



## 水分分離式<sup>3</sup>H連続モニタ

樋熊 孝信\* 牧野 明寛 武藤 重男  
松島 啓 柳沢 美樹男

\* 日本原燃サービス株企画部(元東海事業所、安全管理部)  
東海事業所安全管理部

資料番号: 58-9

Continuous <sup>3</sup>H Monitor with Membrane Separators

Takanobu Higuma\* Akihiro Makino Shigeo Muto  
Akira Matsushima Mikio Yanagisawa  
(\* JNFS General Planning Department [Presently, Health  
and Safety Division, Tokai Works.]  
Health and Safety Division, Tokai Works.)

再処理工場における排気モニタリングシステムには、<sup>3</sup>Hの連続監視を目的として、焙焼冷却法による<sup>3</sup>Hサンプラーが設置されており、さらにこれを補完する電離箱式トリチウムモニタ（通称トリトン）が設置されている。電離箱式トリチウムモニタは<sup>3</sup>Hからのβ線を主に測定しており、工場の運転時、特に使用済燃料の剪断、溶解時においては<sup>85</sup>Krを含めたトータルガス濃度を連続して測定する方式である。

今回、試料空気中から<sup>3</sup>Hのみを選択的に分離し、測定できる水分分離式<sup>3</sup>H連続モニタを試作した。この試作機について<sup>85</sup>Krの分離性能、<sup>3</sup>Hの感度等の試験を行った結果、<sup>85</sup>Krの分離係数として約10<sup>6</sup>、<sup>3</sup>Hの検出限界として約10<sup>-2</sup>pCi/cm<sup>3</sup>が得られた。

**Key Words:** <sup>3</sup>H monitor, Membrane Separator, Perfluorosulfonic Acid Resin, Separation Factor, Purge Gas, Gaseous Effluents, Effluent Monitoring System, Reprocessing Plant

### 1. はじめに

再処理工場における気体廃棄物の放出は、使用済燃料の燃焼度からあらかじめ<sup>85</sup>Kr、<sup>3</sup>H等の放出量を予測して作成した処理計画に従って実施されている。

さらに、これらの放出量は排気筒に設置されている排気モニタリングシステムによって常時監視測定されている。この内<sup>3</sup>Hの放出監視については、焙焼冷却法による<sup>3</sup>Hサンプラーが設置されており、<sup>3</sup>H凝縮水を回収した後、液体シンチレーションカウンタで<sup>3</sup>H量を測定し、年間放出量や3ヶ月管理目標値を超えない様管理している。

さらにこれを補完する、電離箱式トリチウムモニタ（通称トリトン）が設置されている。電離箱式トリチウムモニタは<sup>3</sup>Hからのβ線を主に測定しており、工場の運転時、特に使用済燃料の剪断、溶解時においては<sup>85</sup>Krを含めたトータルガスを連続して測定する方式である。

以上の状況により、サンプルガス中から<sup>3</sup>Hのみを

選択的に分離し測定できるモニタを開発した。

### 2. 水分分離式<sup>3</sup>H連続モニタ

#### 2.1 全体構成

本モニタは大別すると水分分離部と検出部から成る。水分分離部においては、サンプルガスを連続し

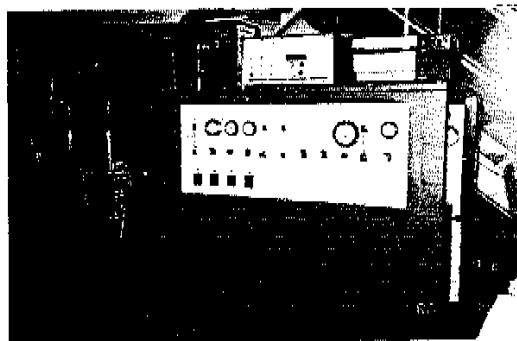


写真1 水分分離式<sup>3</sup>H連続モニタ

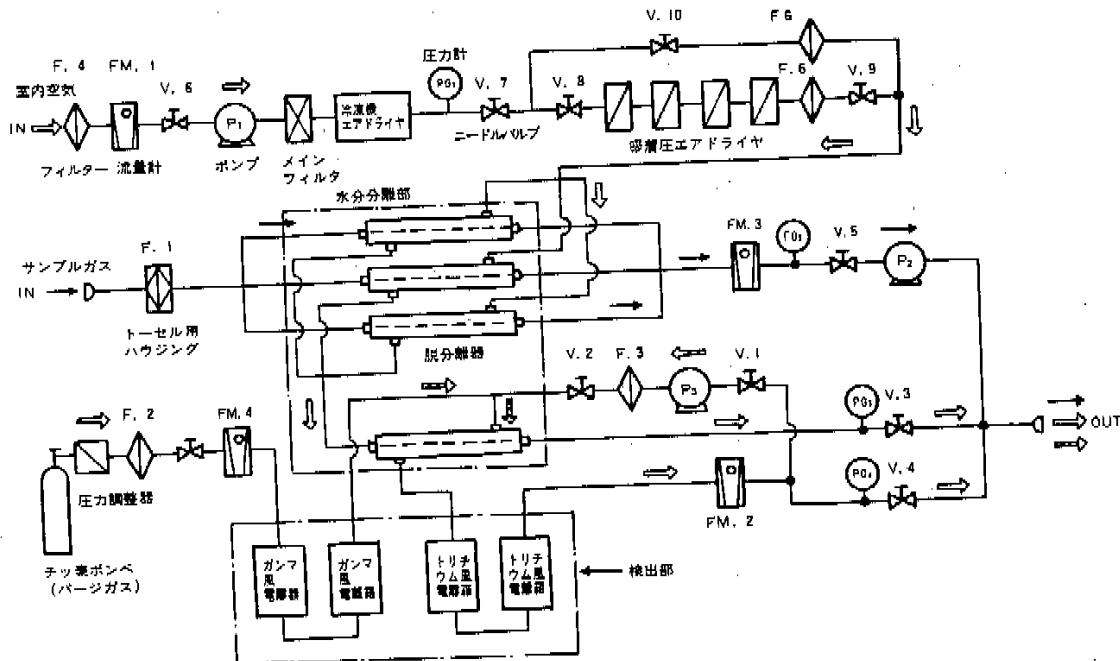


図1 水分分離式トリチウムモニタ系統図

て吸引し 2段の膜分離器によって水蒸気状<sup>3</sup>Hを選択的に分離している。また検出部は、バックグラウンド線補償型電離箱から成っている。写真1及び図1に、それぞれモニタの外観及びモニタ系統図を示す。

## 2.2 各部の仕様

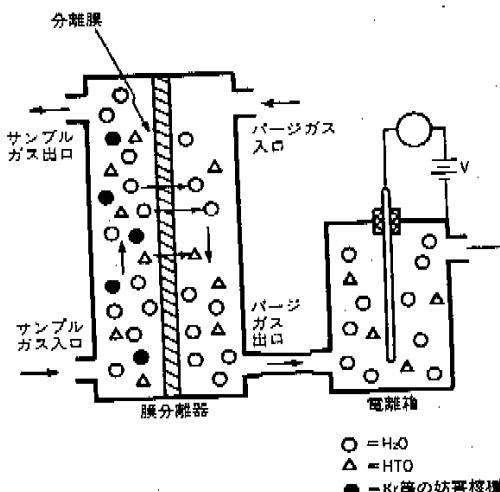


図2 膜分離器によるKr等の分離

### (1) 水分分離部

本モニタの水分分離部は図1に示す様に1段目に3基の膜分離器を並列に配置し、さらに2段目に、1基の膜分離器を1段目に対して直列に配置するよう構成されている。膜分離器には、パーフロロスルホン酸樹脂の中空系が約400本収納されている。この樹脂は水に対して選択透過性が優れており、サンプルガス中の水分子は図2に示す様に膜面で溶解し膜内を拡散しながら、サンプルガス中とバージガス中の水蒸気の分圧差によってバージガス中へ移行する。これに対して<sup>85</sup>Krやその他の妨害核種は膜を透過にくいためサンプルガスからバージガスへはほとんど移行しない事が、確かめられている。

### (2) 検出部

検出部は、15 l通気式円筒型電離箱4個から成りそのうち2個は<sup>3</sup>H測定用として膜分離器で分離されたHTOを測定し他の2個の電離箱はモニタ設置場所のγ線バックグラウンドの補償を行っている。

## 3. 特性試験及び結果

### 3.1 検出限界

検出限界は、バックグラウンドデータの標準偏差から求めた。この結果検出限界として0.02(pCi/cm<sup>3</sup>)を確認した。

### 3.2 $^{85}\text{Kr}$ の分離性能

$^{85}\text{Kr}$ の分離係数は、既知濃度の $^{85}\text{Kr}$ を膜分離器に通過させサンプルガス中の $^{85}\text{Kr}$ 濃度と膜分離器を通過した $^{85}\text{Kr}$ 濃度の比として以下の式により求めた。

$$\text{分離係数} = \frac{\text{サンプルガス中の}^{85}\text{Kr濃度}}{\text{膜分離器を通過した}^{85}\text{Kr濃度}}$$

この結果膜分離器1段及び2段に対してそれぞれ $9.5 \times 10^3$ 、 $2.7 \times 10^6$ 以上の分離係数が得られた。

ただし、膜分離器が2段の場合には、膜分離器を通過した $^{85}\text{Kr}$ 濃度が、本モニタの検出限界以下であったため、分母には便宜的に検出限界を用いて分離係数を求めた。この結果 $2.7 \times 10^6$ 以上であることは確認したが、分離係数を決定することはできなかった。

ここで仮に膜分離器1段のときの分離係数 $9.5 \times 10^3$ が、2段目についても担保されるとすれば、膜分離器2段に対する分離係数は $(9.5 \times 10^3)^2 = 9 \times 10^7$ 程度と推定される。

さらに本モニタを再処理工場排気モニタリングラインに直接接続して試験運転を実施した。排気筒から放出される $^{85}\text{Kr}$ 濃度の変化に対して本モニタには有意な応答はなかった。

別の試験で得られた本モニタの $^{85}\text{Kr}$ 感度（約10倍）を考慮し、 $^{85}\text{Kr}$ 濃度を本モニタの指示値に換算すると、 $10^3 \sim 5 \times 10^4 (\text{pCi/cm}^3)$ となる。膜分離器を通過した $^{85}\text{Kr}$ 濃度が本モニタの検出限界以下であったため、便宜的に検出限界を用いて、分離係数を求めた。この結果 $2.6 \times 10^6$ 以上が得られ、前述の $2.7 \times 10^6$ 以上とほぼ一致した。

### 3.3 $^3\text{H}$ の透過確認試験

サンプルガス中の $^3\text{H}$ が確実に膜分離器を通過していることを確認するために膜分離器を通過したバージガスから冷却凝集捕集法にて $^3\text{H}$ を回収し測定した。この結果 $^3\text{H}$ サンプラーでのモニタリング結果と一致し $^3\text{H}$ が確実に膜分離器を透過していることが確認された。

### 3.4 遅延時間

サンプルガスが本モニタ（水分分離部及び検出部）

を通過するのに要する時間（連続モニタリングの際の実質上の遅延時間）については、膜分離器1段の時、本モニタの指示値が $^{85}\text{Kr}$ の変化に対し約15分の遅れで追跡することが確認された。

### 4.まとめ

$^{85}\text{Kr}$ の分離係数については、膜分離器1段に対し $9.5 \times 10^3$ を確認し、膜分離器2段に対しては、 $2.7 \times 10^6$ 以上を確認した。また、実排気によりこれらの分離係数を追試した結果も膜分離器2段に対して、 $2.6 \times 10^6$ 以上となった。これらの結果から、排気筒における $^{85}\text{Kr}$ の濃度変動が $10^2 \sim 5 \times 10^3 \text{ pCi/cm}^3$ であれば、膜分離器2段によって $^{85}\text{Kr}$ の影響を除く事が可能であり、 $^{85}\text{Kr}$ の分離性能としては、実用上特に問題はないと言える。

一方、 $^3\text{H}$ の検出感度の点から検討すると、実排気中の $^3\text{H}$ 濃度は、約 $10^{-3} \sim 10^{-2} \text{ pCi/cm}^3$ 程度であり、本モニタの検出限界（ $0.02 \text{ pCi/cm}^3$ ）を超えない。このため、 $^3\text{H}$ 濃度が通常レベルである場合には本モニタの指示値は常に検出限界値を示すことになる。

従って、 $^3\text{H}$ 濃度の定量については、本モニタよりも検出限界の低い（約 $10^{-3} \text{ pCi/cm}^3$ ） $^3\text{H}$ サンプラーによって測定しなければならない。また遅延時間については $^{85}\text{Kr}$ に関して、膜分離器1段の場合約15分という値が得られた。膜分離器2段の場合の遅延時間については、本モニタの指示値が検出限界値となるため、測定はできなかった。

$^3\text{H}$ に関しては、高濃度の $^3\text{H}$ が得られなかつたため試験を実施していないが、連続監視の実用上からは特に問題とならない程度の遅延時間（数10分程度）と考えられる。

### 5.おわりに

排気筒から放出される $^3\text{H}$ は、約 $10^{-3} \sim 10^{-2} \text{ pCi/cm}^3$ の低いレベルであり、焙焼冷却法による $^3\text{H}$ サンプラーで連続監視されている。

本モニタは、 $^{85}\text{Kr}$ 混在下での $^3\text{H}$ を $0.02 \text{ pCi/cm}^3$ のレベルで連続監視が可能である事が確認された。今後さらに電離箱の容量、時定数について最適化を図り、検出性能の向上について検討していく予定である。