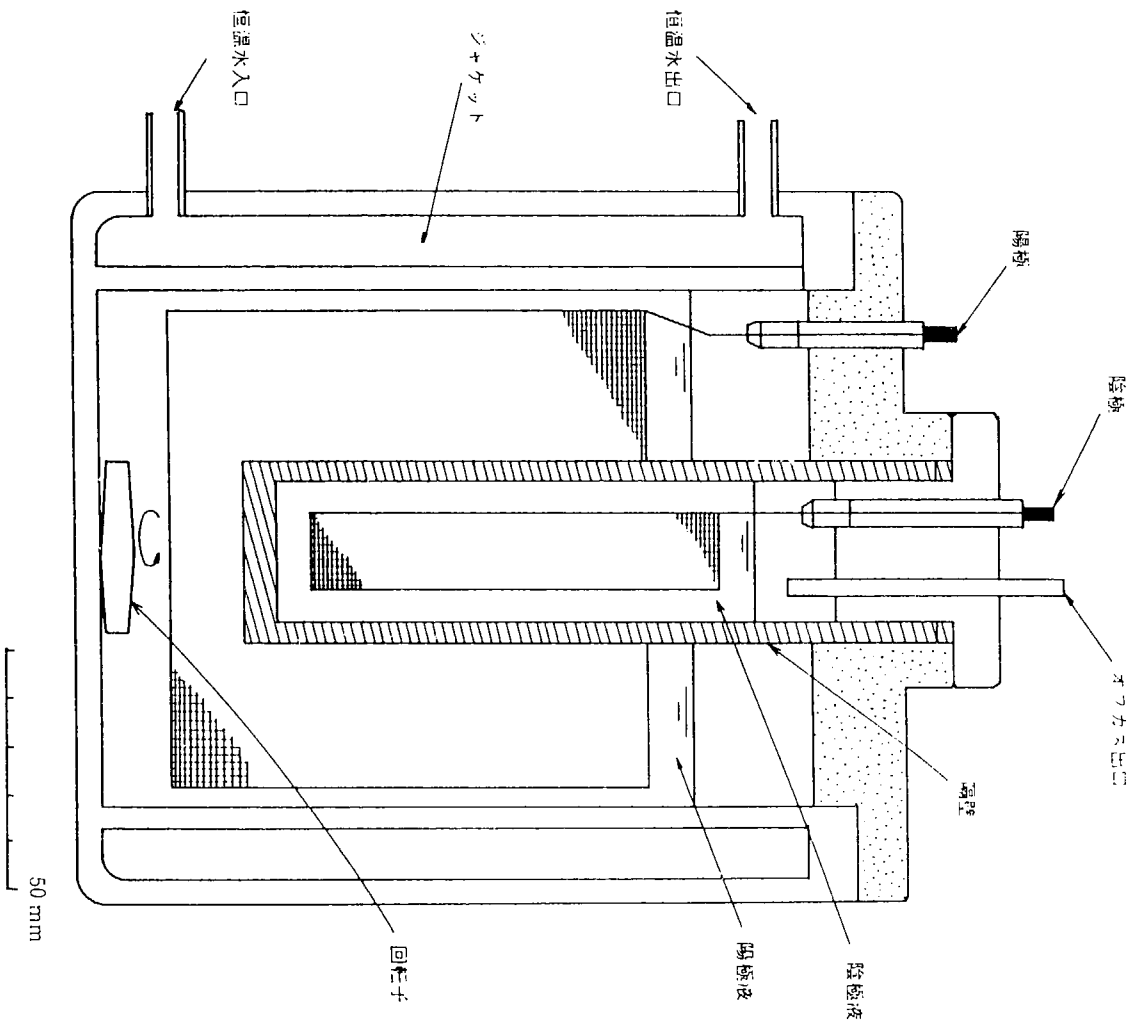


図 2 溶解槽断面図

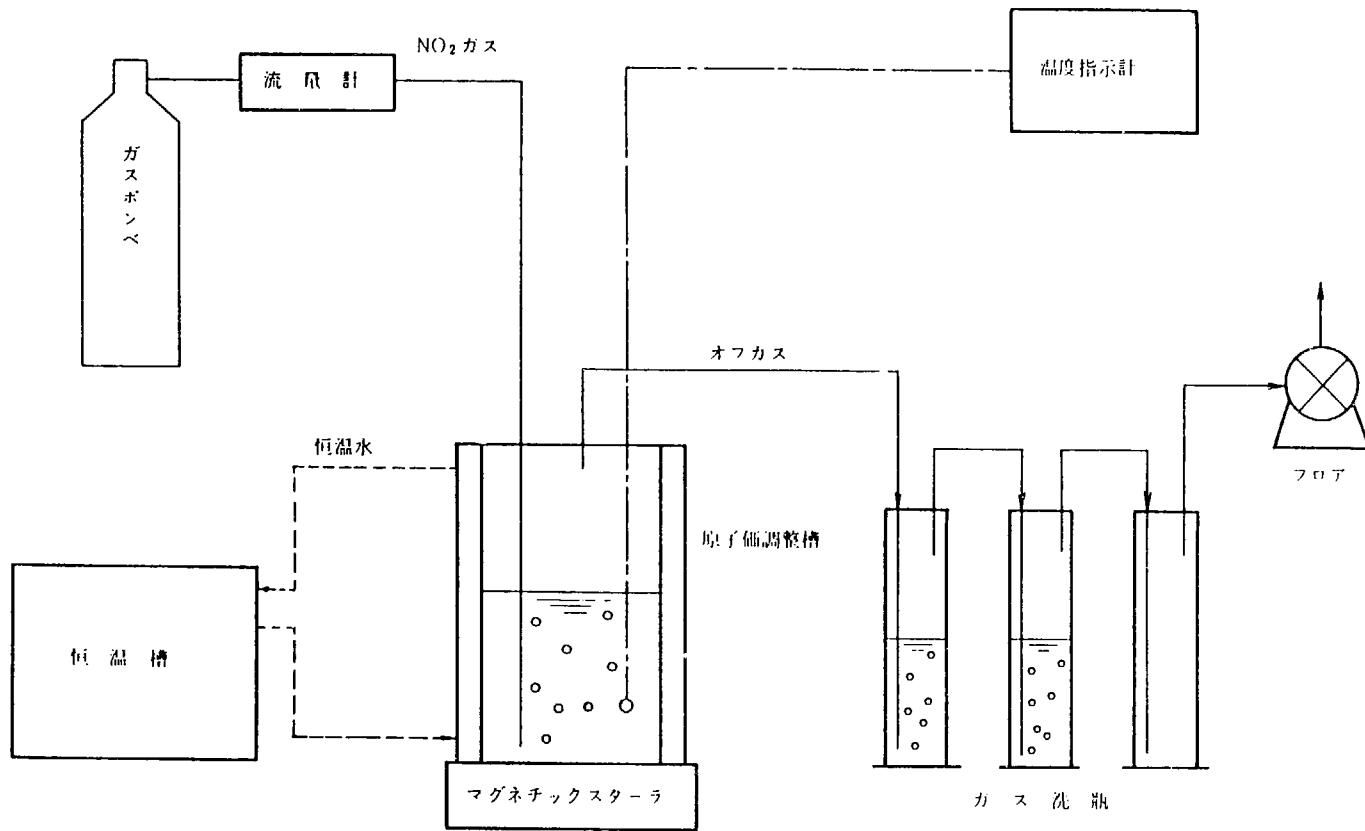


図3 原子価調整装置の構成

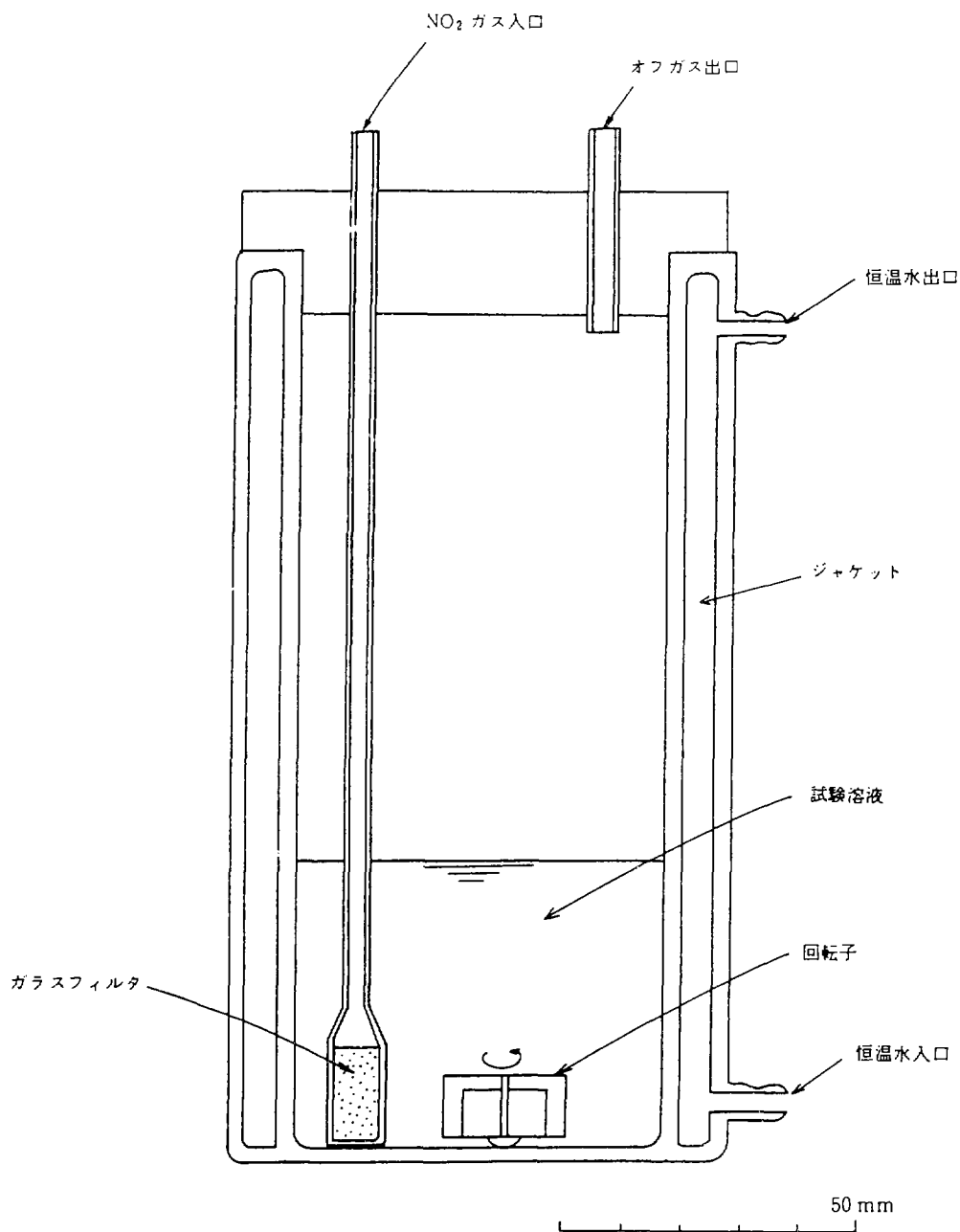
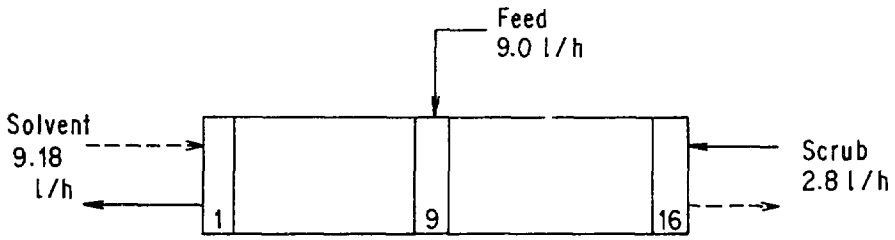
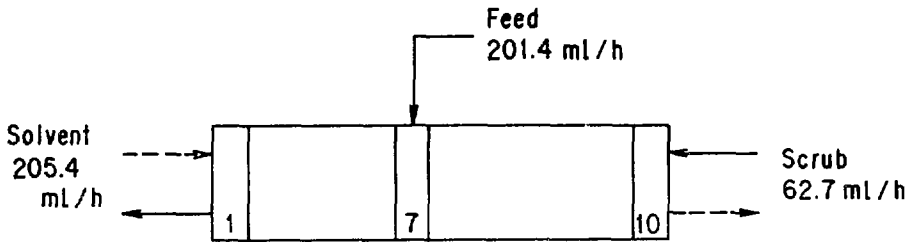


図4 原子価調整槽断面図



Solvent : 30% TBP - n-dodecane
 Feed : Pu 15 g/l
 U 60 g/l
 H 3 M
 Scrub : H 3 M



Solvent : 30% TBP - n-dodecane
 Feed : Pu 15 g/l
 U ———
 H 3 M
 Scrub : H 3 M

図5 NUCEFフローシートと本実験フローシート

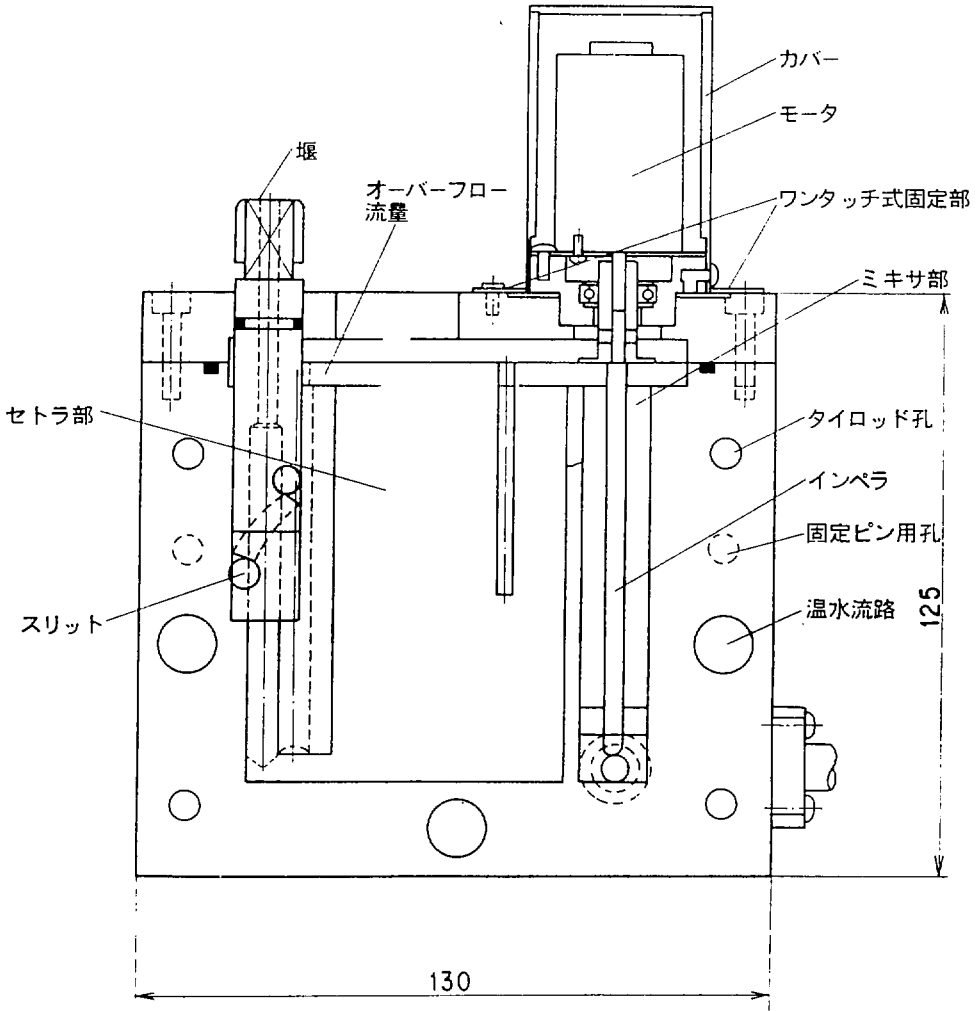


図6 ミキサセットラの構造 (1段)

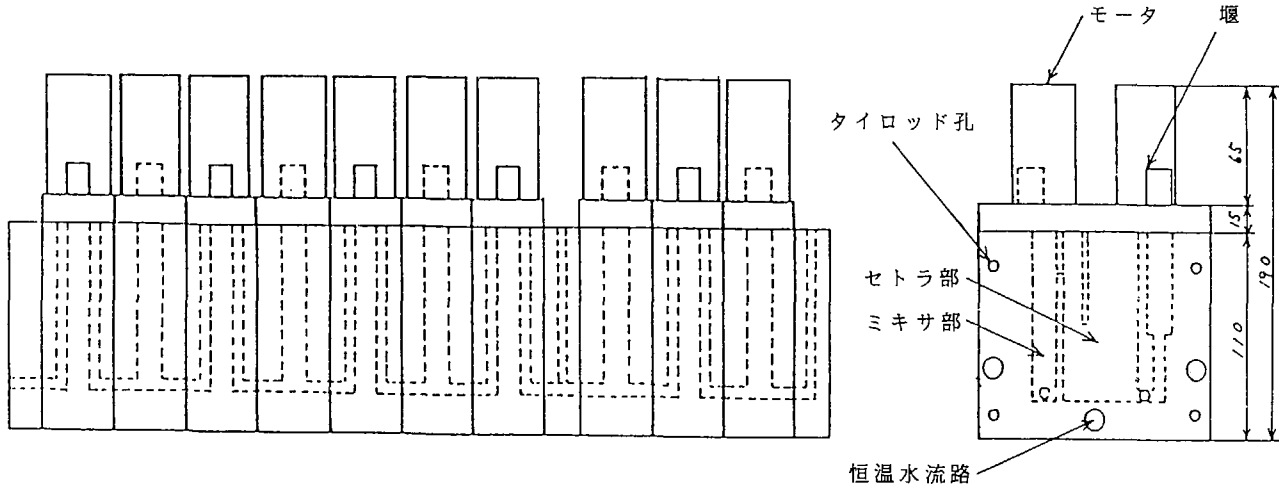
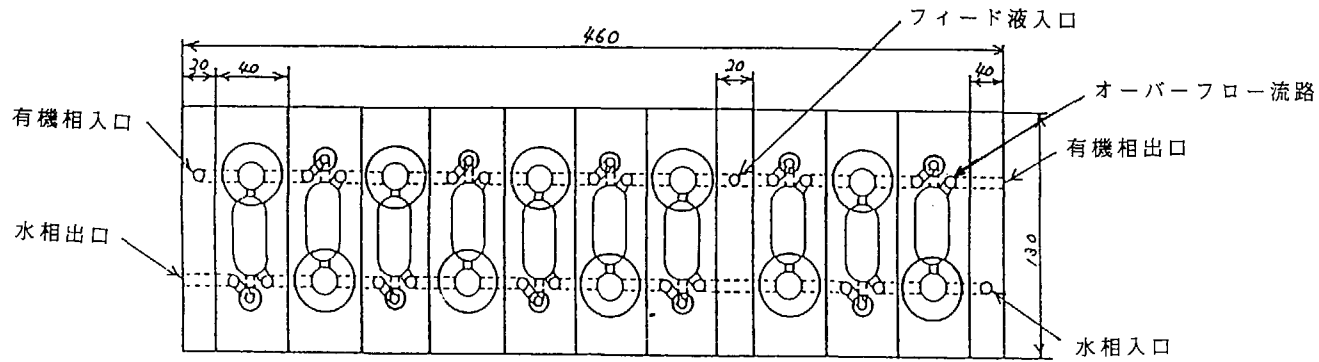


図7 ミキサセトラ組立ての概略 (抽出-洗浄バンク)

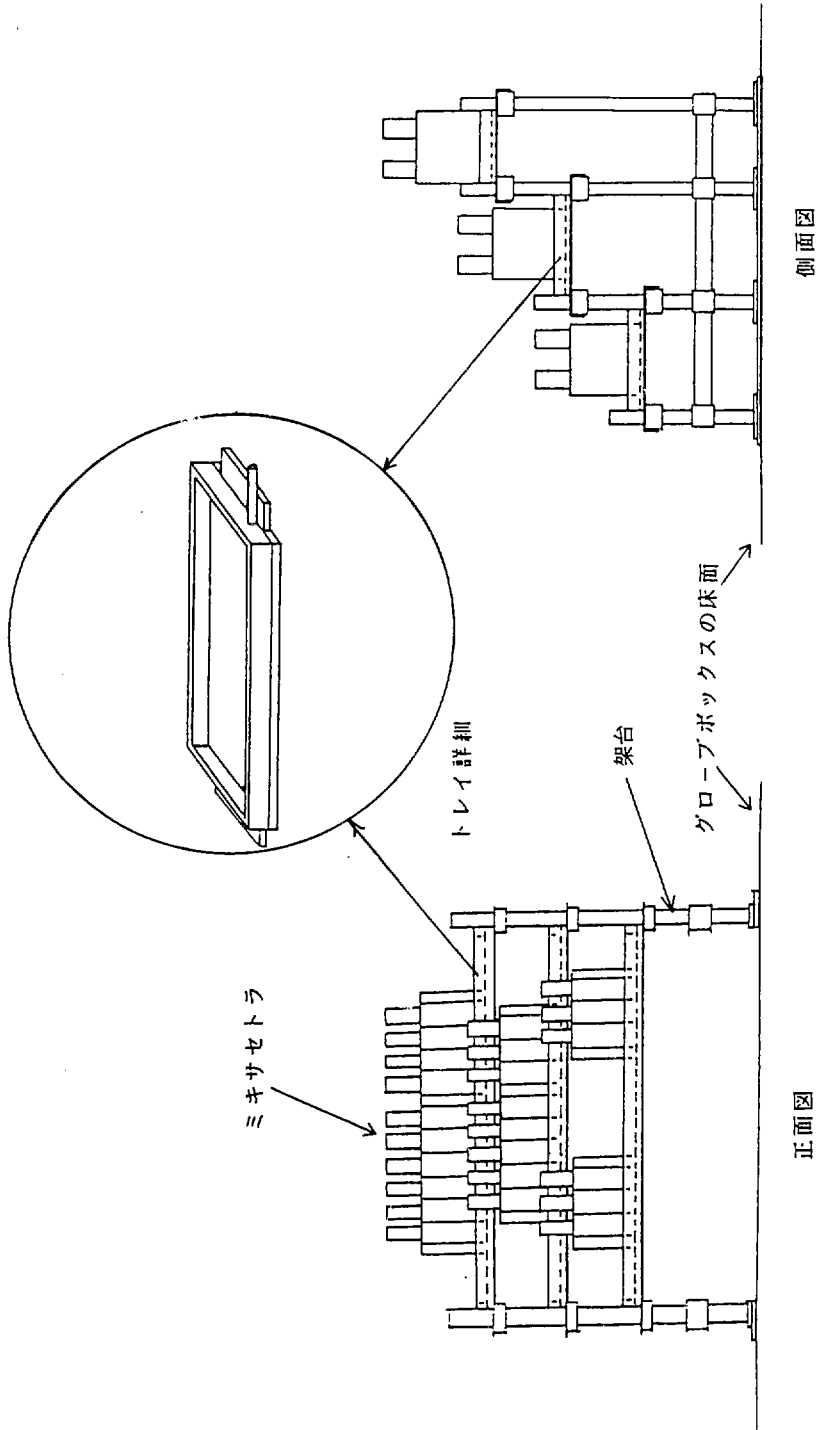


図8 ミキサセトラの設置

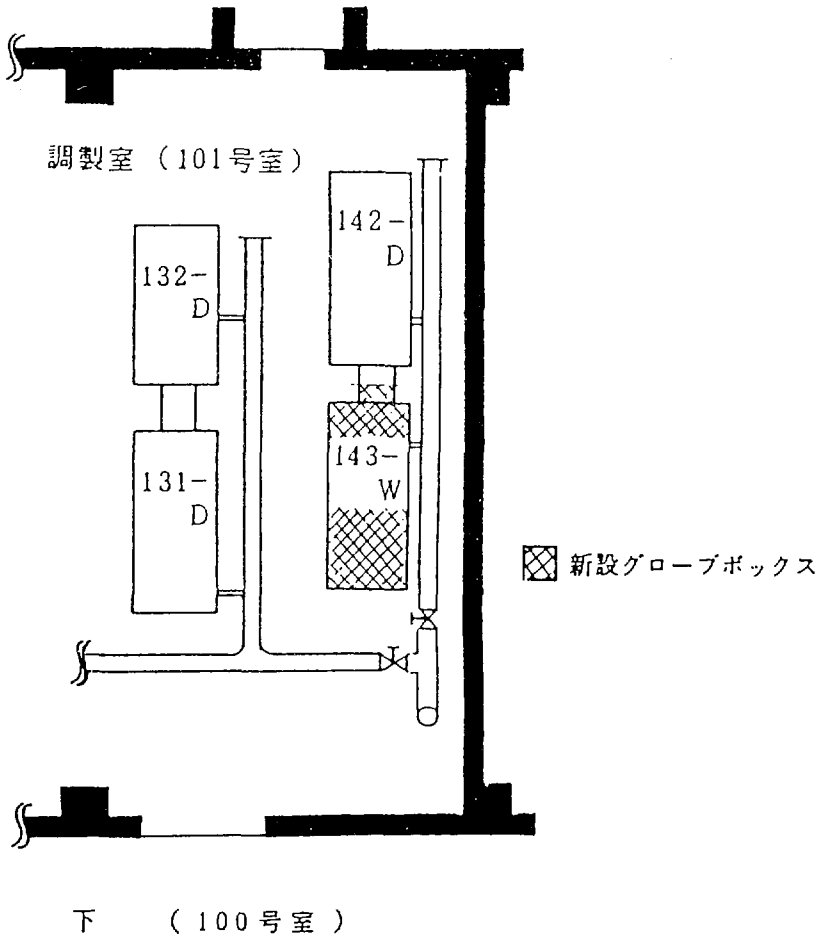


図9 調製室内の配置および排気ダクト接続図

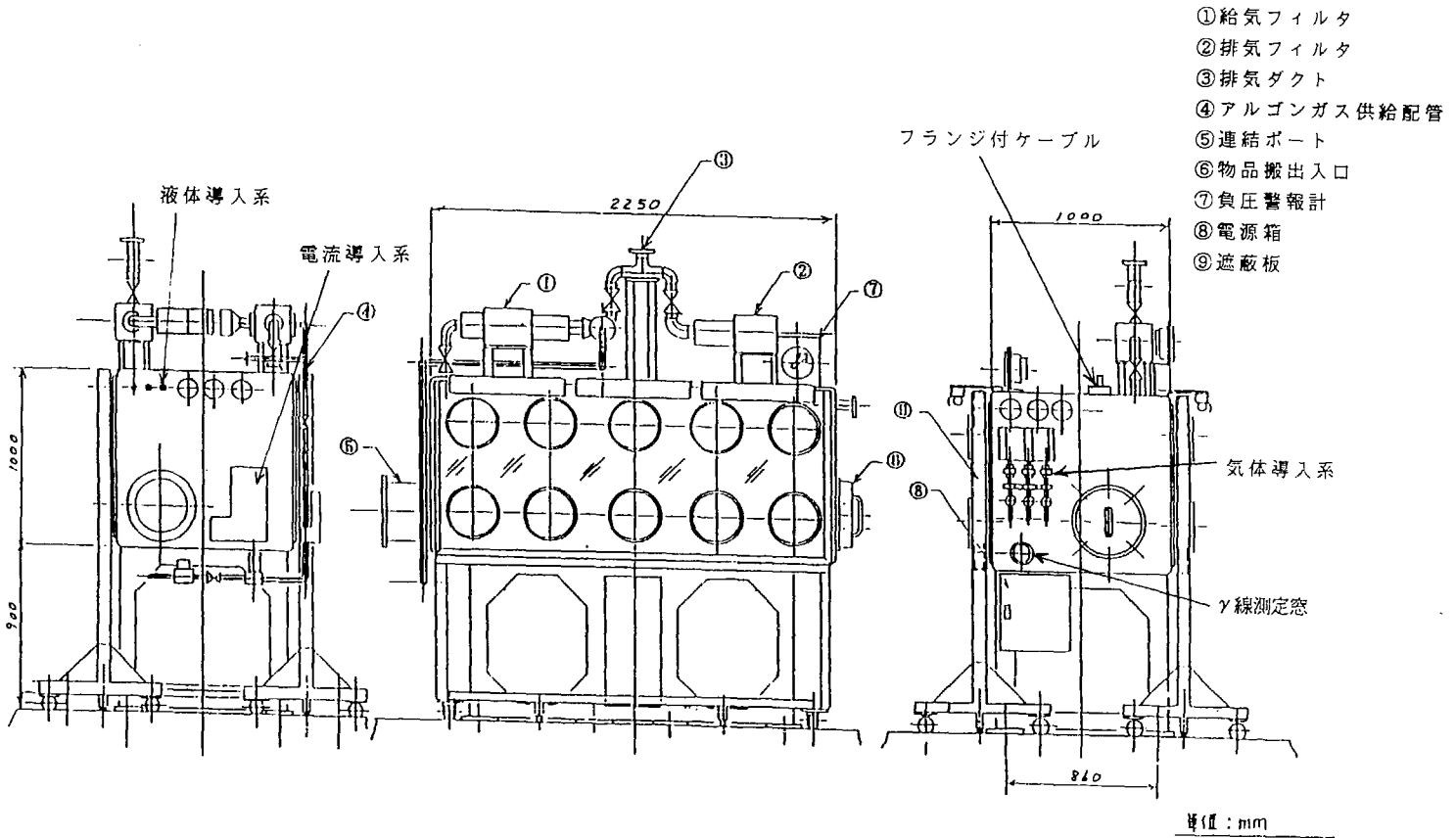
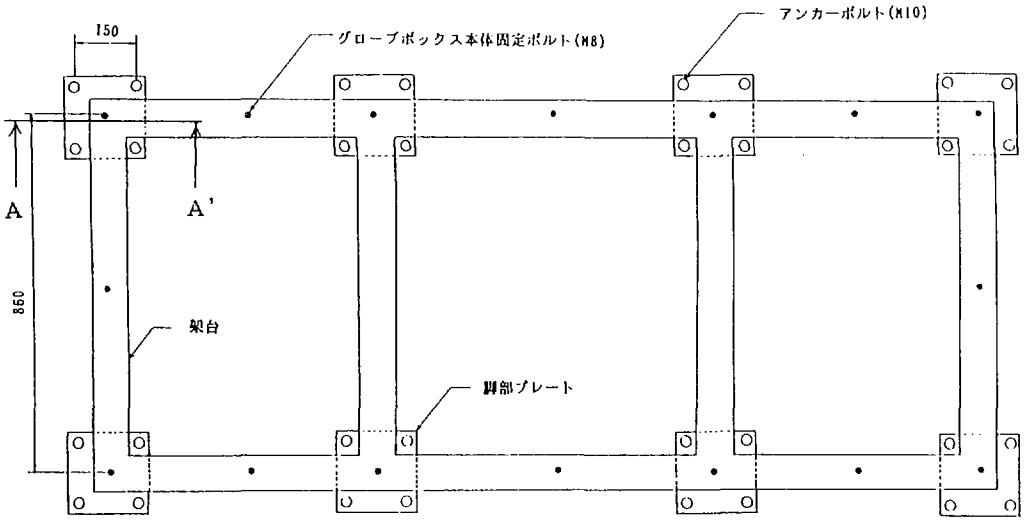
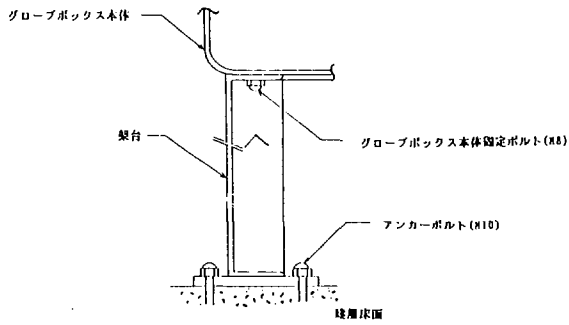


図10 グローブボックスの外略図



単位: mm



A-A' 断面

図 11 グローブボックス本体の固定方法

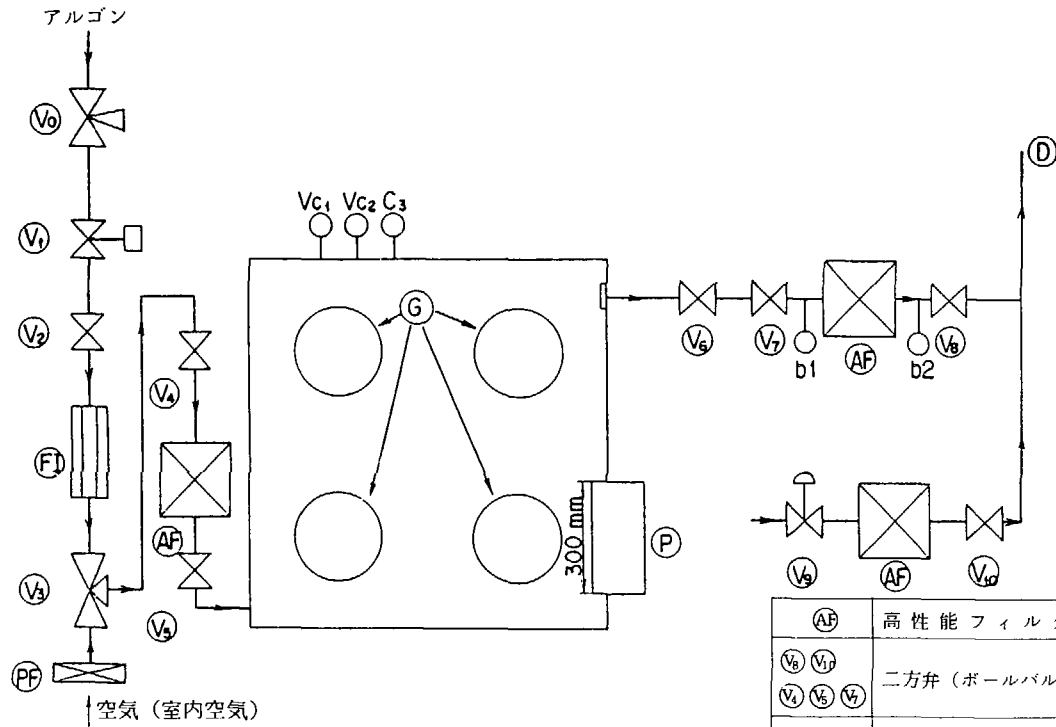


図 12 給排気系統図

記号	部品名または名称	①	排気ダクトへ
Ⓐ	高性能フィルター	Ⓒ	グローブポート
Ⓥ ₀ Ⓥ ₁	二方弁 (ボールバルブ)	Ⓟ	物品搬出入口または連結口
Ⓥ ₄ Ⓥ ₅ Ⓥ ₇			
Ⓟ	プレ・フィルター	Ⓥ ₀	錘式ダンパー
Ⓥ ₃	三方弁 (空気-アルゴン切換)	b ₁ ~ b ₂	差圧測定用圧力計
ⓕ	流量計		
Ⓥ ₂ Ⓥ ₆	流量調節弁		
Ⓥ ₁	電磁弁 (Vc ₁ と連動)	C ₃	温度上昇警報端子
Ⓥ ₀	自動定圧定置弁 (他のグローブボックスと共通)	Vc ₂	酸素分析計用弁
		Vc ₁	微圧警報計用弁

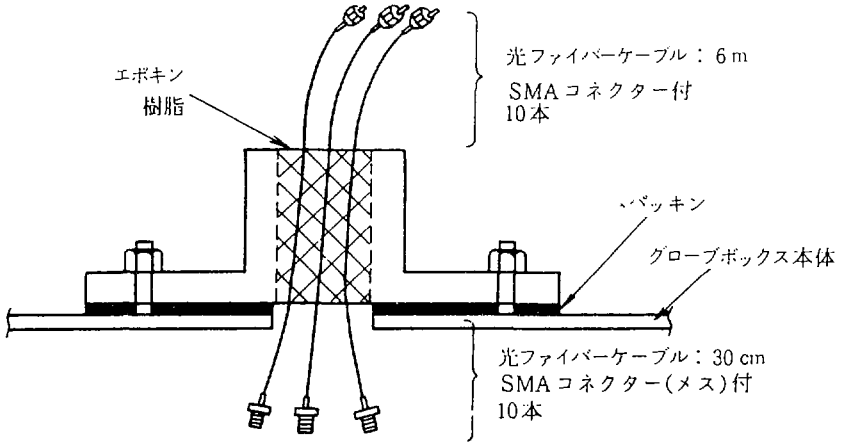


図 13 フランジ付接続ケーブル

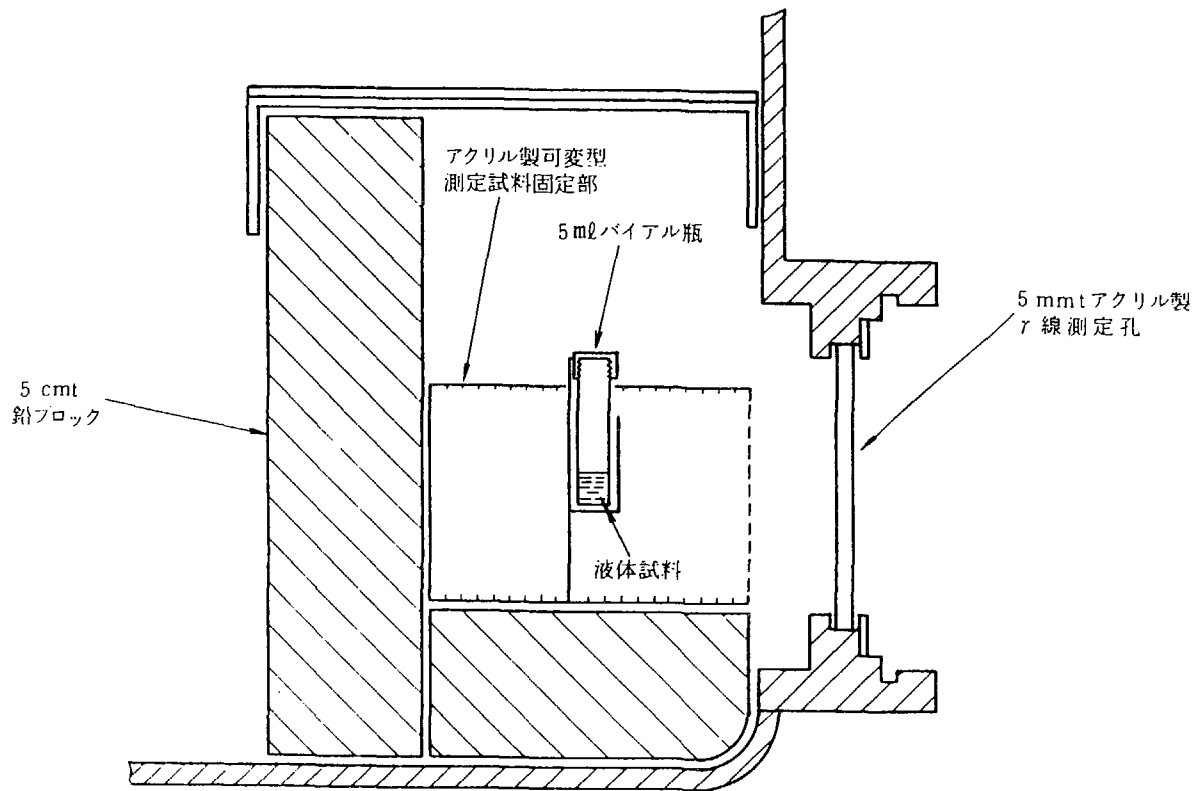


図 14 γ 線測定試料固定部

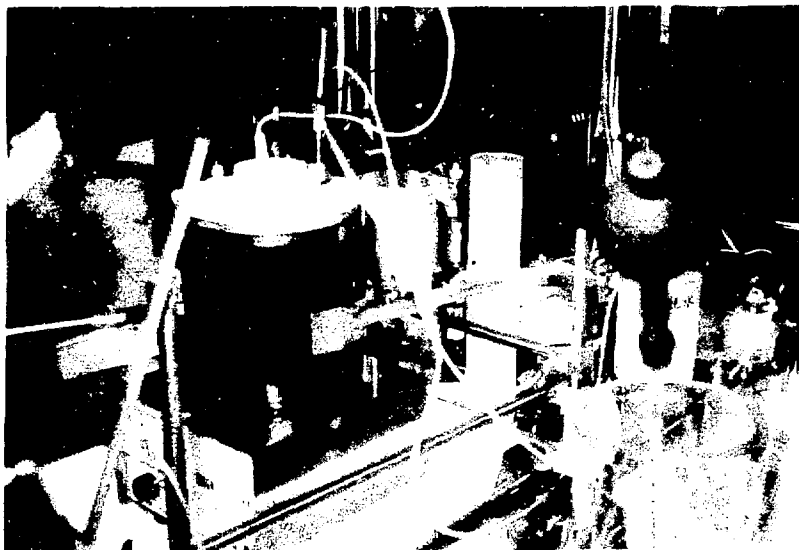


写真1 溶解槽



写真2 原子価調整槽



写真3 ミキサセトラ

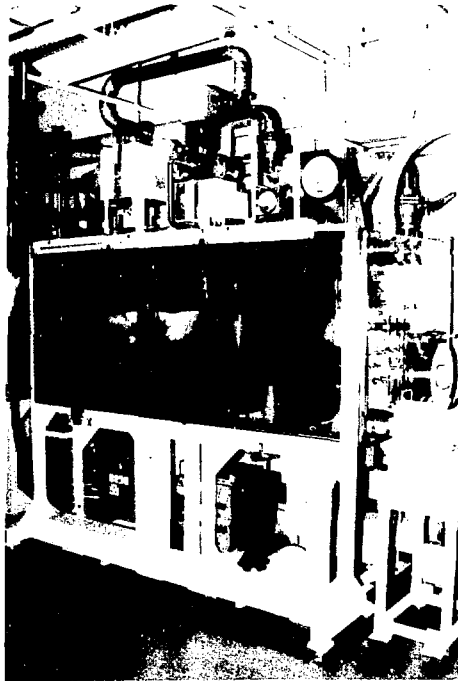


写真4 グローブボックス

付録 分析機器の整備

A. 光ファイバー型吸光光度計

本装置は、溶解したPuの酸化状態、NO₂ ガス吹込法による原子価調整試験の際のPu原子価の組成を測定するために使用する。グローブボックス内で測定するため、グローブボックスとの接続が簡単で、取扱が容易な光ファイバー型の吸光光度計(Guided Wave 社製)を採用した。システム構成を図A-1に示す。本装置は、セルを使用せず試料に直接測定用プローブを浸漬することに特徴がある。以下に主要な仕様を示す。

(1) 測定機本体(モデル200-20)

Pu(III)、Pu(IV)、およびPu(VI)の吸収ピーク波長を考慮し、測定範囲は 350~1000 nm とした。このため、検出器はシリコン検出器で、ハロゲンタンクステンランプを光源とした。スキャン方式はグレーティング方式、スキャン速度1200 nm/minである。波長精度は±0.42 nm、波長再現性 0.008 nm、測光レンジ 10⁶である。

(2) 10チャンネルマルチプレクサ(モデル Mux-121)

本機器は10個の測定点を任意の順序で測定するために、測定チャンネルの切替を行う。

(3) マルチプレクサ対応型専用コントロールユニット

本機器は、測定波長域の設定、各チャンネルの測定順序および測定のスキャン幅の決定など、測定器本体およびマルチプレクサの制御を行う。そのほか、測定データの処理ならびに保管が可能である。データ保存のため、20メガバイトのハードディスクを内蔵している。また出力機器としてプリンタを装備する。

(4) 吸光度測定用プローブ

本プローブは、試料溶液に浸漬する方式である。光ファイバにより導入された光はチップ部の金ベース・ロジウムミラーで反射し、もう一方の光ファイバを通してシリコン検出器に導かれ、この間の減衰を検出する。光路長は10 mmである。プローブ本体はSUS316製で、3 mあるいは6 mのケーブルが接続する。

(5) フランジ付接続ケーブル

光ファイバをグローブボックス内に導入するために使用する(5.2.4 の(1)参照)。これは、10本のケーブルをエポキシ樹脂でフランジに封着することにより気密性を保つ。ケーブル長は 6 mである(図13参照)。

Pu(IV)およびPu(VI)を含む4 M HNO₃溶液の吸光度測定を行い、装置の基本動作を確認した。測定スペクトルの一例を図A-2に示す。Pu(IV)の480 nm、およびPu(VI)の830 nmの吸光度ピークが観測され、それぞれの濃度が測定できることを確認した。本装置で測定可能なPu濃度の範囲は約10~1,000 mg/lであった。

B. γ 線放射能測定装置

本装置は、 PuO_2 の溶解、原子価調整および精製試験において γ 線放出核種 (^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{237}U 等)の定量、あるいはこれら核種の挙動を調べるために用いる。そのため、これら核種の γ 線スペクトルをPHAモードでデータ収集すると同時に、MCSモードで2系統の着目ピークの計数経時変化を測定できる装置とする。放射線測定システムの構成を図B-1に示す。

(1) 検出器およびその遮蔽体

本検出器は、アクチノイド核種が放出する低エネルギー γ 線スペクトル (25~1000 keV) を高効率・高分解能で測定できなければならない。また、高エネルギー γ 線によるコンプトン散乱の影響を受けにくいタイプであることが望ましい。これらの条件を満足する測定器として低エネルギー測定用ピュアゲルマニウム(Ge)同軸型半導体検出器(ORTEC社製 LO-AX-51370-20-P)を選定した。さらに、グローブボックスの側面に設けた γ 線測定窓に検出器の位置を調節できる架台と、低バックグラウンドとするための遮蔽体(東京遮蔽機器製)を検出器の周囲に設けた。この遮蔽体は、厚さ 50 mmの鉛と内側の厚さ 20 mmの無酸素銅の筒からなり、鉛の特性X線の発生を防止する。測定試料の放射能が高い場合、検出器の前部に無酸素銅製コリメータ(口径 10 mm)の設置が可能である。図B-2にGe検出器、遮蔽体および架台の概略を示す。

(2) 測定試料固定部

グローブボックス内側には、液体の測定試料(5 mlバイアル瓶又は1 mlポリエチレン蓋付き容器)およびインライン測定用液体試料導入配管を一定ジオメトリーで測定できる、可変タイプ測定試料固定部を設けた。グローブボックス内のPuおよび ^{241}Am 核種からの γ 放射能の影響を抑えるため、鉛ブロック(厚さ: 50 mm)の遮蔽体で試料固定部を覆った。図14に測定試料固定部および γ 線測定窓の断面図を示す。

(3) データ処理装置

波高分析のためのマルチチャンネルアナライザ(MCA)、およびデータ解析のためのパーソナルコンピュータ1式、プリンタ、XYプロッタで構成する。前者はセイコーEG&G製スーパーインテリジェントMCA(7800-8A2)を採用した。本機は、波高分析を行うPHAモードと、着目 γ 線のピーク面積の時間変化を記録するMCSモードの2種類の同時測定とそのモニタリングが可能である。データ解析用プログラムとして、MCAの制御・データの入出力・保存等を行う「MCAエミュレーションプログラム」、エネルギー較正および核種分析を行う「ガンマ核種分析プログラム」、ならびに「XYプロット作図プログラム」の3種類を装備した。

Pu同位体および ^{241}Am からの低エネルギー γ 線を有効に検出できることを目標としたので、検出器の性能は、 ^{57}Co のおよび ^{55}Fe (フランス原子力庁LMRI製の γ 放射能標準線源)を用いて検査した。その結果、 ^{57}Co 122 keVピークの半値幅FWHMの合格基準(625 eV以下)に対し実測値 579 eVが得られ、また ^{55}Fe の5.9 keV(Mn $K\alpha$ X線)のピークのFWHMの合格基準(370 eV以下)に対し314 eVが実測されたことから所定の性能を有することを確認した。

図B-3にPu溶解試料をPHAモードで測定した γ 線スペクトルを示す。また、MCSモードで2系統の異なった核種の着目ピークの計数の経時変化を測定できることを確認した。

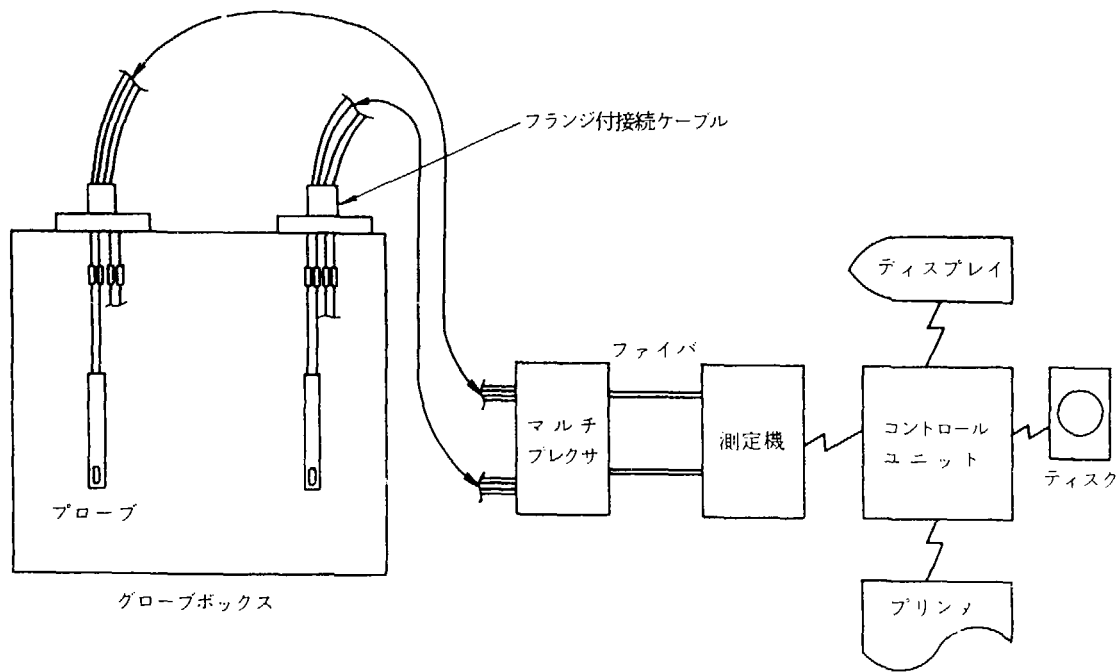
C. 滴定装置

本装置は、Pu溶液試料のPuおよび遊離酸濃度を自動的に定量するものであり、すでに分析グローブボックスに設置されていた Metrohm社の自動記録式電位差滴定装置を、同社製の新型機種(686 型)に更新した。設置に際して、分析グローブボックス内への送液および電気信号の取合い部分は若干の更新を除いてそのまま使用した。

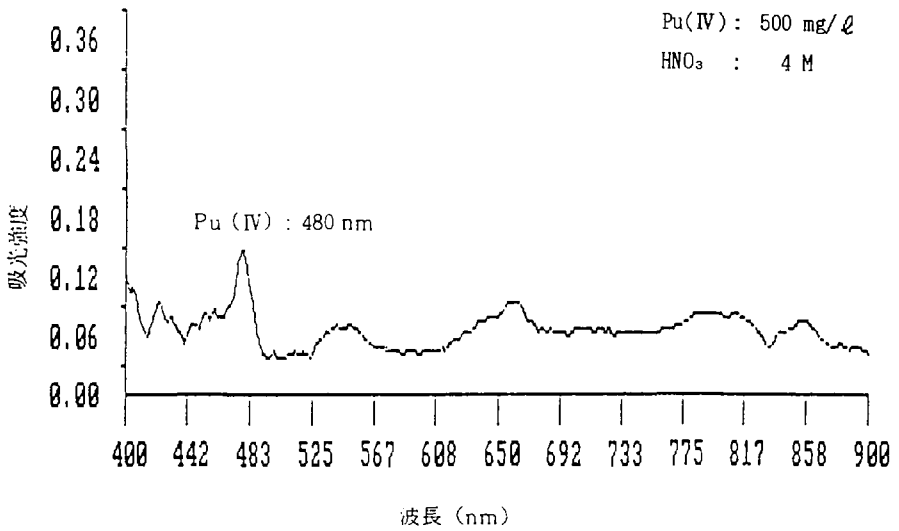
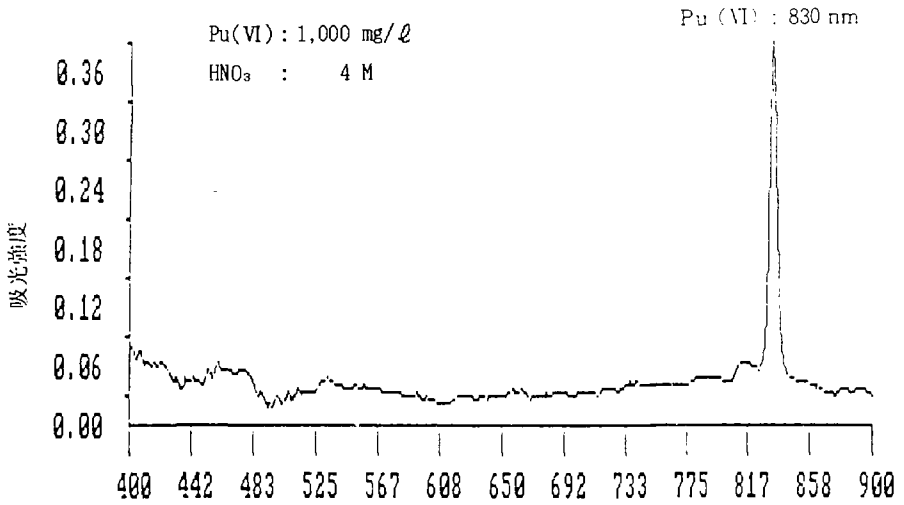
装置の性能を確認するため、G.R.Waterbury らの方法^{a)}を、中野ら^{b)}、加藤ら^{c)}がさらに改良した方法を用いてPuの定量を行った。すなわち 3 M HNO₃ 溶液中で、過酸化銀(AgO)によりPuを6価に酸化したのち、スルファミン酸を加えて過剰の過酸化銀を還元除去する。わずかに過剰の既知量の2価の鉄を加えて6価のPuを4価に還元する。未反応の鉄(II)を重クロム酸カリウム標準溶液で電位差滴定してPu量を求める。同一試料について3回測定した結果、変動係数は0.1%以内であり、優れた再現性で、Pu濃度が測定可能であることがわかった。

参考文献

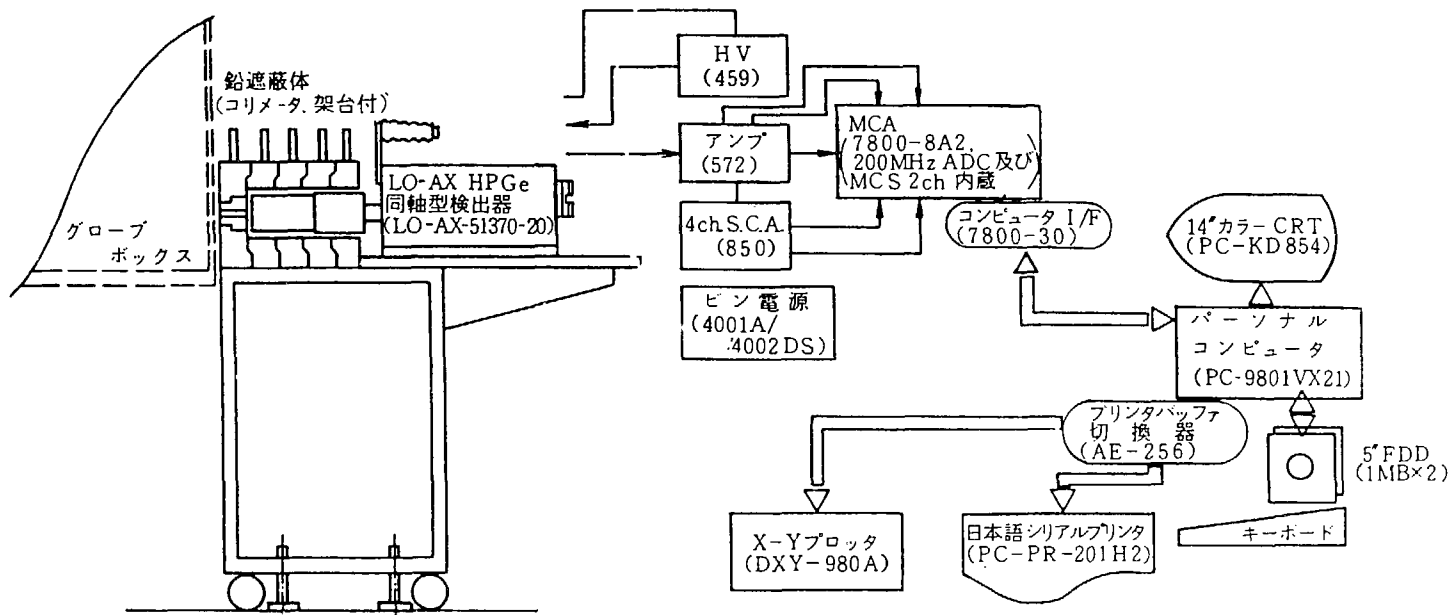
- a) G.R.Waterbury and C.F.Mets : Anal. Chem. 31, 1144 (1959)
- b) 中野啓昌、大西紘一、大内義房：分析化学, 19, 1293 (1970)
- c) 加藤義春、山本忠史、武藤博、木原壮林、本島健次：日本原子力学会誌, 13, 627 (1971)



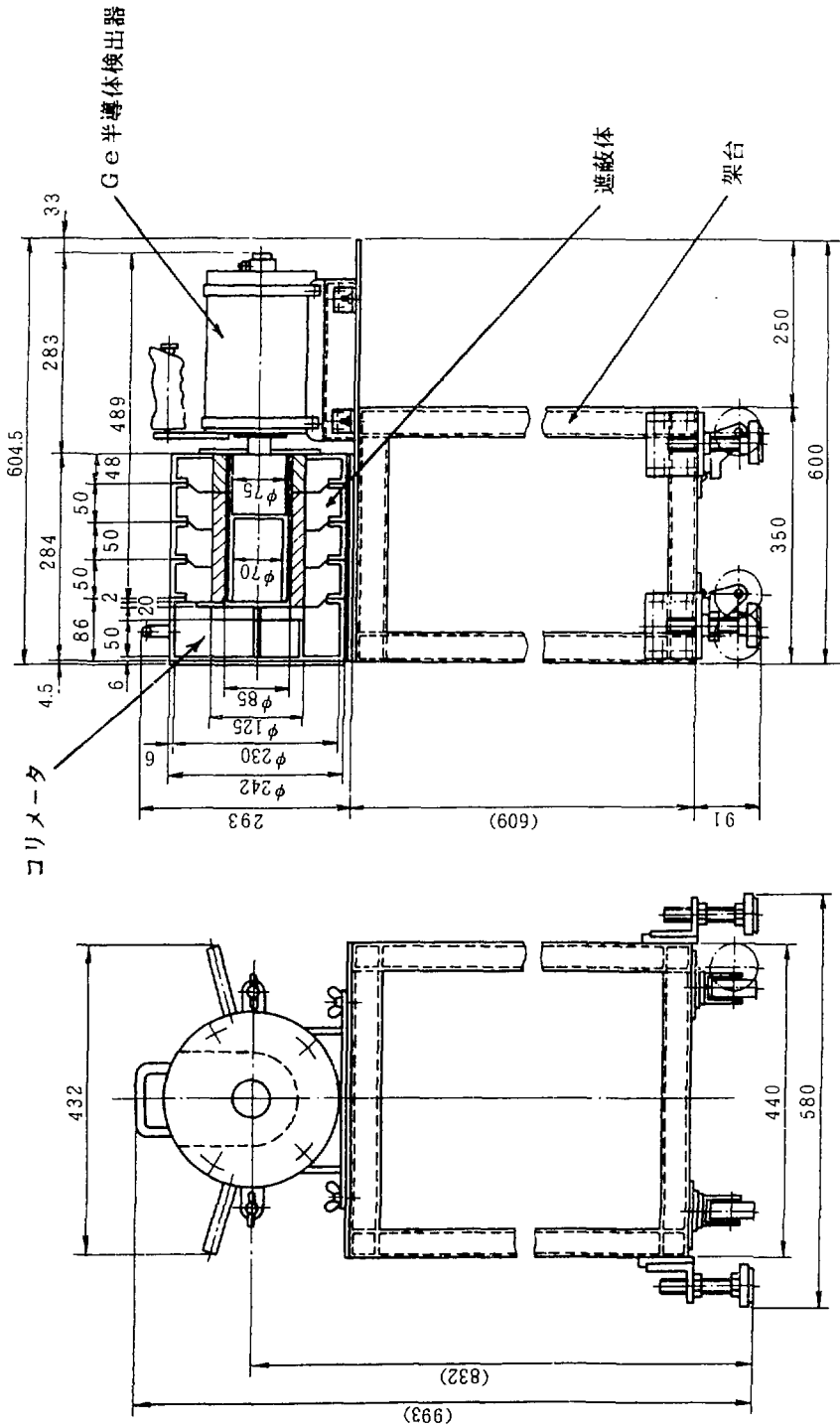
図A-1 光ファイバ型吸光光度計の構成



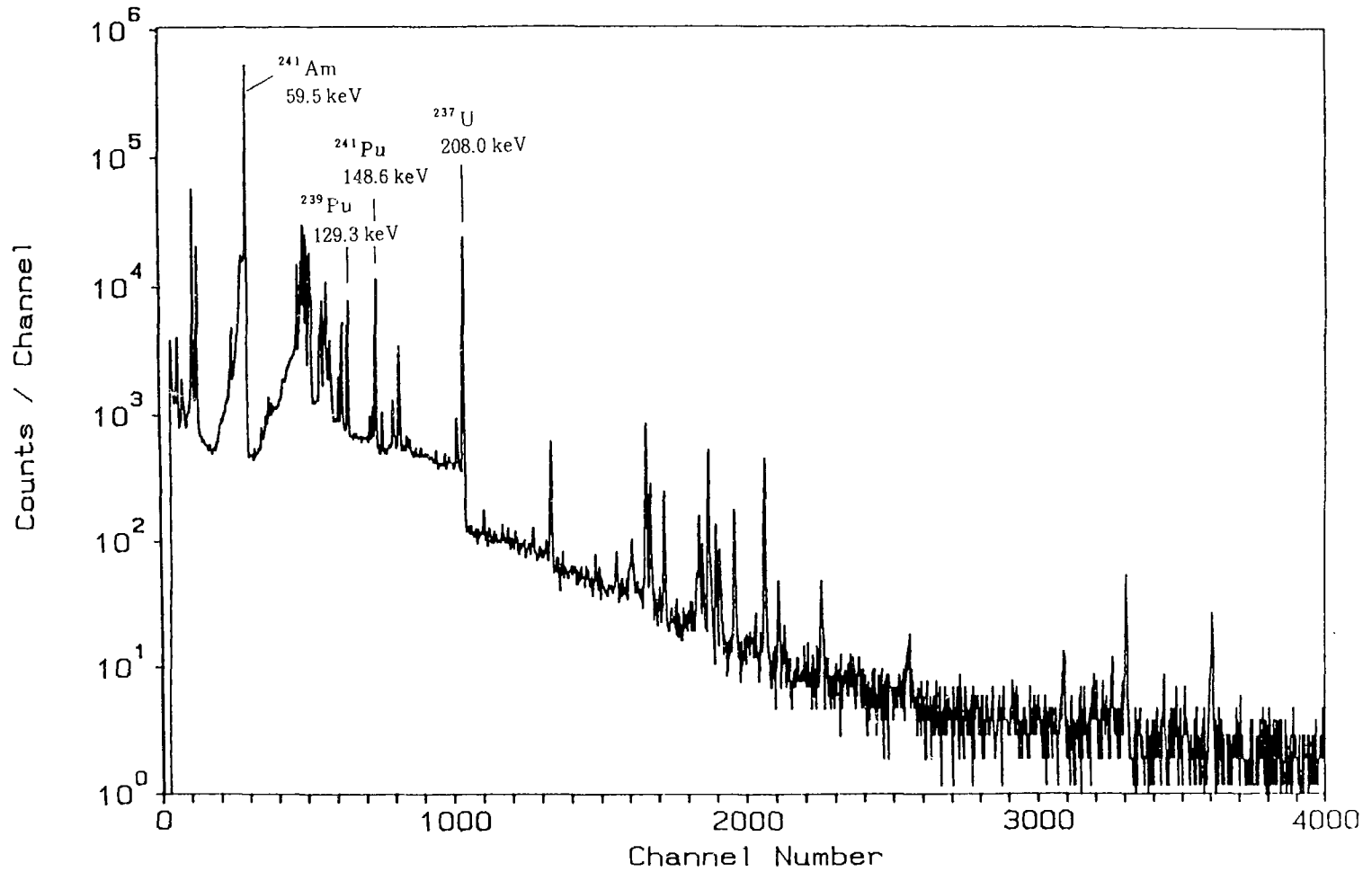
図A-2 フルトリニウムの光吸収スペクトル



図B-1 γ 線放射能測定システムの構成



図B-2 遮蔽体および架台の概略図



図B-3 プルトニウム試料の γ 線スペクトル