

# 再処理施設における分析廃液配管のバルブシール材の物性評価

Physical property evaluation of valve seal material at analytical radioactive liquid waste storage tanks in reprocessing facility

日本原子力研究開発機構	後藤 雄一	Yuichi GOTO	(Non-Member)
日本原子力研究開発機構	山本 昌彦	Masahiko YAMAMOTO	(Non-Member)
日本原子力研究開発機構	久野 剛彦	Takehiko KUNO	(Non-Member)
日本原子力研究開発機構	稲田 聡	Satoshi INADA	(Non-Member)

## Abstract

Radioactive liquid waste from the Tokai Reprocessing Facility Analytical Laboratory is temporarily stored in intermediate waste storage tanks by using receiving valves. Then, the liquid waste is transferred to liquid treatment facility by using liquid feed valves. The deterioration of the gasket part of these valves (leakage of waste liquid) was confirmed in 2004. Since then, the material of gaskets was changed from polyethylene to polytetrafluoroethylene(PTFE). In 2016, the gaskets were replaced by periodical update. Therefore, physical properties of used gaskets were investigated, and the relevance between radioactive level and degradation degree was evaluated.

**Keywords:** polytetrafluoroethylene(PTFE) gaskets, reprocessing facility

## 1. 諸言

東海再処理施設の分析所では、各工程から採取された放射性の分析試料を1階にある分析セルライン(マニピュレータによる遠隔操作式の遮蔽付き気密ボックス)、グローブボックス等の閉じ込め設備で取扱っている。分析に伴い発生した放射性廃液(主に 0.1~0.5Mの硝酸系で放射能濃度は $1 \times 10^4 \sim 10^8 \text{Bq/mL}$ )は、閉じ込め設備の排水配管から重力流で分析所地下1階の廃液貯槽セル内の2基の中間貯槽に切り替え式の受入れバルブを介して一時貯留された後、送液バルブを介してスチームジェットで廃液処理施設へ移送される。これらの受入れバルブ及び送液バルブには、硝酸への耐腐食性を考慮して、ステンレス鋼(SUS)を構造材としたボールバルブが使用されており、バルブと配管フランジの接合面は、シール材にて密閉されている。

平成16年には、これらのバルブのシール材であるポリエチレン製ガスケット類(シート、グランドパッキン含む)が、30年超の使用による経年劣化でシール性能が低下し、分析廃液がバルブから漏えいする事象が発生した<sup>1)</sup>。このため、事象後にシール材の材質は、従来まで使用してきたポリエチレン製から化学的性質に優れたポリフッ化エチレン(PTFE)製へ変更している。しかし、PTFEは、

放射線照射により分子鎖結合が切断され易く、分子量が小さくなることによる材料特性の著しい低下のため<sup>2)</sup>、ポリエチレンよりも2桁程度、耐放射線性が劣ることが報告されている<sup>3-5)</sup>。

このため、PTFE製ガスケット類の放射線環境下での使用においては、ボルトの締付け応力や経年変化等による通常の劣化に加え、放射線劣化についても考慮する必要がある。一方、これまで放射線環境下で長期間応力が負荷された条件下で使用したPTFE製ガスケット類の物性値に関する報告はなく、劣化度に対する放射線の影響評価は極めて貴重な知見と考えられる。

本件は、平成28年に定期更新を目的とした作業において、回収したPTFE製ガスケット類の物性を調査した。また、ガスケット類への線量率、照射線量及び接触した放射線量の評価結果から放射線と物性の劣化度の関連性について考察した。

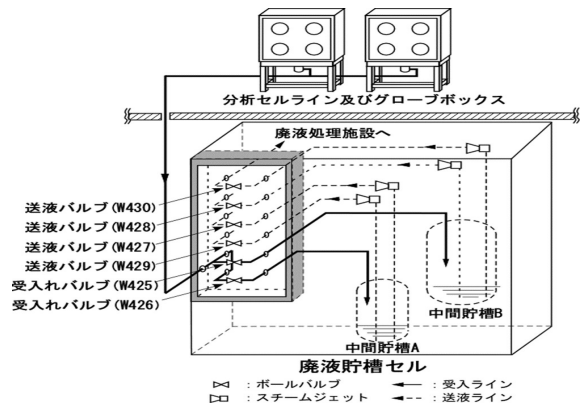


図1 分析済廃液の系統図

連絡先:後藤 雄一、〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33、核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター 施設管理部 分析課

電話:029-282-1111、E-mail: goto.yuichi@jaca.co.jp

## 2. 試験

### 2.1 ガasket類試料

試験で使用したガasket類試料は、東海再処理施設の分析所地下1階の廃液貯槽セルに設置された2個の受入れバルブ及び4個の送液バルブ内から取出したガasket、シート及びグランドパッキンである(図1, 2)。

当該ガasket及びシートは、これまで分析廃液と接触して、平成16年以降、12年にわたり、放射線及び硝酸を主とした化学物質に暴露されてきた。また、グランドパッキンは、駆動部の度重なるバルブ操作により摩耗している可能性がある。なお、試料は、放射性物質に汚染されていることから、密閉された設備であるグローブボックス内に搬入し、物性値等の調査を行った。

リファレンスとして、未使用品を比較評価の対象とした。

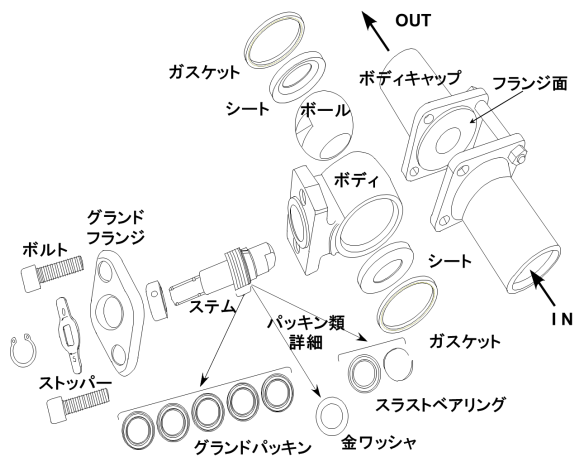


図2 バルブ構成図

### 2.2 外観・寸法調査

各バルブのガasket、シート、グランドパッキンについて、目視によるひび割れ、変色、変形等の損傷状況を観察した。また、ノギス、マイクロメータ等を使用して幅、外形等の寸法を90度刻みに4方向から測定した。

### 2.3 物性値(硬さ、圧縮変形量)の測定方法

各バルブのガasket、シート、グランドパッキンについて、強度の指標となる硬さ、ボルトの締付力による圧縮の影響を表す圧縮変形量を測定した。硬さは、JIS K7215<sup>6)</sup>に準じて、タイプD硬度計(ミットヨ 811-337-10)を用いて、図3に示す5点を測定し、各ガasket類について、その平均値を評価した。

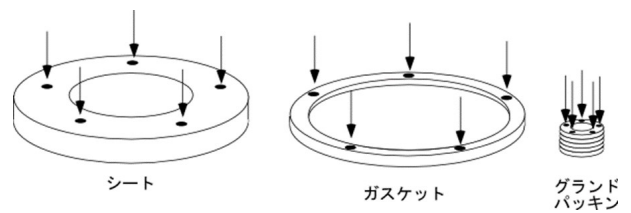


図3 硬さの測定箇所

圧縮変形量は、ノギス、マイクロメータ等を使用して求めた各ガasket類の厚み測定結果を基に、リファレンスとした未使用品との寸法を比較することで、圧縮変形量を以下に示す式(1)から評価した。

$$S_t = \frac{t_0 - t_1}{t_0} \times 100 \quad \text{式(1)}$$

$S_t$  圧縮変形量(%)

$t_0$  未使用品のガasket類の厚さ(mm)

$t_1$  使用済のガasket類の厚さ(mm)

### 2.4 線量率、照射線量、送液量と全放射エネルギー調査

ガasket、シート、グランドパッキンは、電離箱式サーベイメータ(ALOKA製 ICS-321)を使用して、グローブボックスに付帯するビニルバッグ越しに、線量率の測定を行った。なお、PTFEは、化学的性質に優れているものの、他の材料に比べ、耐放射線性に劣ることが知られている(表1)。このため、線量率の測定結果を基に、照射線量について評価した。

表1 各材料の耐放射線性<sup>3-5)</sup>

材料	照射線量(Gy)
ポリエチレン	$1 \times 10^5$
テフロン	$1 \times 10^3$

また、平成16年以降に中間貯槽から廃液処理施設へ送液した履歴を調査し、送液前の分析による全ガンマ線放出核種の濃度値を用いて、各送液バルブを通過した廃液中の放射エネルギーを求めた。これらの結果から、照射線量及び放射エネルギーがガasket、シート、グランドパッキンへ与える影響について評価した。なお、受入れバルブについては、分析セルライン及びグローブボックスからの排水の際、液組成分析は実施していないことから放射エネルギーの評価は対象外とした。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 外観・寸法

全てのガスケット、シート及びグランドパッキンは、長期間バルブのボディ及び配管フランジとの接合面に取り付けられ、応力が負荷されていたが、外観調査の結果、これらにひび割れ、変色、変形等の損傷は確認されなかった。なお、シートの一部には、黒色の汚れが付着していた。汚れは、濡れウエスで容易に除去できるものであり、母材への浸透は確認されなかった(図4)。また、汚れた部分は、線量率測定において最も高い値を示した。このため、汚れは分析廃液のシート表面上への付着であると考えられる。

使用済みガスケット類の寸法は、使用したノギスの精度を考慮すると不確かさの範囲内で未使用品の測定値と一致し、両者に差異は確認されなかった。

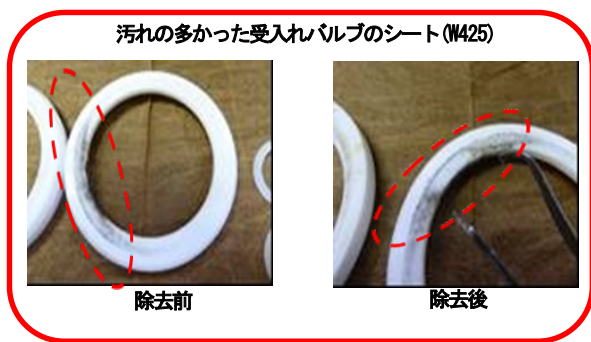


図4 シートの外観の汚れ

#### 3.2 硬さ、圧縮変形量

硬さ測定の結果を図5に示す。この結果より、同種のシール材において、受入れバルブ、送液バルブ間で大きな違いは見られなかった。各シール材について比較してみると受入れバルブ、送液バルブともにガスケットは、リファレンスに対して3~4°の硬化を示していたものの、その値は、PTFEの硬さ指標であるD50~65°<sup>7)</sup>の範囲内であった。これらのガスケットについては、任意に曲げ、ねじれ等の負荷を加えても、ひび、割れ等の発生はなかった。また、受入れバルブ、送液バルブともにシート、グランドパッキンの硬さは、未使用品と同等の値であり、硬化は認められなかった。なお、グランドパッキンでは、他のシール材と比べて測定値にバラツキが見られた。これは、グランドパッキンの外寸が小さく、5枚を重ねて測定したため、重ね方の程度により測定値が変動したものと推察される。圧縮変形量も同種のシール材において、受入れバルブ、送液バルブ間で大きな違いはなかった。

シール材で比較すると圧縮変形量は、ガスケットで3~6%、シートで0~1%、グランドパッキンで4~7%の範囲であり、ガスケット、グランドパッキンでわずかに大きい値を示した(図6)。ガスケット、グランドパッキンは、締付けボルトにより、SUS製のバルブ本体と直接接触するシール材であり、応力が負荷されたため圧縮変形量が大きくなったものと考えられる。しかしながら、シール材の健全性の目安となる具体的な圧縮変形量の値はないものの、各バルブの使用時において、バルブからの廃液の滲み、漏れ等は確認されていなかったことから、最大7%の圧縮変形量は、シール材としての機能を担保する値であったと言える。また、物性値の変化量は小さく、本件で評価した硬化及び圧縮変形の度合いは、密閉性に影響を及ぼすものではないと考えられた。

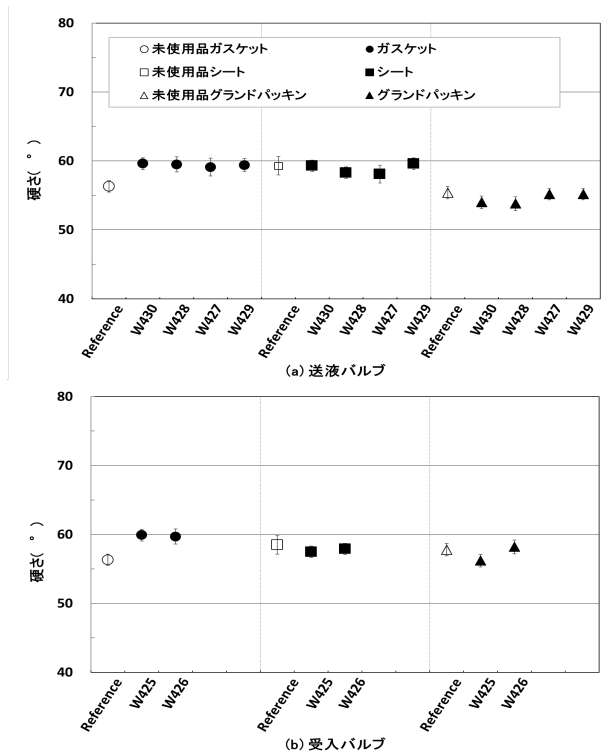


図5 送液バルブ(上)、受入れバルブ(下)の硬さ測定結果

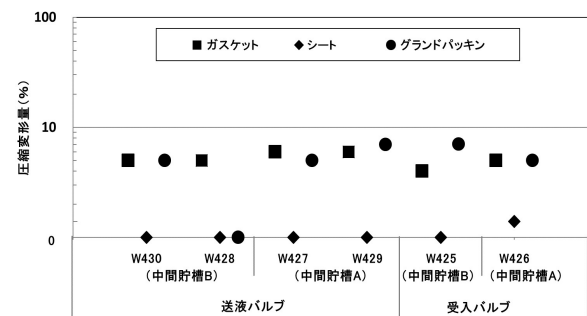


図6 各バルブの圧縮変形量

### 3.3 線量率・照射線量率、放射能量

線量率の測定結果及び送液した放射能量の調査結果を図7に示す。線量率は、各バルブによって大きく異なっていた。分析廃液の受入れバルブ W425、W426 に設置された全てのシール材において、送液バルブよりも線量率は高く、その最大値は約 2000  $\mu\text{Sv/h}$  であった。一方、送液バルブ W427～W430 は、受入れバルブ W425、W426 よりも1桁から2桁低い結果であった。これは、当該受入れバルブ内のガスケット類は、分析セルラインやグローブボックスから高濃度の放射性物質を含む分析廃液が排水時に直接接液する機会が多々ある。一方、送液バルブ内のガスケット類が接液する分析廃液(中間貯槽内廃液)については、分析器具類の洗浄液等により希釈された分析廃液である。これらのことから、送液バルブに比べ放射性物質濃度が高い廃液と接液がある受入れバルブ内のガスケット類の線量率が上がったものと考えられる。

シール材で比較すると全バルブについて、ガスケット、グランドパッキンよりもシートの線量率が高い傾向を示し、物性値の低下が見られたガスケット、グランドパッキンと線量率に相関性は見られなかった。

平成16年から平成28年の約12年間において、廃液処理施設への送液は、各送液バルブ(W427～W430)を使用し、送液回数:130回、送液量:233  $\text{m}^3$ を実施している。そのうち、送液回数、送液量ともに中間貯槽Bの送液に使用されたW428が最も多く、送液回数:114回、送液量223  $\text{m}^3$ で全体の95%以上を占めていた。このため、バルブと接触した総放射能量は、W428が最も高い結果であったものの線量率との関連性はなかった(図7)。

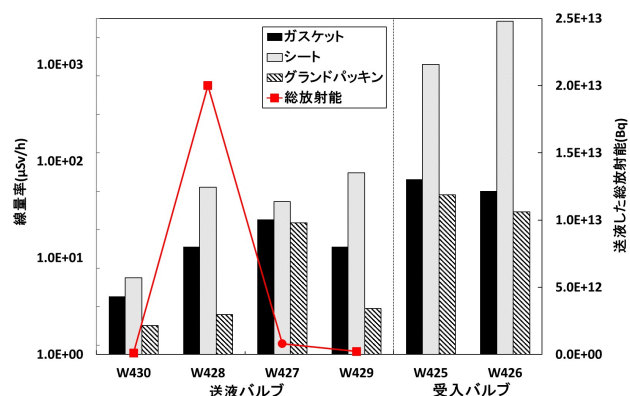


図7 各バルブガスケット類の線量率・放射能量

PTFEは、照射線量が $10^3\text{Gy}$ <sup>5)</sup>の放射線で劣化するが、線量率の測定結果で得られた最大線量率が12年間照射されたと仮定して評価した推定照射線量は、最大でも約 $10^2\text{Gy}$ であり、これを下回る値であった。すなわち、当該分析廃液のような放射性試料との接触におけるシール材の照射線量は、材料であるPTFEが劣化するレベルには至っていなかったと言える。なお、硬化、圧縮変形等の物性値の変化は、バルブ間で確認されず、物性値の変化と放射能量についても相関性は見られな

かった。これらのことから、締付け応力が負荷された条件においても、この程度の照射線量ならば放射線が硬さや圧縮変形量の物性値の変化に与える影響は殆どなく、物性値の変化は締付けボルトによる圧縮応力に起因することがわかった。なお、本件で確認された物性値の変化は、締付け応力の長期間負荷に伴う経年変化によるものと推測されたため、密閉性能を維持するためには、ナットの増し締めを定期的に行い、適正なトルク管理を実施していくことが重要と考えられる。

### 4. 結言

東海再処理施設の分析廃液中間貯槽の受入れバルブ(W425、W426)、送液バルブ(W427～W430)に12年間取り付けられていたシール材であるガスケット、シート、グランドパッキンについて、外観、寸法を確認し、物性値である硬さ、圧縮変形量を測定した。その結果、一部のバルブのシートで外観に若干の汚れが見られた。物性値は、バルブ間で違いは見られなかったが、シール材の種類で比較するとガスケットで硬化及びガスケットとグランドパッキンで圧縮変形量の増加が見られた。物性値の変化と放射線との関連性については、各バルブ及び各シール材の線量率・照射線量、接触した放射能量を調査した。その結果、線量率、照射線量、接触した放射能量は、バルブ毎に異なり、物性値の変化と放射線について相関は見られなかった。このことは、当該シール材への推定照射線量は最大でも $10^2\text{Gy}$ とPTFEが劣化する照射線量である $10^3\text{Gy}$ を下回るためであり、このような条件においては、締付け応力が負荷された状況においても放射線がPTFEの物性値の変化に与える影響は殆どないことがわかった。バルブガスケット類の健全性を維持管理していくためには、定期的な点検、トルク管理による増し締めが重要である。

### 参考文献

- 1) “東海再処理施設分析所における汚染について”. 日本原子力研究開発機構 HP. <https://www.jaea.go.jp/jnc/news/press/PE2004/PE04091002/houkoku.pdf>, (参照2018年4月6日).
- 2) 萩原幸二. 放射線崩壊法による廃棄プラスチックの回収と再利用. 日本原子力学誌. 1973, 15, pp. 771-773.
- 3) P. Beynell, P. Maier and H. Schonbacher. Compilation of Radiation Damage Test Data-Part III: Materials Used Around High-Energy Accelerators. Geneva, European Organization for Nuclear Research, 1982, CERN 82-10, 258p.
- 4) 日本バルカー工業株式会社. バルカーハンドブック-技術編-, 2010, p473.
- 5) 大強度陽子加速器施設開発センター計画グループ. 高分子系材料の耐放射線特性とデータ集, 日本原子力研究所, 2003, JAERI-Data/Code 2003-015, p10.
- 6) JIS K7215:1986. プラスチックのデュロメーター硬さ試験方法.
- 7) 日本分析化学会編, 化学便覧 基礎編 I, 改訂第5版, 丸善, 2004, p716.