



技術報告

設備更新時のグローブボックス内在庫検認 における保障措置技術開発 ホールドアップ監視システム(HMOS)の開発

中村 仁宣 細馬 隆 田中 泉

東海事業所 再処理センター 処理部

Development of Safeguard Technology for Plutonium Inventory Verification in a Glove Box during Facility Maintenance

- Development of Holdup Monitor System (HMOS) -

Hironobu NAKAMURA Takashi HOSOMA Izumi TANAKA

Reprocessing Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works

JNCのMOX製造施設では、グローブボックス(GB)に残留するPu及びU(ホールドアップ)に対し、大型の中性子測定装置をGB側面に配置して計量管理及び査察が行われている。しかしながら、設備更新期間中は汚染防止エリアをGB周囲に設置するため、測定に代えて高感度の監視ができるよう、ホールドアップ監視システム(HMOS)を開発した。本システムでは、GBの上下外側に小型の³He検出器を配置して全中性子数を常時モニターするが、バックグラウンド中性子への対策を行い、GB中央で30g Puの感度を得た。1998年から1年間、実際に査察で使用され、中性子数の直線的な増加傾向、工程室の湿度による1~2%の変動、Pu付着物のGB内移動に対する鋭敏な反応等が明らかになった。

In MOX facilities in JNC, Pu & U residue in the glove box (called "Holdup") has been measured and verified by an inspector by setting large neutron detectors beside the glove box (GB). However, it is difficult to apply such methods during plant maintenance, because the contamination control area is set up around the GB. JNC developed the "Holdup Monitor System (HMOS)" to enable sensitive monitoring instead of measurement. It has ³He detectors up and down the GB and counts the total neutron rate. The detectors are shielded from neutrons by the background and the sensitivity is 30g Pu for Pu in the middle of GB. From 1998, this system was used for inspection for about one year. As a result, a linear increase in count rate, fluctuation (1~2%) due to humidity in a room and sensitive change of count rate occurred by movement of Pu material in the GB were obtained.

キーワード

グローブボックス, MOX, ホールドアップ, 検認, 設備更新, 中性子, 連続監視装置, 保障措置, 査察, プルトニウム, C/S

Glove Box, MOX, Holdup, Verification, Facility Maintenance, Neutron, Continuous Monitoring System, Safeguard, Inspection, Plutonium, C/S Containment and Surveillance)



中村 仁宣*

転換技術課
技術チーム所属 転換班長
プルトニウム転換工程の運
転ならびに運転付帯業務に
従事



細馬 隆

転換技術課
技術スタッフ
プルトニウム転換工程にか
かわる保障措置・計量管理
業務に従事
工学博士



田中 泉*

転換技術課
課長
転換技術課の取りまとめ、
ライン管理業務に従事

*現在：日本原燃株式会社 再処理事業部 建設試運転事務所 技術支援部 混合脱硝支援グループ

1. はじめに

プルトニウム転換技術開発施設（以下、転換施設）では、東海再処理工場で分離精製された硝酸プルトニウム溶液を、硝酸ウラニル溶液とPu/U比が約1になるように混合し、マイクロ波加熱直接脱硝法によって、「もんじゅ」及び「常陽」用MOX原料粉末に転換している。

転換に用いる設備・機器はグローブボックス内に設置され、グローブボックス間では、気流輸送方式を用いてMOX粉末を移送する。このため、搬送容器から気流輸送装置に粉末を送り込む際、また気流輸送装置から次のグローブボックス内の搬送容器に粉末を落とし込む際に、少量ながら、グローブボックス内に粉末が飛散する。搬送容器内にも少量の粉末が滞留する。

これら飛散・滞留粉末（ホールドアップ）にはプルトニウムが含まれるため、GBAS（Glove Box Assay System）又はHBAS（Holdup Blender Assay System）と呼ばれる定量装置を用いて計量管理を実施し、国とIAEAによる査察（在庫検認）を毎月受けている。

月受けている。

GBAS（HBAS）の検出器は平板状（幅1,000mm×高さ1,700mm×厚さ80mm）であり、2枚の検出器でグローブボックスを挟み込むように設置する。飛散・滞留粉末から発生する中性子はこの検出器に入射し、同時計数装置によってプルトニウムの自発核分裂による中性子のみが選択的に計数され¹⁾、プルトニウム量が定量される。毎月の査察の都度、この大型検出器をグローブボックスの脇に設置するために、グローブボックスの周囲に2m程度のスペースを確保しなければならない。

転換施設ではグローブボックス内の設備の老朽化に伴い、1998年6月～1999年7月にかけて設備更新工事を行うことになったが、作業安全と汚染コントロールの為にグリーンハウスと呼ばれる大きなビニール製のテントが不可欠であり、図1（設備更新時）に示すように、グローブボックスの周囲には、測定に必要なスペースが残らない。

転換施設のホールドアップ検認対象グローブボックスは図1のようにすべて同じ工程室に設置

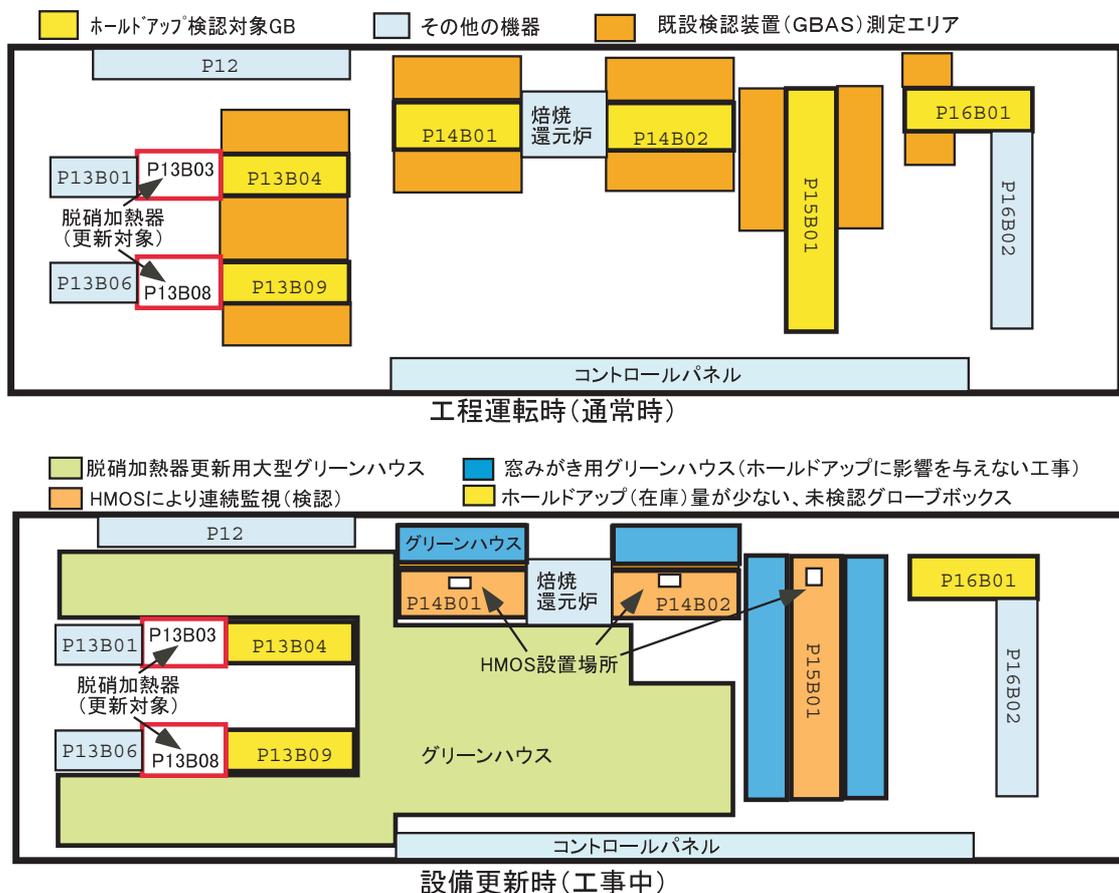


図1 転換施設の工程室内グローブボックス配置図及びグリーンハウス設置状態図

されていることから、グリーンハウスがグローブボックス表面まで接近せざるを得ない状況であり、従来の方法による在庫検認の実施ができないことが分かった。グリーンハウスの縮小及びグリーンハウスの設計変更は、作業安全上十分な広さを取ることが必要であることから不可能であり、プルトニウム在庫に対しては月1回の在庫検認の実施も保障措置上必要であることから、設備更新と両立しうる在庫検認手法の考案が必要であった。

そこで、グローブボックス内のプルトニウム量が工事期間中は一定である(工程運転がないため)ことに着目し、工事直前に従来の方法で査察を受けると同時に、その時点から小型・高感度の中性子連続監視装置を作動させ、査察を継続する方法を考案した。この方法により、工事前に定量されたプルトニウム量が、工事期間中も変化していないことを証明できる。

更新工事には、粉末が少量付着した古い設備をグローブボックス外に搬出し低放射性固体廃棄物とする作業も含まれるが、このような作業が予定されておらずプルトニウム量が全く変化しないグローブボックスが3基あった。そこで、設備更新と保障措置を両立させるため、これらのグローブボックスに対するホールドアップ監視システム(HMOS: Holdup Monitor System)を開発・設置した。更新対象グローブボックスについては、工事前のクリーンアップによって、ホールドアップを可能な限り低減した。

本技術報告では、ホールドアップ監視システムの設計から査察への適用、データの解析結果までをまとめた。

2. 装置の概要

2.1 検出器の設計概念

ホールドアップ監視システム(HMOS)の開発に際して、以下の4つの項目に重点を置いて設計を行った。

- ① 工事開始前にGBASで定量したプルトニウム量が工事中も一定に維持されていることを証明するため、同時計数法ではなく、全中性子測定法を採用した。同時計数法では、高い中性子検出効率が必要で、大型検出器が必要となるのに対し、全中性子測定法では、検出器が小型化でき、グローブボックス上の狭いスペースに組み

込んで連続監視が可能となるからである。

- ② 核物質の転用やグローブボックスからの抜き取りに対し、感度よく検知できるようにするため、中性子検出器をグローブボックスの上下に設置し、グローブボックスのあらゆる場所からの核物質の抜き取りや転用に際し感度よく検知できるようにした。
- ③ 連続監視装置・査察機器としての機能を果たすために、無停電電源装置を設置し、検出器及びキャビネットに査察用封印が取付けられるようにした。
- ④ 開発コストを抑えるために、ハードは既存のものを改造し、ソフトは実際に査察現場で使用されているものをそのまま用いた。

以上の設計概念を反映させて、ホールドアップ監視システム(HMOS)を開発した。その概念図を図2に示す。P14B01と表されているものがグローブボックスであり、その上下を中性子の検出器で挟み込むようなシステム構造で、3基のグローブボックスにそれぞれHMOSを1セットずつ設置した。

2.2 中性子検出器

写真1にグローブボックス天井に設置した中性子検出器(Type A)を、写真2にグローブボックス下部に設置した中性子検出器(Type B)をそれぞれ示した。Type A検出器は、燃料集合体用に市販されている中性子検出器の一部を利用し、工程室の高いバックグラウンド中性子を低減するために、高密度ポリエチレンとCdで遮蔽を施した。

Type B検出器は、図2に示したようなグローブボックス下部の、グローブボックス遮蔽体との間の非常に狭いスペースに設置するために、特別に設計・製作したものである。Type Aと同様に、バックグラウンド中性子を低減化するためにポリエチレンとCdの遮蔽体を設置した。Type A中性子検出器は6本の ^3He 気体充てん管、Type B検出器は1本の ^3He 気体充てん管で構成されており、1kgPuのホールドアップからの全中性子数の変動を計測するには十分な検出効率を有している。本検出器は、JNCが基本設計を行い、米国キャンベラ社が詳細設計及び製作を実施したものである。

表1には、従来の測定装置(GBAS)とホールドアップ監視システム(HMOS)の比較を一覧表

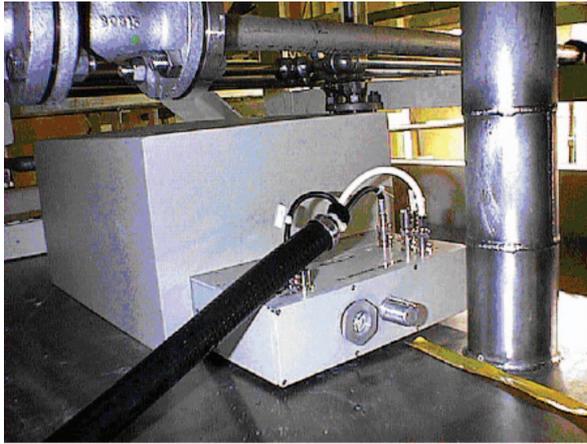


写真1 Type A検出器【天井設置タイプ】

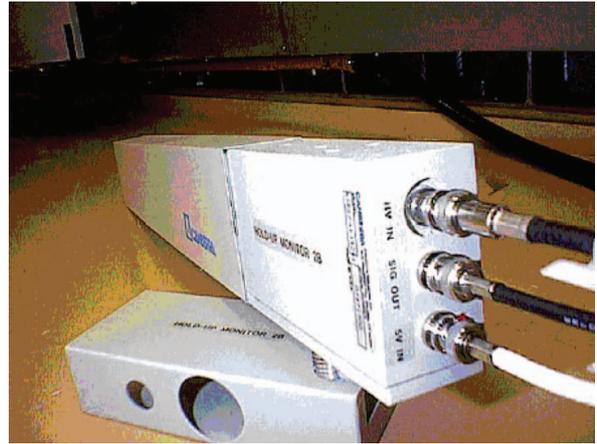


写真2 Type B検出器【GB下部設置タイプ】

天井

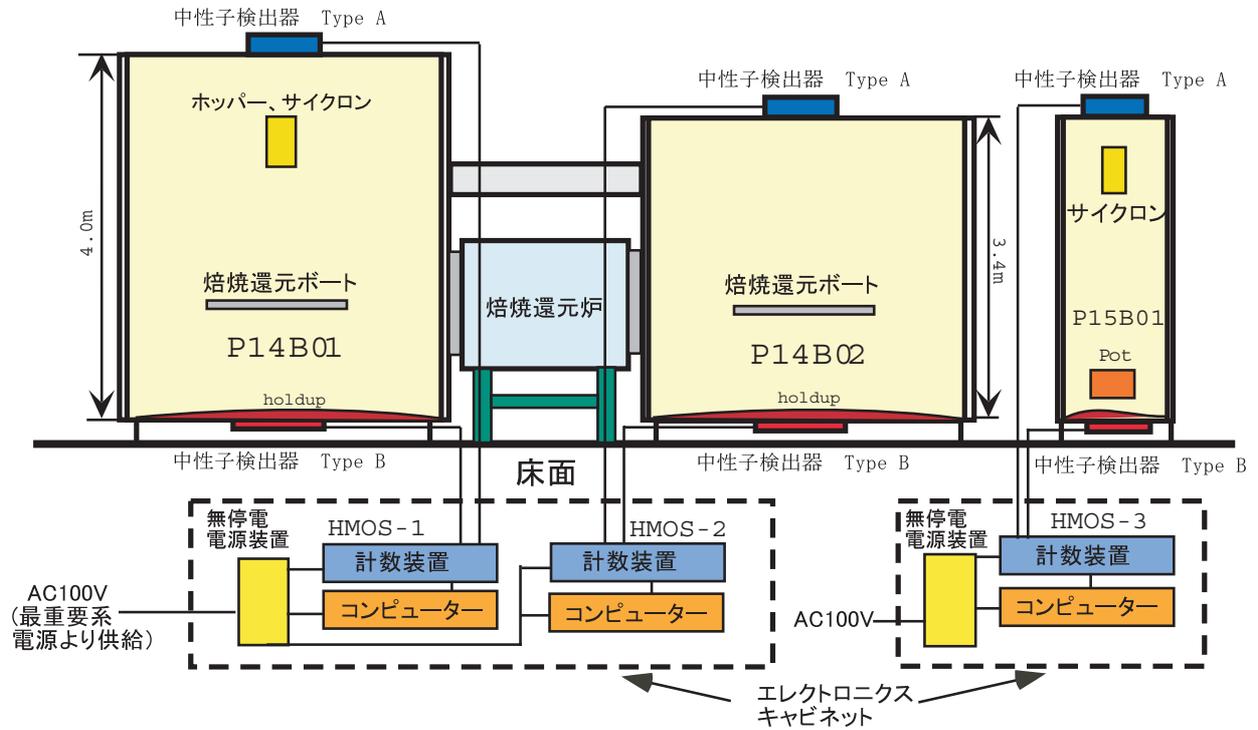


図2 ホールドアップ監視システム (HMOS) の概念図

表1 GBASとホールドアップ監視システム (HMOS) の比較

	GBAS	HMOS
測定方法	同時計数法	全中性子法
検出器外形寸法	170cm(H)×100cm(L) ×8cm(W) 二枚一組	50cm(L)×33cm(W)×20cm(H) (Type A) 70cm(L)×9cm(H)×5cm(W) (Type B)
(γ, n) 反応の影響	原理的になし	大きい
BG中性子の影響	有り	高密度ポリエチレンにより遮蔽
中性子検出効率	約5%	1.2%(Type A)及び0.12%(Type B)
質量	約200kg/1枚	Type A: 約12kg, Type B: 約2kg

にしてある。GBASがプルトニウムの定量を目的としたものに対し、HMOSは定性的にプルトニウム量を監視すること、小型かつ軽量で工事に影響を与えないことを目的としていることから効率は低いものになっている。

2.3 計数装置及び解析コンピューター等

検出器と計数装置及び解析コンピューターの接続状態は図2の概念図に示したとおりである。計数装置は、同時計数法によるプルトニウムの定量に用いられていたキャンベラ社製のJSR 12シフトレジスターの計数回路を用いた。JSR 12は2つの信号入力ポートを有しており、Type A検出器からのパルスの主端子に入力し、Type B検出器からの入力を副端子にそれぞれ入力し、全中性子の連続測定に適用した。高圧電源(1,700V)・増幅回路用電源(+5V)及び出力信号用ケーブルの3線でJSR 12と検出器間は接続されている。ケーブル長は12m程度であり信号の減衰を考慮するとこれ以上長くできない。ノイズ影響防止対策として、出力信号ラインケーブル等は、コンジットパイプ中に収納した。解析コンピューターはJSR 12とRS 232C端子間で接続し、ソフトウェアによるJSR 12の制御等を実施している。機種は、Toshiba製B5サイズノート型のものを採用し、OSはWindows3.1である(DOSベースで連続データ収集ソフトを稼働させるため)。周辺機器を含めたキャビネット内の構成を写真3に示した。

2.4 データ収集・解析ソフトウェア

連続モニタリングを実施するソフトウェアとして実績のあるLANL製SR COLLECTを用いた。解析用ソフトウェアは、LANL製SR GRAPHをそれぞれ用いた。

2.5 周辺機器

電源喪失時のシステムダウン、データ喪失を防止するために、施設の準重要系からの電源供給及び無停電電源装置による瞬停時のバックアップを構築している。その他、印字装置を付属させたほか、キャビネット及び検出器は、人為的な改造や、機器変更を防止するため、査察側の封印が取付けられる構造になっている。



写真3 制御キャビネット内構成

3. HMOSの性能

3.1 測定値のばらつき

HMOSを設置したグローブボックスは、図2の概念図に示したようにP14B01(HMOS 1)、P14B02(HMOS 2)、P15B01(HMOS 3)の3基である。図3にHMOS 3から得られた計数値を規格化したものを示してある。計数値のばらつきはHMOS 1のもので $\pm 0.16\%$ (1 σ)程度、HMOS 3のもので $\pm 0.18\%$ (1 σ)程度である。計数値がわずかに上昇しているのは、Pu 241の崩壊によりAm 241が生成し、中性子の放出数が増加するためであり、定性的に説明できる。また、計測器のゆらぎや湿度変化により変動中心のずれが観測されるも

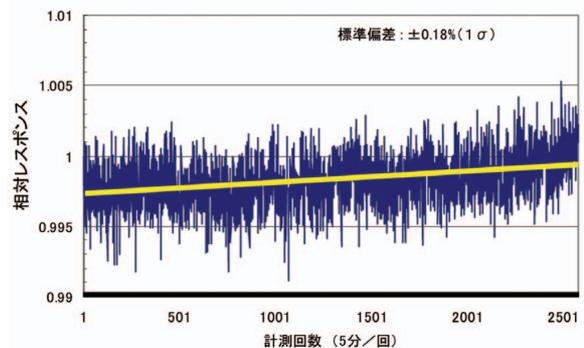


図3 HMOS 3天井検出器(Type A)の計数値のばらつき

の一定した計数値のばらつきがあることが分かった。このばらつきは、本システムの感度（プルトニウム量の変化の検出感度）を大きく決定する。

3.2 感度

ホールドアップ監視システム（HMOS）がどの程度の感度を有しているのかを調査するために、グローブボックス内に既知量のプルトニウム粉末を配置し、Type A（天井）及びType B（下部）検出器の測定値の変化から、プルトニウム量の変化に対する検出限界を計算により算出した。図4に示したようにHMOS 1において位置を1～5までそれぞれMOX粉末（MOX中のPu:126g）を配置した。そのときの計数値の増加をType A及びType Bについてそれぞれ表2に示した。感度は、通常の計数値のばらつきを正規分布とした場合、その3σ限界以上の計数値の変動が検出された場合として評価した。その量は表2中の検出限界値で示した。これによれば、3σでHMOS 1は1690gPu、HMOS 2は1329gPu、HMOS 3は866gPuの感度をそれぞれ有していることが分かった。HMOS 2,3については、グローブボックスの高さ

がHMOS 1に比べて低いことから、より良好な感度を有している。表2によれば、下方向に粉末を移動させた場合、Type A検出器の計数値は減少し、Type B検出器の計数値が上昇するのが分かる。この場合、中心付近の感度が上下端の約2割と最も低下するが、上下方向を検出器で挟むようなシステムをとり、グローブボックス全体での感度低下を補っている。表中のcps/gPuは、計数値の増加分（粉末を入れたときの計数値 - 何も入れていないときの計数値）を粉末中のPu量（126gPu）で除したものである。つまり、1gPuあたり何カウント計数するかを示している。何も入れていない状態で、1点データ（cps）を採取するのに300秒測定実施した場合、そのデータのばらつき（標準偏差）は±4.84cps（Type A）であるから、その誤差範囲を超える（3σ）プルトニウム量は、例えば4.84cps/0.81(cps/gPu) = 18gPuとなり、1番目の位置における感度が、18gPuとなる。グローブボックスにより異なるがシステムとしては、両検出器を合わせたもので評価するため、16gPu～90gPuの感度を有することが分かり、核物質の移動に対し敏感に検知することが技術的に可能となった。

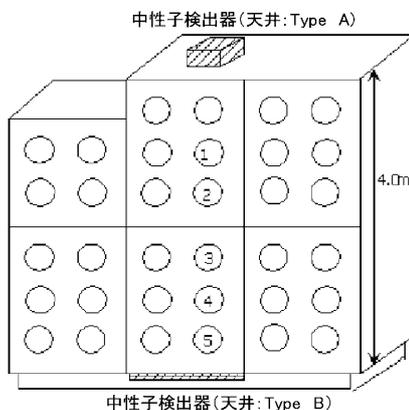


図4 感度測定用試料配置図(番号はサンプルの位置)

4. 測定データ解析

4.1 連続測定データ

図5は、1998年6月の実在庫検認時から1999年7月の工事終了時までのホールドアップ監視システム（HMOS）の連続測定記録を初期値を1として規格化したグラフを示した。これによれば、脱硝体を測定しているHMOS 1（Type A）検出器の計数値がおよそ1年間で35%、HMOS 1（Type B）では15%それぞれ上昇傾向が観測されているのに対し、他の検出器は10ヵ月でおよそ5～8%程度の上昇であった。

表2 感度測定結果

サンプルの位置	Type A検出器				Type B検出器				GB当たりの検出限界値(3σ; gPu)
	全中性子計数値(cps)	標準偏差(± cps)	1 gPu当たりの計数値(cps/gPu)	検出限界値(3σ)(gPu)	全中性子計数値(cps)	標準偏差(± cps)	1 gPu当たりの計数値(cps/gPu)	検出限界値(3σ)(gPu)	
なし	3,129.35	4.84			1,072.96	2.11			
1	3,231.50	3.28	0.81	18	1,065.40	1.88	-0.06	NA	18
2	3,181.60	3.26	0.41	35	1,076.70	1.89	0.03	211	35
3	3,149.90	3.24	0.16	91	1,082.20	1.90	0.07	90	90
4	3,138.00	3.23	0.07	207	1,093.60	1.91	0.16	40	40
5	3,139.00	3.23	0.08	182	1,123.20	1.93	0.40	16	16

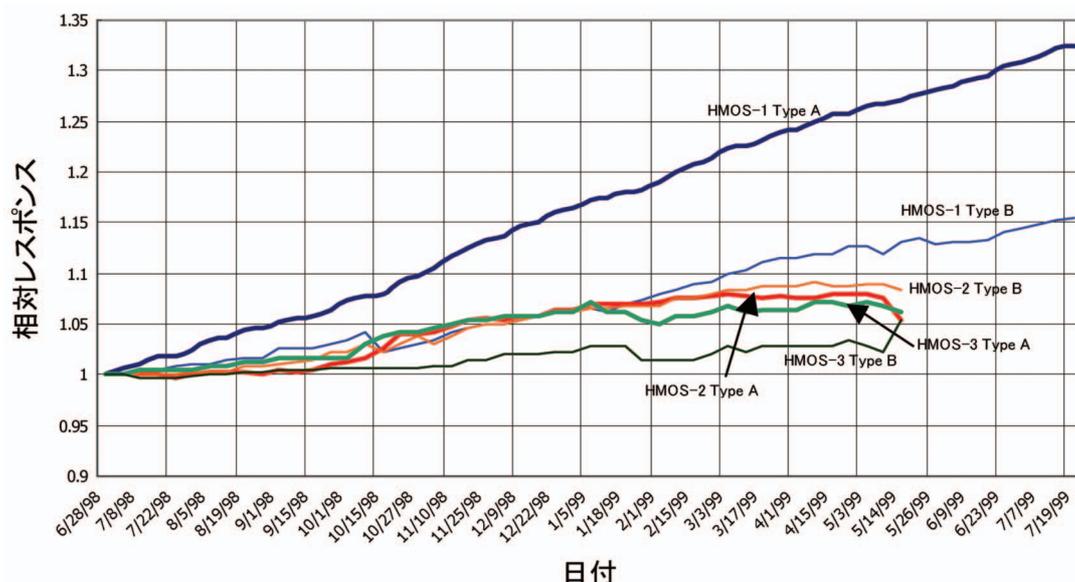


図5 HMOS連続測定データ（1998年6月～1999年7月）

この測定期間中、計数値の著しい減少は観測されておらず、バグアウト作業等による核物質のグローブボックス外への移動又は転用がなかったことを示すことができた。モニターである以上、計数値は一定で推移することが望ましいが、MOX粉末中への不純物（水分等）の影響や、核的崩壊により、計数値は必ず上昇傾向を示す。また、実際は、グローブボックス内の湿度変化により計数値がなだらかに変化（変化後はもとに戻る）したり、グローブボックス内の容器の移動等により段階的に変化したりすることが観測されている。これらの計数値の変化は、以下の4つの要因に基づくことを明確にすることで、ホールドアップ量が一定であることを査察側に示すことができた。

4.2 グローブボックス内の湿度変化による計数値の変動

転換施設内は常時空調管理を行っているが、季節の変化、空調設備のメンテナンス及び工程室内に大勢の人間が居る場合、工程室の湿度や温度が上昇し、その空気を直接取り入れているグローブボックス内の湿度や温度が変化する。図6は、ある期間におけるグローブボックス近傍の温度と相対湿度の経時変化を示したものである。湿度は21%～62%まで大きく変化しており、温度は25付近で安定していることが分かる。転換施設は年間を通じて温度がほぼ一定のため、空気中に含ま

れている水蒸気の重量は、相対湿度値に比例しているともみなすことができる。

一方、図7には温度・湿度変化のグラフと同時期における、グローブボックス内のホールドアップ監視システム（Type A 検出器）による計数値の経時変化を規格化して示した。これによれば、図6の湿度変化とは対照的に、湿度が上昇すると計数値が減少し、湿度が下降すると計数値が増加し、もとの値になることが観察できる。Type B 検出器の計数値の変動がわずかなことから、これは湿度増加に伴い、ホールドアップ粉末と検出器間（1～4 m）の空気中に軽元素（水分）がより多く含まれたことによる中性子との散乱もしくは吸収による相互作用によるものと考えられる²⁾。湿度変化40%で計数値の変動はおよそ2%程度である。湿度変化による計数値の変化は段階的ではなかなだらかな変化であることから、通常のグローブ作業におけるプルトニウムの移動等による有意な変化ではないことが確認できる。

4.3 グローブボックス内機器・粉末の移動による計数値の変動

グローブボックス内のホールドアップ量を変化させない場合でも、一時的な保守作業により、グローブボックス内でプルトニウムが付着している固体廃棄物や機器を移動させることがある。こういった作業を行った場合、検出器からプルトニウ

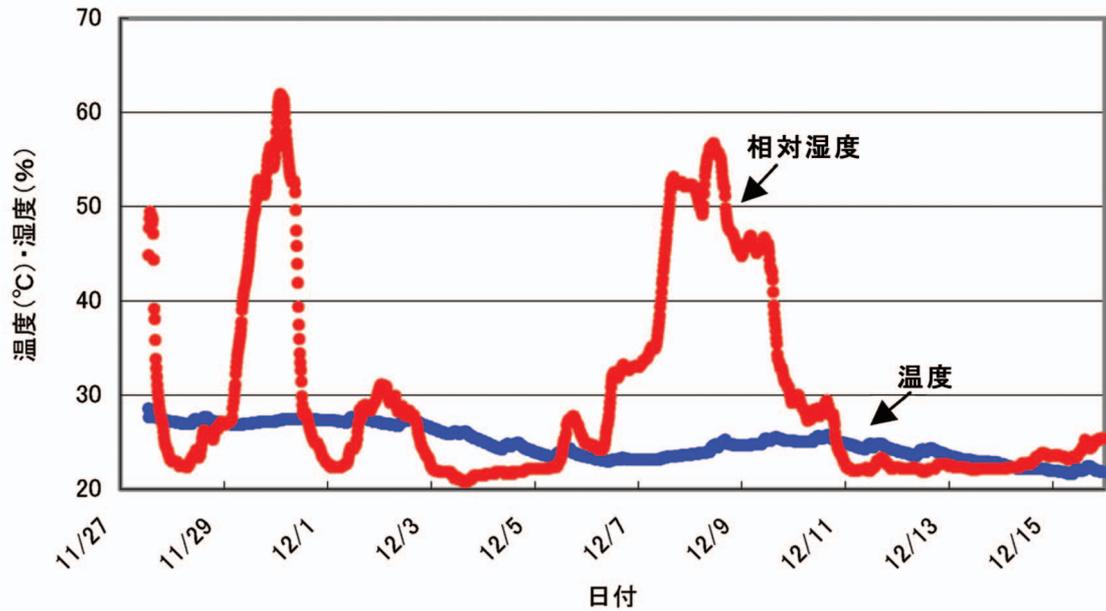


図6 ある期間における温度及び湿度の経時変化

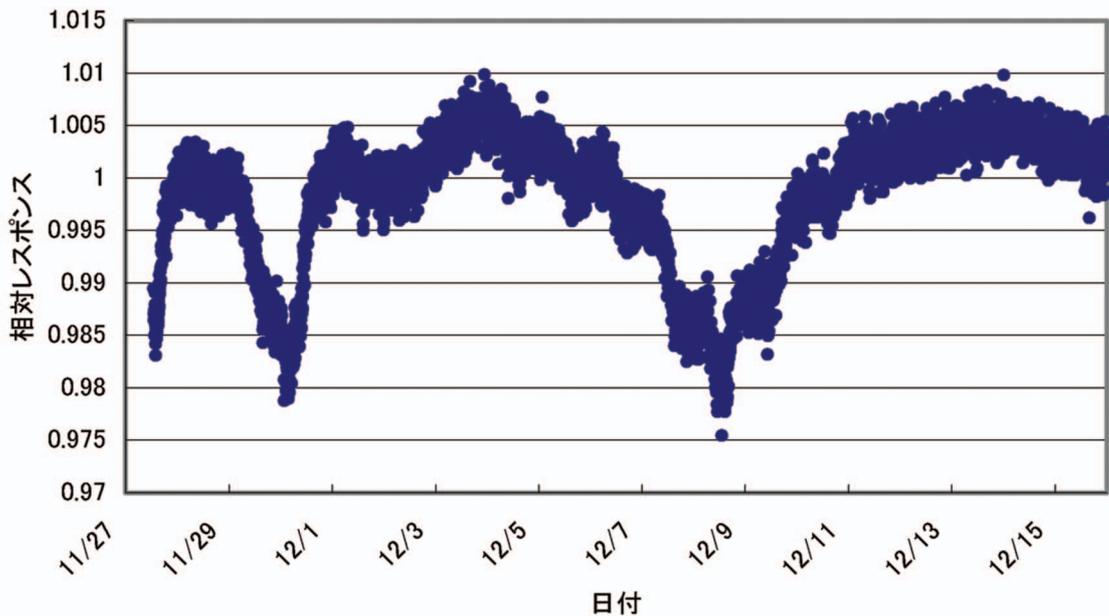


図7 図6と同期間におけるホールドアップ監視システムの計数値の変動 (Type A 検出器)

ムが付着した廃棄物等までの距離が短時間のうちに変化するため、計数値に段階的な変化を観測することができる。湿度変化によるなだらかな変化とは異なり、段階的な変化が表れる。図8は、グローブボックス内でプルトニウムが付着している機器を移動させたときの時間に対する計数値の変化を示したものである。これによれば、段階的(階段状)の変化が数箇所観測でき、グローブボッ

クス内の物の移動であることが分かる。ホールドアップ監視モニターの感度に満たない量の移動については検出することができない。検認を行う上では、これらの作業が何を実施した結果によるものかを、作業内容・日時・移動であれば方向を詳細に記入した作業記録を検認の前に査察官に申告する必要がある。

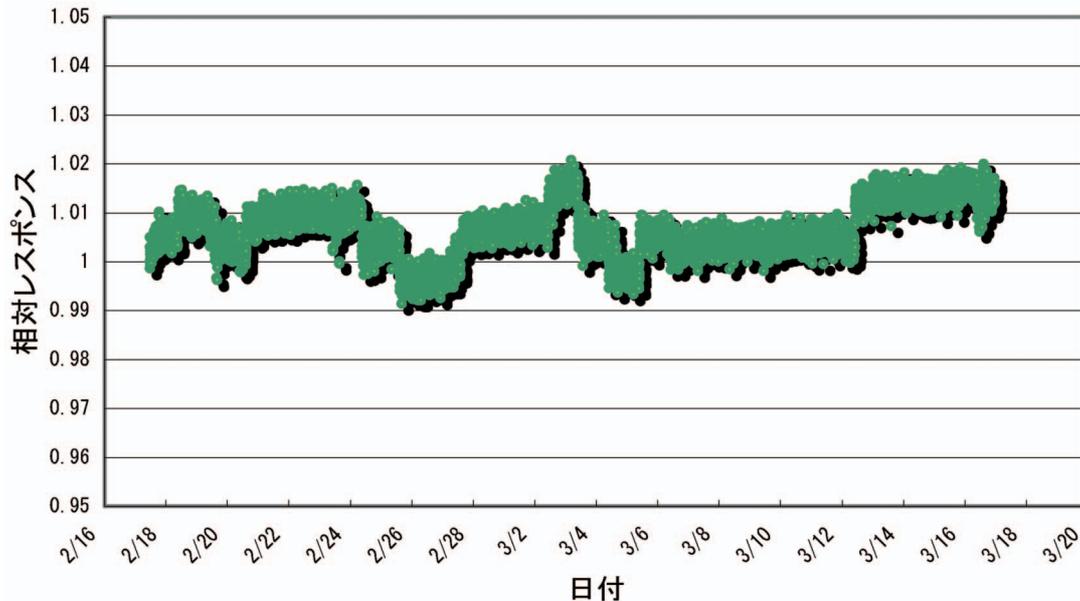


図8 グローブボックス内機器・粉末の移動による計数値の変動グラフ

4.4 脱硝粉末の吸湿による計数値の変動及び核的崩壊による計数値の変動

P14B01のホールドアップ粉末は、脱硝後の粉末であり、吸湿性が還元熱処理の粉末に比べより高い性状をもっている。これに対しP14B02、P15B01の粉末は還元熱処理を行っていることから、比較的流動性がよく、ほとんど水分含有率も変化しない。図5に示したようにHMOS 1(P14B01)の計数値はおよそ387日間でType Aが32.4%、Type Bが15.5%それぞれ上昇した。またHMOS 2(P14B02)の計数値はおよそ321日間でType Aが5.3%、Type Bが8.4%、HMOS 3(P15B01)の計数値は321日間でType Aが6.3%、Type Bが5.5%の上昇傾向がみられた。全体的に共通して主に崩壊(^{241}Pu 、 ^{241}Am)による線放出増加による ^{18}O の(γ , n)反応の確率が増加したことによる中性子数の増加で、解析した結果、およそ1年間で5%未満と考えられる。

HMOS 2及びHMOS 3においては、含水率及び吸湿性の低い粉末であることから、吸湿による影響はほとんどなく、計数値の増加の主要因が核的崩壊によるものであることが分かった。HMOS 1については核的崩壊分約5.5%(387日)を差し引いてもType Aで26.9%及びType Bで10.0%の増加が確認できる。この増加の主要因は、脱硝粉末の吸湿特性によるもので、乾燥状態の PuO_2

(25% ^{240}Pu)に6 wt %の水分が付加された場合、24%の(γ , n)反応に関する中性子が発生することが報告されている³⁾。よって、脱硝後のホールドアップに水分等が付加し、結果的に24%程度の計数値の上昇が生じたものと考えられる。

一方、Type AとType Bの計数値上昇率の違いは、ホールドアップ粉末のグローブボックス内の分散状態及び検出器の位置等に依存したものと推察される。

5. 総括

ホールドアップ監視システム(HMOS)を開発、設置、運用することにより、設備更新工事の安全確保ならびにホールドアップの在庫検認を両立することができた。HMOSは、一般的にプルトニウムを定量するために使用している同時計数法を採用するのではなく、全中性子法を新たに採用した。全中性子法は、中性子のバランスが変化すると敏感に計数値が変化するので、この種のモニターには最適な選択であると考えられる。

ホールドアップからの中性子は、グローブボックス内の湿度変化により計数値が連続的に、グローブボックス内プルトニウム付着物の移動により、計数値が段階的に変動することが分かった。その他、計数値が連続的に上昇している傾向が観測され、これらは、脱硝粉の吸湿効果による粉末

中の不純物としての水分含有率が上昇したこと、主に²⁴¹Puの核的崩壊による(α, n)反応による中性子発生数の増加によることが分かった。ホールドアップ監視システムの中性子検出器の効率は1%程度ではあるが、8~90gPuの有為なプルトニウム粉末のグローブボックス外移動に関する高い感度を有しており、およそ1年間の更新工事期間中の一定量プルトニウム在庫を問題なく監視することに成功した。

HMOSは、固体廃棄物の移動を伴わない程度の範囲でグローブ作業及び連続操業を可能とするほか、HMOSでグローブボックス中のプルトニウム量を連続的に把握するとともに、機構が開発したGBASで定期的にプルトニウムを定量することに

より、グローブボックス内プルトニウム在庫に対する保障措置を効率的に強化できると考えられる。

6. 謝 辞

本装置を査察機器として運用するにあたり、貴重な技術的助言を頂いたロスアラモス国立研究所(LANL)のDr. H.O.Menlove氏に深く感謝致します。

参考文献

- 1) D. Reilly, et al., "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials", 457-491(1991)
- 2) D. Reilly, et al., "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials", 357-377(1991)
- 3) D. Reilly, et al., "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials", 407-418(1991)