



2. 作業環境の監視に係わる技術小論

(1) トリチウム管理技術の高度化

中島 裕治 石倉 康治*

大洗工学センター安全管理部

* 新型転換炉ふげん発電所安全管理課

資料番号: 81-10

2. Development of Technology on Radiation Monitoring of Working Environment

(1) Improvement of Radiation Control Technique for Tritium

Yuji Nakashima Yasuji Ishikura*

(Health and Safety Division, O-arai Engineering Center

* Safety and Chemical Section, Fugen Nuclear Power Station)

新型転換炉ふげん発電所、高速増殖炉実験炉「常陽」においては、作業環境のトリチウムに対する管理が必要である。トリチウムは低エネルギーベータ線放出核種であるため、通常の測定方法では感度良く測定することが難しく、そのため両プラントにおいては、簡便に高感度でトリチウムを測定・評価する方法の開発および改良を継続的に行っている。

また、トリチウムは水蒸気と同様な化学的挙動をとるため、一般的な防護マスク用フィルタ、防護衣では十分に防護されないため、ふげんでは専用のトリチウム防護服を開発し、活用している。

1. はじめに

軽水炉における放射線管理の対象は、コバルト、マンガン等のガンマ線放出核種が中心である。一方、重水炉である新型転換炉ふげん発電所では、低エネルギーベータ線放出核種のトリチウムに対しても、そのインベントリーが多いことからガンマ線放出核種に対するのと同程度に重視した管理を行っている。また高速ナトリウム炉の「常陽」においては、トリチウムについての発生・移行が軽水炉プラントと多少異なっていると考えられることから、トリチウムのプラント内分布に着目した管理を行っている。

「ふげん」「常陽」とともに、各々の状況に応じて、トリチウムの測定・評価方法、トリチウムに対する防護方法等について技術開発を進めている。以下にトリチウム管理技術の開発概況を紹介する。

2. トリチウムの特徴

トリチウムは自然界にも存在するが、原子炉内では重水素、ボロン等と中性子との反応、核の三体核分裂等により生成される。トリチウムは、半減期が12.3年でベータ線変換(100%)をして最大エネルギー

18keVのベータ線を放出し、 ^3He になる。トリチウムの放出するエネルギーは低く、外部被ばくは問題とならないが、空気中にトリチウム水蒸気(HTO)の形で存在することが多く、呼吸器からの吸入と皮膚からの吸収による体内への取り込みによる内部被ばくを考慮する必要がある。取り込みの割合は呼吸器から2、皮膚から1、といわれ、取り込まれたトリチウム水蒸気は体内の水分と急速に混合し、摂取後数時間で体内に均一に拡散する。一方、体内のトリチウム水は、蓄積することなく尿や汗等の代謝作用により減少していくが、体内残留のトリチウム量が半分になる時間(実効半減期)は4-18日と個人差があり平均は約10日である。したがって、トリチウムを摂取しても約1ヶ月で90%程度が排泄され、人体への影響は、他の核種の場合に比べてきほど深刻ではないといわれている。

3. 「ふげん」におけるトリチウム管理

「ふげん」における主なトリチウムの生成要因は減速材に使用している重水中重水素のD(n, γ)T反応によるものである。

減速材(重水)中のトリチウム濃度は、運転時間

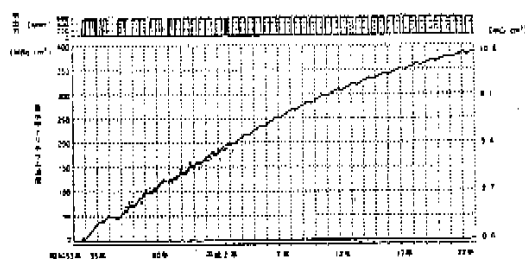


図-1 重水中のトリチウム濃度の実績と予測

とともに上昇する傾向にあり、平成3年9月現在、約 $2.0 \times 10^8 \text{ Bq/cm}^3$ である。過去の実績では図-1に示すように1年で約 $1.7 \times 10^7 \text{ Bq/cm}^3$ 上昇しており、プラント寿命末期には約 $4.4 \times 10^8 \text{ Bq/cm}^3$ になると推定される。

原子炉運転中は、重水・ヘリウム系機器室内の空气中トリチウム濃度は $10^{-5} \sim 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ 程度となり、さらに重水・ヘリウム系機器分解点検時には一時的に上昇することがあり、内部被ばく管理のため作業環境の測定、個人のモニタリング、作業管理を行っている。

3.1 トリチウムの測定・評価技術

(1) 作業環境のモニタリング

トリチウム測定については、簡易にかつ高感度で行う方法について、当初から「ふげん」独自で開発および最適化の検討を進めてきた。現在運用している方法の用途、特長等の概要を表-1に示す。

表中、膜分離式トリチウムモニタ（ルームモニタ）は、従来の電離箱式モニタでは自然放射性核種

表-1 作業環境のトリチウムモニタリング（ふげん）

用途	電離箱式モニタ	膜分離式 ³ Hモニタ（ルームモニタ）	除湿器+液シン	ハンディケーラー+液シン
原子炉格納容器内および補助建屋内の重水系機器周辺および室内の連続測定、監視		重水系機器の分解点検作業における作業雰囲気の連続測定、監視	作業環境の空气中濃度の定期的な測定、評価のための代表点の空氣の冷却捕集（試料水の収集）	作業環境の空气中濃度の不定期な測定、評価および作業中のモニタリングのための空氣の冷却捕集（同左）
特長	・同心円筒型線検出型電離箱（20L+20L） ・測定範囲： $10^{-3} \sim 10^2 \text{ Bq/cm}^3$ ・電圧非切替えにより対象面所が選別できる	・膜分離付線検出型電離箱（20L+20L） ・測定範囲： $10^{-3} \sim 10^2 \text{ Bq/cm}^3$ ・キャスター付きで移動可能（42×65×96cm 重量：70kg）	・試料水はシンチレータと混合し液シンで測定 ・感度： $\sim 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ ・1週間連続捕集し平均値を評価（但し20分程度の捕集で試料水の収集が可能）	・試料水はシンチレータと混合し液シンで測定 ・感度： $\sim 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ ・円筒状冷却捕集器へ冷却水を循環し水分を蒸留し霧状に捕集（同左）

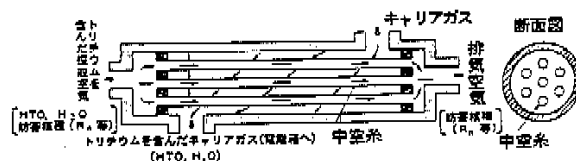


図-2 分離膜モジュール構造図および膜分離の原理

のラドン・トロンおよびその娘核種の影響で検出限界が $10^{-1} \sim 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$ 程度であったのに対し、高分子膜の特性を利用してラドン・トロンによる影響を低減し、高感度（ 10^{-3} Bq/cm^3 オーダー）のトリチウムの連続監視が可能となるよう開発したものである。

本モニタに利用されている膜分離の原理を図-2に示す。

(2) 個人のモニタリング

トリチウムの内部取り込みによる被ばく線量当量については、放射線業務従事者全員を対象とした定期的（1回/3カ月）な測定・評価、および作業に伴う不定期な測定・評価を行っている。

測定は当初から尿検査によっているが、現在の方法—すなわち生尿（2cc）にインスタゲルシンチレータ（14cc）を注入して混合試料を作成し、それを液体シンチレーションカウンタで測定し、さらにパソコンで内部被ばく線量当量を評価する方法—を確立するまでに、試料調製法の改良、測定・評価システムの高度化を行ってきた。

なお、本方式による検出限界は約 0.3 Bq/cm^3 で、約 $0.22 \mu\text{Sv}$ の線量当量に相当する。

3.2 トリチウムの防護技術

トリチウムの体内取り込みの低減対策としては、予め機器の設計・製作においてバルブをベローシール構造にし、配管接続は溶接構造を原則とする等の設備面の対応を図るほか、定期検査時の重水・ヘリウム系の機器（例えば重水循環ポンプ、ヘリウム流通弁）の開放点検作業を実施する場合には、作業方法の工夫によるトリチウムの拡散防止、防護具の着用による吸い込み防止等を行っている。

トリチウムの防護具に関しては、運転開始以降、継続して開発を進めており、型式については、当初加圧服タイプを採用していたものを、作業性の良いウエットスーツタイプ（ネオプレンゴム製2ミリ厚、ナイロンジャージ張り）に改良している。本タイプの構造を図-3に示す。

またスーツの材質、防護服内の空氣の通気性、マ

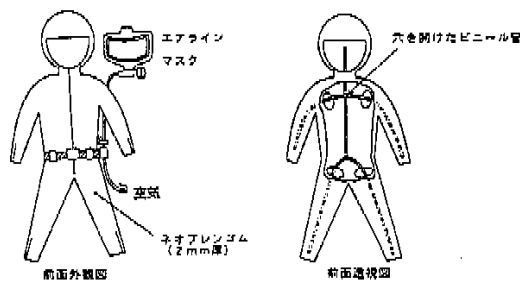


図-3 ウェットスーツタイプトリチウム防護服

スク、ゴム手袋の装着方法等、細部にわたる検討、改善も行い、その結果、防護係数の向上、作業可能時間の延長（加圧服タイプに比べて2倍程度）を得ている。

4. 「常陽」におけるトリチウム管理

高速炉におけるトリチウムは、軽水炉と同様、主に炉心燃料の三体核分裂（核分裂を起こす際、3個の原子核に分裂すること）により生成される。三体核分裂により生成されたトリチウムは、高速炉の燃料被覆管が軽水炉のジルカロイと異なりステンレス鋼であるため管材を透過し易いことから、一次系冷却材中に放出される割合が高い。しかしながら一次冷却材中に放出されたトリチウムは、そのほとんどがコールドトラップに捕獲され、一次カバークラスへ移行しアルゴン廃ガス処理系から排気筒へ放出される量は少ない。一方、一次冷却材中のトリチウムのうち捕獲されなかったものは、一次系配管・機器へ移行・分布し、さらにそれらを通じて、そのごく一部が格納容器内床下雰囲気中等へ放出されるおそれがある。

トリチウムの一次冷却材中のインベントリーは、運転時間とともに上昇し飽和値は約 2×10^5 Bq/gNaになると推定されている。しかしながら、前述の通り一次冷却材中のトリチウムはコールドトラップにそのほとんどが捕獲されることから、一次系を代表した主配管等のポイントにおけるサンプリング・分析結果は、運転によらずほぼ一定した値となり、図-4のような推移を示している。

「常陽」においては、当初からトリチウムの発生・移行に着目し、トリチウム移行評価計算コードの開発を進めており、また、その検証のため、トリチウムのプラント内分布の測定・評価も行っている。

一方、一部の作業（炉上部での案内管取り外し作

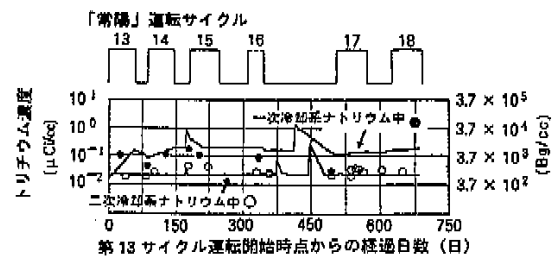


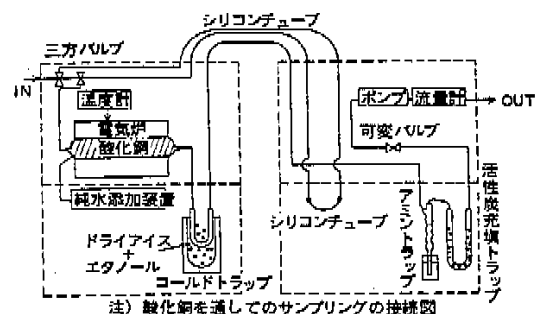
図-4 冷却材中トリチウム濃度測定値と計算値（TTTコードによる）の比較

業、アルゴン廃ガス処理系の機器分解点検作業等）においては、トリチウムの作業環境への拡散が考えられるため、内部被ばく防止のための作業管理を行っている。

4.1 トリチウムの測定・評価技術の確立

作業環境および排気中の予想されるトリチウム濃度は微量であるため、その測定・評価は、感度の観点から、当初から連続測定方式ではなく、主に、専用のトリチウム捕集装置と低エネルギーベータ線測定に有利な液体シンチレーションカウンタを組合せたサンプリング・測定方式によっている。現在運用している捕集装置は、初期のものと原理的には同様であるが、いくつかの改良を施したものである。本装置の概要を図-5に示す。なお本装置には、トリチウムと同時に炭素14を捕集するための機構（アミントラップ）も付加している。

トリチウムには、気体中に水蒸気状(HTO , T_2O)で存在するものとガス状(HT , T_2)で存在するものがあり、各々捕集方法が異なる。通常、水蒸気状は、水、ドライアイス等を用いた冷却凝縮方法によ

図-5 $^3\text{H}/^{14}\text{C}$ 捕集装置概略系統図

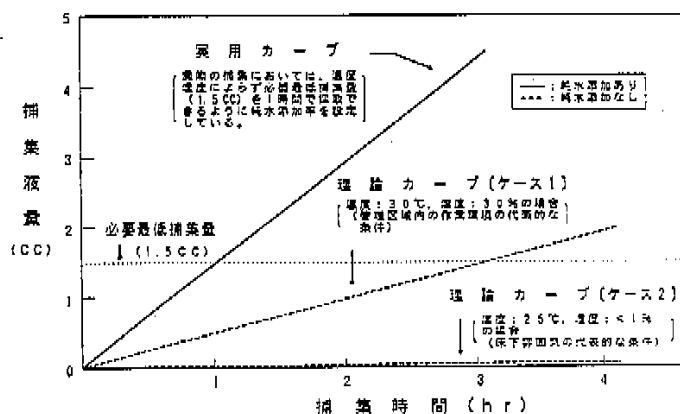


図-6 純水添加装置による効果

り、短時間でかつ簡単に凝縮水形で捕集可能であるが、ガス状は、その方法ではほとんど捕集不可能で、一般的にはガス状を水蒸気状の形にして（酸化させて）捕集する。図中の電気炉が、ガス状を水蒸気状の形にする役目をし、装置全体としては、水蒸気状もガス状も一括して捕集するような仕組みになっている。

しかしながら、「常陽」の建屋内でのサンプリング対象気体の状態（主に温度・湿度）はサンプリングポイントにより異なり、極端に低湿度なポイント（格納容器床下雰囲気）では、凝縮水量が微量で安定した捕集（必要最低捕集量1.5cc）が行えないことから、これを解消する目的で純水添加装置を装備させている。本添加装置による効果を図-6に示す。この効果により、必要量が確保できるようになり、捕集時間も、従来は半日程度であったものが一時間

に短縮でき、作業効率の向上にもつながった。

また、平成元年4月の原子炉等規制法等の改正において新たに導入された管理の考え方として、化学形に応じた空気中（作業環境中）および排気中の濃度限度が規定され（例えば、空気中については、元素状トリチウム： 2×10^4 、トリチウム水： 2×10^{-1} Bq/cm³）、これに対してトリチウムの化学形を弁別測定するための簡単な改良を行った。

以上のような改良の結果、以下に示す特長をもつ測定・評価技術を確認することができた。

- ① 低湿度気体中のトリチウムの捕集も可能
- ② ガス状で存在するトリチウムの捕集も可能
- ③ 水蒸気状とガス状の分別捕集が可能
- ④ 短時間（標準1時間）で試料の捕集が可能

検出感度： $\sim 7 \times 10^{-6}$ Bq/cm³

現在もこの方式を用いて、プラント内各所（1、

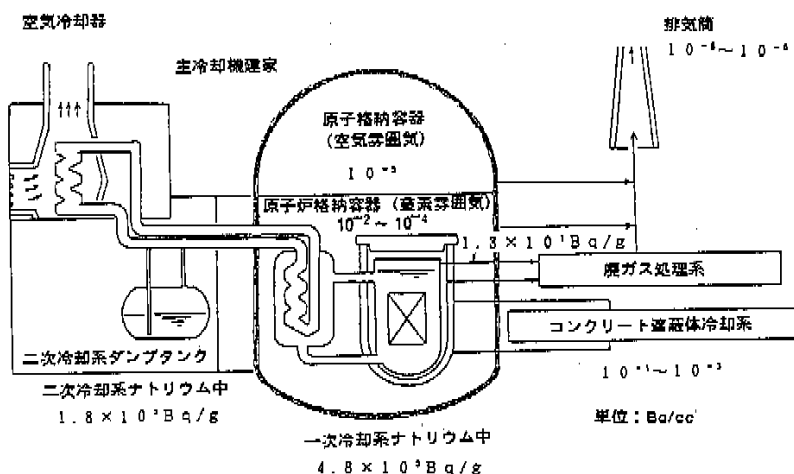


図-7 「常陽」における原子炉運転中のトリチウム分布の例

2次系内のNa中、Ar中を除く)におけるトリチウムの分布の測定・評価を継続しているが、これまでに得られた結果を整理すると、図-7のようになる。図中、作業環境のなかで最もトリチウム濃度が高くなる場所(床下雰囲気)においても、ただだか 10^{-3} Bq/cm³程度であり、濃度限度に比べて十分に低い結果となっている。また排気中濃度についても、ほとんど有意値は検出されず、自然界のバックグラウンドレベルと同程度である。

4.2 作業環境へのトリチウムの拡散防止

図-7に示したプラント内分布に見られるように、通常の作業環境ではトリチウムに対する防護を必要としない。ナトリウム炉においては、通常、一次系バウンダリーを開放して点検を行うことはなく、したがって前述のとおり、炉上部での案内管取り外し作業、アルゴン廃ガス処理系機器の分解点検作業等の特定の作業がトリチウムの内部被ばく防止の管理の対象となっている。しかしながら、これらの作業においても、「ふげん」のようにトリチウム防護服までも必要とする状況はなく、ほとんどの場

合、機器開放前の系内バージ、ブローダウン、局所排気装置の仮設等でトリチウムの作業環境への拡散を防止し、問題なく作業管理を行っている。

なお防護具に関しては、必要な場合には、「ふげん」で開発したトリチウム防護服、またはコバルト、マンガン等のCP核種による高汚染作業用のエアラインスーツ他を適用することとしている。

参考文献

- 1) 北山、中島他：「新型転換炉「ふげん」重水・ヘリウム系の開発と重水取換技術の実績」、動燃技報 No.88 (1988)
- 2) 新型転換炉原型炉「ふげん」技術成果の概要、PNC TN1410 91-052, (1991)
- 3) 被ばく低減化と放射線管理技術の動燃技報「ふげん」特集 No.69, (1989)
- 4) 松井、松尾他：「新型転換炉ふげん発電所における放射線管理」、動燃技報 No.53 (1985)
- 5) 石倉、武井他：「新型転換炉ふげん発電所におけるトリチウムの管理」日本保健物理学会第26回研究発表会要旨第 3-22 (1991)
- 6) 鈴木他：「膜分離式トリチウムモニタの開発」、動燃技報 No.80, (1991)
- 7) 三戸、佐藤他：膜分離による高感度気中トリチウム連続モニタの開発(I) 58年度、原子力学会 秋の分科会予稿集, (1983)
- 8) 河原、牧野他：膜分離による高感度気中トリチウム連続モニタの開発(II) 58年度、原子力学会 秋の分科会予稿集, (1983)
- 9) 渋谷：「新型転換炉ふげん発電所におけるトリチウムの管理、(トリチウム防護服)」保健物理18, 283~284 (1983)
- 10) 麻生他：「常陽」放射線管理の経験(I) 日本保健物理学会第17回研究発表会要旨集 (1982)