一般論文

燃料再処理に伴う放射線管理の経験

大西 武*, 南 賢太郎**, 佐藤信之**, 新野二男
大内正房*, 渡部孝三, 福田整司**

(1971年8月10日受理)

Experiences of Radiation Monitoring in the Fuel Reprocessing Test Plant

Takeshi OHNISHI*, Kentaro MINAMI**, Nobuyuki SATO**
Futao NIINO, Masafusa OHUCHI*, Kouzo WATANABE, and
Seiji FUKUDA**

The Fuel Reprocessing Test Plant at JAERI was operated during the period of 1968~1969 to gain experiences of the fuel reprocessing.

Fuel elements reprocessed were irradiated in the JRR-3 reactor up to about 700 MWD/ton and cooled for 87~300 days.

The purpose of this paper is to describe the experiences of radiation monitoring including contaminations and radiation levels encountered during the fuel reprocessing, and the results of in-place test of air cleaning filters installed in the plant.

I 緒 言

原研の再処理試験施設は、JRR-3の使用済燃料を用いて、燃料再処理の工学的試験を行なうことを目的に建設されたものである。ホット試験を実施するに先立っ

て、3回のコールド試験（未使用燃料要素を用いた試験）を行なって施設の整備をはかり、1968年3月末からホット試験を開始し、1969年3月末までに3回にわたる試験を終了した¹⁾。

今回のホット試験は燃焼度 300~700 MWD/ton、冷却期間87~300日のJRR-3の使用済燃料要素を用いて行なった。3回行なったホット試験のうち、第1次試験(HR-1)は施設の安全性の確認と工程内におけるプルトニウムおよび核分裂生成物の挙動の把握、第2次試験(HR-2)は設計条件に近い使用済燃料を用いてヨウ素の放出率の調査およびD.F. (除染係数)の確認とプルトニウムの回収を、第3次試験(HR-3)ではヨウ素の化学形、分布等発生状況の把握、燃料の燃焼度の測定、プルトニウムの回収・D.F.の向上などを主目的として行なわれた。HR-1, HR-2では冷却期間120日以上、HR-3

日本原子力研究所放射線管理課；茨城県那珂郡東海村（〒319-11）

Radiation Control Section, Japan Atomic Energy Research Institute; Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken.

* 現在：三菱金属鉱業（株）中央研究所；埼玉県大宮市北袋町（〒300）

Central Research laboratory, Mitsubishi Metal Co., Ltd; Kitafukuro-machi, Ohmiya-shi, Saitama-ken.

** 現在：日本原子力研究所大洗研究所安全管理課；茨城県東茨城郡大洗町（〒311-13）

Health Physics and Safety Section, Japan Atomic Energy Research Institute; Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken.

では80日程度冷却した燃料を使用した。

原研の再処理方式は Purex 法で、溶解工程、抽出分離工程、プルトニウム精製濃縮工程からなり、本報告は以上のような一連の燃料再処理工程を進めるにあたって経験した放射線管理上の諸問題を工程別にのべるものである。なお、スタックより放出される放射性核種の中で管理上注目されるヨウ素、クリプトン、トリチウムについては別途報告する。

Ⅱ 溶解工程

溶解工程における排気13系統* フィルタの目づまりとフィルタ交換および放射線異常についてのべる。

排気13系統のフィルタはときどき目づまりを起したが、これはアルミニウム被覆溶解時に、排気13系統をアンモニア・ガスが通過し、ウラン溶解時には酸化窒素ガスや硝酸のミストが通過するので、これらが化学反応して硝酸アンモンの粉末結晶ができ、アブソリュート・フィルタを目づまりさせるからであった。目づまりはプレ・フィルタを上段に挿入し、粉末結晶を除去するように工夫して運転したが本質的な解決にはならなかった。排気13系統のフィルタ交換は、フィルタに F.P. が多量に蓄積しているので、通常のフィルタ交換のように開放の状態で交換すると表面汚染および内部被曝等の問題が発生するおそれがあるので、フィルタの交換は以下の方法で行なった。交換に際してはビニール袋を作って、グローブ・ボックスから汚染物を取り出すときの要領で行ない、交換作業中は低速で排風機をまわしてフィルタ・ボックスをやや負圧に維持しながら行なったので、排風機室の空気汚染は観測されなかった。取出したフィルタの表面線量率は 100~300 mR/h であった。

アブソリュート・フィルタを交換した場合、新しく装着したフィルタが完全にフィルタ・ボックスに装着されたか否かを調べる、いわゆる現場装着試験を行なうことが大切である (Ⅳ 参照)。溶解工程中行なった現場装着試験はダスト・サンプラと HE-40 濾紙** を用い、フィルタ・ボックスの Inlet 側サンプリング・ポイントと Outlet 側のサンプリング・ポイントでそれぞれ同流量吸引を行ない、濾紙に捕集された放射能を測定する方法である。このようにして得られた現場装着試験の結果は 99.55%~99.78% であった。99.5% 以上の場合は装着が完全であると判定した。

溶解工程中、エア・エジェクタのミスト吸入によるパイプ・ラインの汚染とサンプリング室の気送管の汚染が

Fig. 1 Schematic diagram of transfer-line for transferring the dissolved uranium from dissolver to adjustment vessel.

あった。

HR-1-1 ウラン溶解後、溶解槽より調整槽への溶液の移送を Fig. 1 に示すエア・エジェクタ (AV-1J-4) とエア・リフト (AV-1L) を作動して行なった。溶解槽の溶解液がなくなったときミストが発生し、ケーブ天井室に露出しているエア・エジェクタ・バルブとその配管内を汚染したため、一時的に 200 mR/h 程度に放射線レベルが上昇し、ケーブ天井室に設置してあるエリア・モニタのアラームが鳴った。このような異常を防ぐためこの装置の使用を中止し、Fig. 1 に示すスチーム・エジェクタ (AV-1J-2) を用いて移送を行なうようにした。

サンプリング室の気送管の汚染は、サンプリング・ブリスタで各種のサンプルを採取し、そのサンプルを気送管で分析セルへ移送中に発生した。この原因は試料ビンのキャップにゆるみがあったまま、気送装置で移送を行なったためにサンプルがひっかかり、キャップがとれて溶液が流出したので、気送管の内壁を汚染した。気送管の表面で 250 mR/h に上昇し、エリア・モニタのアラームが発生したが、空気汚染は生じなかったので、管内を洗浄した後、鉛板で遮へいた。

Ⅲ 抽出分離工程

抽出分離工程を通じて、施設内の放射線レベルおよび表面線量率を定期的に測定した。この結果、Fig. 2 に示

* プロセスオフガス排気系統

** 東洋濾紙 K.K. 製

Fig. 2 Schematic diagram of solvent extraction equipments.

Fig. 3 Variation of the surface dose on filter-box with the time after start of extraction process.

す溶媒を抽出塔に供給する 1AX, 1BS ポンプ (BV-37P, BV-38P) およびケーブ天井室の 1AX, 1BS ヘッド・ポット (BV-7, BV-15) まわりならびに排気 13 系統の線量率の上昇があったが、その他の場所には異常は認められなかった。

1AX, 1BS のポンプまわりおよびケーブ天井室の 1AX, 1BS ヘッド・ポットまわりの線量率は抽出分離工程開始とともに上昇し、3 日間で一定の飽和値に達した。そのときの線量率はポンプまわりで 10 mR/h, ヘッド・ポットまわりで 7 mR/h であった。ただしヘッド・ポットは

Fig. 4 Schematic diagram of solvent extraction equipments for illustrating the misoperation.

5 mm 厚さの鉛板で遮へいしている。

排気 13 系統のフィルタ・ボックスの表面の線量率は抽出開始とともに徐々に上昇し、終了した時点では 65 mR/h に達した。^{*} Fig. 3 に HR-2 における排気 13 系統フィルタ・ボックスの線量率上昇のようすを示す。

抽出分離工程中、バルブ操作の手違いによりサンプリング室の床汚染があった²⁾。抽出分離は Fig. 4 に示すように抽出塔 BC-1 で F.P とウラン、プルトニウムを分離し、抽出塔 BC-2 でウランとプルトニウムを分離している。BC-1 で分離した F.P 廃液 (1AW) は 1AW 受槽 (BV-11) に一時貯留し、一定量になったとき長期貯蔵施設の貯槽へ排出している。HR-2 抽出分離工程中、BV-11 の廃液の移送終了後、移送に使用したエア・リフト (BV-11L-1) の前後のバルブをしめるところを誤まって、BC-2 へ 1AP 溶液 (ウラン、プルトニウム溶液) を供給するエア・リフト (BC-1L) のバルブをしめてしまった。その結果 BC-2 への 1AP 供給が停止したので、BC-1 の上部と BC-1L までのパイプ系からオーバーフローし、ベント・ラインを通して廃液操作室の廃液タンク WV-3 に流出した。また一部の溶液はサンプリング室のサンプリング・ラインに付属する湿潤器のコックが若干緩んでいたため、ここから床に漏洩した。^{**} このと

^{*} 抽出工程ではフィルタの目づまりは起こらなかった。

^{**} 床にはビニール・シートが張られており、したがって容易に汚染を除去することができた。漏洩した液の表面における線量率は 150 mR/h であった。

きサンプリング室に設置してあったエリア・モニタの異常上昇が観測され、床汚染が発見されるきっかけとなった。誤操作の原因は、同形のパルプが複雑に配置されていたことによるものであり、また早晩の疲労度が高い時期にパルプ操作を行なう作業手順にも多少問題があったので、十分検討が行なわれ改善された。

Ⅳ プルトニウム精製濃縮工程

プルトニウム精製濃縮工程中において、放射線管理上問題になったスタックからのプルトニウムの放出、残留液処理時の線量率上昇等についてのべる。

Fig. 5 Distribution of exposure dose rate in mR/h in the room on the floor of which the 2AF feed equipments are installed.

プルトニウムを含む原液をミキサー・セトラに供給するための減圧エア・リフト・ヘッダまわりの放射線レベルが Fig. 5 に示すように 1R/h 程度に上昇した。この区域は放射線レベルが上昇することが予想されていたので高レベル区域*に指定して立入制限を実施していた。したがって問題になるような被曝は起らなかった。原因は原液に含まれる F.P. が減圧エア・リフト・ヘッダに付着したものである。

プルトニウムを最終的に精製するイオン交換樹脂装置を内蔵するグローブ・ボックス表面におけるプルトニウム吸着、洗浄、溶離の各操作における線量率の変化は、吸着操作時には線量率が徐々に上昇し約 10 mR/h となり、洗浄操作を行なうとウラン、F.P. が洗浄されるので線量率が低下し約 5 mR/h となる。プルトニウムを溶離するとさらに減少し約 1 mR/h となる。イオン交換装置操作時には、常時グローブ・ボックス前面で作業することではなく、操作室における監視が主になるので、上記の

* α 汚染の発生する可能性のある区域および β , γ による高汚染、高線量率の可能性のある区域。

Fig. 6 Unusual discharge of α and β activity measured by the stack monitors.

ような線量率の上昇があっても放射線管理上、被曝の問題はなかった。

プルトニウム精製濃縮工程中、スタックの α および β (γ) 用ダスト・モニタの異常上昇が Fig. 6 のように観測された。この原因は排気13系統のアブソリュート・フィルタの装着不良によるもので、エア・エジェクタを使用したとき急激に装置内でミストが発生し、プルトニウム等がスタックから放出されたものである。フィルタ装置を予備の系統に換えたところ、Fig. 6 に示すように漏洩を防ぐことができた。放出されたプルトニウムの全量は約 $4 \mu\text{Ci}$ で、放出時の濃度は $8.9 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 、この日の1日平均濃度は $1.1 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ であった。以上のことからⅡでのべたフィルタの現場装着試験を行なうことが大切であると痛感された。

V 結 言

3回のホット試験を通じて得られた放射線管理上の経験を以下にまとめる。

1) オフガス・ベント系のアブソリュート・フィルタは放射性物質の蓄積により高線量率となる。フィルタの表面線量率はフィルタ・ボックスの表面で測定した値の約10倍程度になるので、エリア・モニタ等でフィルタ交換の目安をきめる必要がある。

2) 燃料再処理ではプルトニウム等が多量に取扱われるのでフィルタの装着が確実に行なわれているか否か、現場装着試験を行なうことが大切である。

3) サンプル室や分析室などでは汚染が発生しても除染が容易に行なえるように床にはビニール・シート等を敷いておく必要がある。また汚染が早期に発見できるようにエリア・モニタ等の適正配置を考慮すべきである。

4) 再処理工程の初期においては放射線管理上注目すべき核種はおもに F.P. であるが、プルトニウム精製濃縮工程では F.P. よりむしろプルトニウムが問題になる。したがって α 汚染, β , γ による高汚染および高線量率の可能性のある区域とその他の区域に分けて管理を行ない、毒性の高い α 汚染を最小限にとどめる必要がある。

これらの経験は今後のプラントの設計や運転の参考資

料の一端になると思う。

終りに臨み、本報告をまとめるにあたって御指導をいただいた青地哲男再処理開発試験室長* とそのグループの方々、および吉田芳和放射線管理課長、ならびに御協力いただいた村田幹生、宮本俊寛氏に厚く謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) 石原, 青地; 使用済み核燃料再処理の開発試験, 第4回ジュネーブ会議, Session 2-4, 論文番号 No. 239, (1971)
- 2) 青地哲男; プルトニウム国産化への道, 原子力工業, 16 (6) 58 (1970)

* 現在; ウラン濃縮研究室長