

J-PARC 中性子源ターゲット設備系気体吸収処理システムのための基礎的試験研究

STUDY OF ELEMENTAL TESTS FOR GAS TRAP AND TREATMENT SYSTEM OF SPALLATION MERCURY TARGET SYSTEM OF J-PARC

若井 栄一^{#, A)}, 木下 秀孝^{A)}, 涌井 隆^{A)}, 直江 崇^{A)}, 花野 耕平^{A)}, 根本 英幸^{A)}, 羽賀 勝洋^{A)}, 粉川 広行^{A)},
高田 弘^{A)}, 白石 啓宜^{B)}, 石川 幸治^{B)}, 加藤 剣一^{B)}, 伊藤 剛士^{B)}

Eiichi Wakai^{#, A)}, Hidetaka Kinoshita^{A)}, Takashi Wakui^{A)}, Takashi Naoe^{A)}, Kouhei Hanano^{A)}, Hideyuki Nemoto^{A)},
Katsuhiko Haga^{A)}, Hiroyuki Kogawa^{A)}, Hiroshi Takada^{A)}, Hiroki Shiraiishi^{B)}, Kouji Isikawa^{B)}, Kenichi Kato^{B)},

Tsuyoshi Ito^{B)}

^{A)} J-PARC Center, JAEA,

^{B)} Kaken, Co. Ltd.,

Abstract

This study shows a research of the elemental tests for gaseous element treatment system of a spallation mercury target system of J-PARC. A new test instrument of gaseous element trapping system for tritium, Xe and Kr, etc was designed and manufactured for the tests. Some elemental tests using the instrument were performed, and the trap efficiency of hydrogen was very high and confirmed to be less than DF1000 (DF: Decontamination factor) in a relatively short time.

1. はじめに

J-PARC センター物質・生命科学施設 (MLF) [1] の中性子源の水銀ターゲット容器 (Fig. 1) は、水銀や水に対する耐食性の高い SUS316L 鋼で製作されているが、大強度の高エネルギー陽子ビームにより運転中に疲労損傷や照射損傷などの影響を受けて材料特性が劣化 [2] するので定期的に交換される。このターゲット容器は陽子ビーム及び核破砕中性子の照射を受けて放射化する。使用済みのターゲット容器は保管容器に収納し、一時的に保管する。施設の持続的な運転のためには、使用済み容器の最終処分を道筋まで明確にし、管理することが重要である。現在の保管スペースの容量、使用後の機器を廃棄物としてバックエンド側では受取りの寸法、重量及び放射線量の制限から、水銀ターゲット容器のような

大型機器は、将来的に減容化や分割化などの対応が必要である。また、使用後の機器の詳細な状態検査や機器の耐久性能確認のためにも照射後試験は重要であり、切断装置などによって調査サンプルを加工する技術が必要である。

このため、使用済みの水銀ターゲット容器は、管理や作業しやすい適当な大きさや線量になるように減容化や加工を行っていくことが重要である。このような作業を行う際、切断体積や温度に依存して、容器の表面や内部から気体状の放射性物質が発生することが予想されているため、トリチウムを主とする気体などの放射性物質が飛散しないように吸収などの処理をして、より効率的なシステムの検討が必要である (Fig. 2) [3]。

最近の米国の核破砕中性子源の水銀ターゲットでは容器の側部に近い場所に損傷が生じた報告もあるので、損傷の原因解析のために、切断する部位を拓げることが

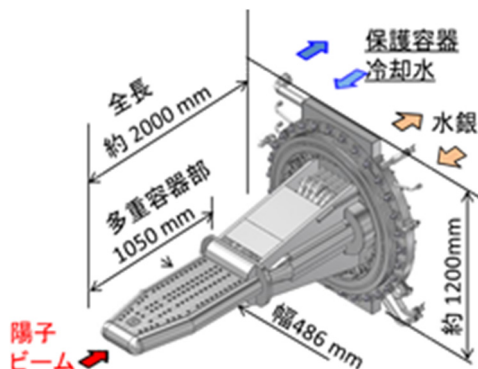


Figure 1: Schematic image of spallation mercury target 316L steel vessel (module).

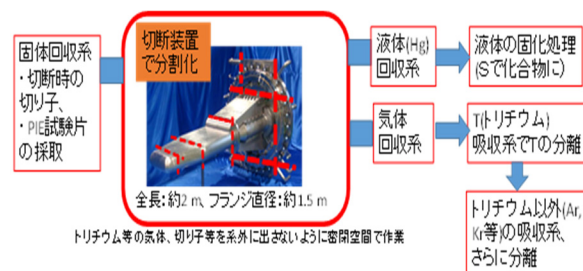


Figure 2: Conceptual design configuration for cutting device of the mercury vessel set in the closed space equipped with liquid and gas trap systems.

[#] wakai.eiichi@jaea.go.jp

計画される。そのようなサイズの大きな切断を実施する場合、水銀ターゲット容器を全体的に覆って気体状放射性物質を飛散させないようにして、放射性物質(気体、液体、固体の切粉など)を吸収・処理できるシステムが必要となる。本研究では、このような放射性物質を吸収と処理するシステムの基本設計、モデル機の製作、並びに、その基本となる機能試験を実施し、その有効性を調べた。また、気状廃棄物の処理には、トラップ効率と冷却効率を上げて装置をできるだけ小型化できるように設計を工夫し、その基本的な機能性試験をして設計の有効性を併せて確認した。

ここで発生する気体状の放射性物質には、トリチウム、キセノン、アルゴン、クリプトン、キセノンなどが想定され、これらの気体は、物性が異なることから、それぞれの気体の種類ごとに、回収して分けて処理するシステムを構築する必要がある。

富山大の松山氏らのトリチウム回収研究では、トリチウム除去設備は、実験室のグローブボックス内で排気ガス中のトリチウムを除去する排出ガスのトリチウム除去系と、トリチウム貯蔵ベッド(ZrCo合金による水素化物として貯蔵)を納める、グローブボックス雰囲気中のトリチウムを除去するグローブボックストリチウム除去系から構成されるシステムを構築した例が報告されている。また、いずれの除去系も、トリチウムを酸化する触媒塔と、トリチウム水を吸着除去する乾燥塔、乾燥塔再生システムから構成されたシステム例が示されている[4]。

希ガスのKrの回収[5]やXeの回収[6]の研究報告では、基本的にトリチウム回収と、基本的には別な方式が採用されている。Kr回収の研究では、活性炭とモレキュラーシーブについての吸着性能が調べられていて、活性炭(ツルミ-GLS)はXeの吸着法にも有用性が述べられている。また、Xe回収関係では、Xeを選択的に吸収する吸着材として、Na-X型あるいはCa-X型ゼオライトを用い、Xe-Kr混合ガスからXeを加圧下で吸着できるが、常温・常圧、または常温・低Xe分圧において高効率にXeを直接回収することは困難であることなどが報告されている。

2. 装置の主な設計仕様

モデル機を製作するにあたり、以下の条件を満たす設計とした。

- 吸引気体条件は、ホット施設セル内の温度 25℃/相対湿度 50%と設定する。
- モデル機の処理流量は実機の吸引流量 1.2m³/minの約 1/40 とする。
- モデル機出口露点温度を-60℃以下になるように設計する。モデル機出口のトリチウム除去効率を基本的に DF100(DF: Decontamination Factor)とするが、

トリチウム濃度が低いとトリチウムの除染効率による評価が難しいため、十分な検討を要する。

- 切断中及び作業後数時間は連続的にトリチウムを回収できる性能を有する。

切断などを行う際、容器から出てくる水銀蒸気や微粒子などをトラップするフィルターをトリチウム回収系の上流側に設置する必要がある。また、ワンスルーでは処理が困難と考えられる場合、循環処理(タンクなどに一時的に貯蔵)などを考慮する必要がある。本処理システムは、物質の融点や沸点、触媒や吸着法などを利用して、システムの検討を進めている。Figure 3 に示すように、まず、水銀蒸気をフィルターで除去した後、トリチウムは基本的に、放射性気体回収のシステム概念において、前段の回収系で回収する。次に、アルゴンやクリプトン等の他の気体を回収するシステムについて、その基本設計を構築する。回収したトリチウムなどは気体の場合、2重などの

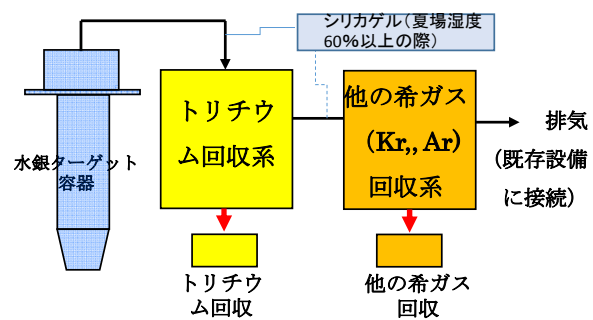


Figure 3: Gaseous elements trap system for the mercury target module (vessel).

密閉構造を持つ容器に保管するが、本システムは、管理区域の気体排気系設備に接続させることを想定している。

トリチウム回収系については、トリチウムを酸化反応器(貴金属(Pt/Pd等)触媒反応器等で例えば、500℃でHTOに)などで反応させたあと回収するが、よりコンパクトな装置となるように十分な検討を行う必要がある。ここでは、下記のようなシステムを想定している。セル内の温湿度を25℃/50%と想定する。水状にしたトリチウムをコンプレッサーで加圧して水分を除去(露点:-15℃)させ、除湿膜を通して露点温度、約-50℃にして水分をさらに除去する。さらに、モレキュラーシーブ(MS)で水分を除去(露点-60℃)させる。このようなシステムを構成することによって、トリチウム回収系のシステム全体のサイズをコンパクト化させる。MSについては、バックエンドに引き取り可能なサイズ(200 Lドラム缶)内に収まるサイズが適当であり、かつ、容易に交換可能なものを想定している。システム設計の際には、トリチウムを安全に取り扱いができるだけでなく、本システムを構成する各機器(特に、放射線

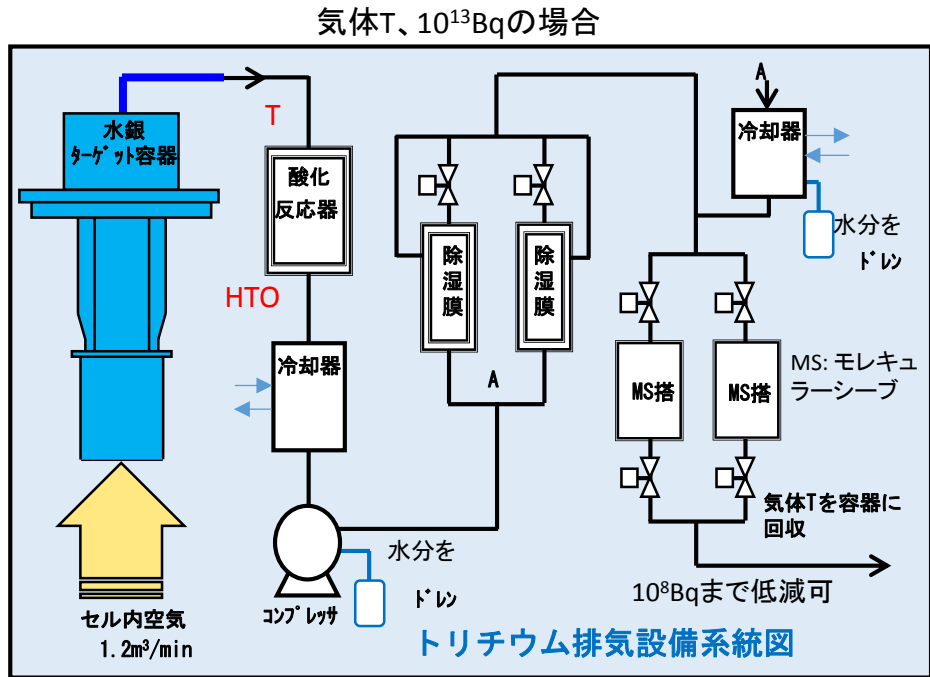


Figure 4: Schematic image of the system diagram for tritium trap.

の線量が高くなる部位)が交換できるように、かつ、バックエンドへの引き取りが可能なものになるような十分な検討を行っていくことが重要である。また、キセノン、アルゴンやクリプトン等の気体は深冷除去を想定するので、装置の設計はこれらを考慮したシステムとした。トリチウム回収系の構成例をFig. 4に示す。

3. モデル機の製作と性能評価

本モデル機で吸引したガス中に含まれる水蒸気及び水素を水の形態でワンスルー回収する装置である。

装置に吸引される気体状トリチウムは、酸化触媒(白金アルミナ)を充填した酸化反応器へ通気させることにより、水状トリチウムに酸化させる。次に、コンプレッサー式ポンプで加圧しエアドライヤーに通気させることで水状トリチウムをドレン水として回収(露点温度 -17°C)する。ドレン側に移行しなかった水状のトリチウムは除湿膜(ポリイミド製中空糸膜)に通して露点温度約 -45°C まで水分をさらに除去する。このとき除湿膜で分離除去された水分はパージガスによりコンプレッサー式ポンプ入口へ運ばれエアドライヤーのドレン水として回収される。除湿膜を出た気体は、最終段のモレキュラーシーブ塔へ通気し露点温度 -60°C まで水分を除去させ既存設備へ排気する設計を基にモデル機の製作を行った。

本モデル機を Fig. 5 に示す。トリチウム水を一箇所回収することが出来、除湿膜を採用することにより最終段のモレキュラーシーブ塔を小さくする設計方針を採用しているため、かなりコンパクトなサイズ(幅:約 640 mm、高

さ:約 900 mm)の装置であることが分かる。

本装置を用いて、水素除去効率を調べる DF 性能評価試験を実施した。ガス導入口からマスフローコントローラにより水素(H_2)ガス濃度を約 1000 appm を導入し、排気速度を 30 L/分の下、酸化反応器の触媒温度を 100°C 、 200°C 、 300°C 、 400°C の 4 つの条件で実施した。水素は、島津製作所 GC2014 製ガスクロマトグラフ(検出器:TCD)で中高濃度(50-2000ppm)測定用に、タイヨウ製ドライライザーのガスクロマトグラフ(検出器: 半導体ガスセンサー方式)で低濃度(0.1~150ppm)測定用に、前者の試験条



Figure 5: New testing instrument for gaseous elements trap system.

件ではキャリアガスとしてアルゴンを、後者の試験条件では超高純度合成空気をそれぞれ使用した。なお、水素濃度については、基準濃度サンプルを基にし、検量線測定の評価を行い、水素濃度を定量評価している。

本機により試験を行ったところ、酸化反応器の温度上昇に伴い、水素の除去効率が上昇し、比較的短時間で、300°Cにおいても DF100 を満足することを確認した。400°Cでは、さらに効率が上昇し、DF1000 を満足することを確認した。今後、装置の性能限界を調べていく予定である。

謝辞

本研究の遂行に当たり、ご助言を頂いた J-PARC センターの二川正敏副センター長に感謝致します。

参考文献

- [1] H. Takada *et al.*, “Materials and life science experimental facility at the Japan Proton Accelerator Research Complex I: Pulsed spallation neutron source”, *Quant. Beam Sci.* 1, 2017, pp.1–26.
- [2] S. Ishikura *et al.*, “水銀ターゲット容器の破損確率評価解析”, JAERI-Tech, 2005-026.
- [3] E. Wakai *et al.*, to be presented in IWSMT14 held in Iwaki, Nov. 11-16th 2018.
- [4] M. Matsuyama *et al.*, “大量トリチウム取り扱い技術開発 30 年の成果と今後の課題, 4.トリチウム研究拠点の確保, 施設の保守・更新, 人材の確保, 新たな拠点建設をめざして”, *J. Plasma Fusion Res.* Vol.86, No.7, 2010, pp.431-435.
- [5] S. Kitani *et al.*, “吸着法によるクリプトンの回収”, JAERI 1167, 1968.
- [6] Y. Tomiku *et al.*, “Development of Refining Technology of Xe Recovered from Reprocessing Plant Off Gas for Commercial Use”, *サイクル機構技報* No.15, 2002, pp.113-129.