



3. 放出管理に係わる技術小論

(1) 再処理施設の排気モニタリング手法に関する開発

高崎 浩司 石松 信彦
江花 稔 野村 保

東海事業所安全管理部

資料番号：81-17

3. Development of Technology on Effluent Control
(1) Development of Monitoring Techniques for Airborne Effluents from Tokai Reprocessing Plant

Kouji Takasaki Nobuhiko Ishimatsu
Minoru Ebana Tamotsu Nomura
(Health and Safety Division, Tokai Works)

東海再処理施設の運転に伴い、主に ^{85}Kr 、トリチウム、放射性ヨウ素および ^{14}C が放出され、これら核種は、排気モニタで監視される。排気モニタは環境評価と運転管理に対して重要な装置である。再処理施設での排気モニタリングにおいては、再処理施設特有の条件が考慮されなければならない。本稿では、 ^{14}C と放射性ヨウ素のモニタリング技術の開発を中心に報告する。

1. はじめに

東海再処理施設では、使用済み燃料の再処理により、排気筒から主として、 ^{85}Kr 、トリチウム、放射性ヨウ素および ^{14}C が放出される。これら核種のモニタリングは排気モニタによって実施されている。排気モニタリングは施設周辺環境の評価および施設の運転に重要な情報を与えるものである。

再処理施設の排気モニタリングでは、排気中に存在する放射能レベルの大きく異なる核種が混在し、これらを個別に測定しなければならないこと、排気に含まれる化学物質の影響、長期の安全・安定運転に耐えられる装置とすること等を考慮する必要がある。本稿では、それらのうち ^{14}C および放射性ヨウ素に関するモニタリング技術の開発について報告する。

2. ^{14}C のモニタリング

^{14}C は宇宙線により生成し、一定の割合で天然に存在する物質として良く知られている。また、炭素は生体の基本的構成元素のひとつであり、 ^{14}C の線量評価上の寄与が比較的大きいことから近年原子力施設からの ^{14}C の放出量が注目されるようになってきた¹⁾。海外では1982年、1988年の国連科学委員会に

よるカールスルーエ、セラフィールド等の再処理施設から放出された ^{14}C による集団実効線量当量の報告がある^{2),3)}。国内では1986年の再処理施設安全審査指針で ^{14}C は線量当量評価上留意すべき核種のひとつにあげられた⁴⁾。

動燃事業団では、東海再処理施設の排気中の ^{14}C による周辺公衆の線量評価を実施するとともに、排気のモニタリング法として、 ^{14}C の化学形を二酸化炭素に統一して有機溶媒で捕集し、回収した試料を調製して液体シンチレーションカウンタで測定する方法を確立した。

2.1 再処理工程中の ^{14}C

再処理施設で処理される燃料中に存在する ^{14}C は、主に原子炉中における ^{14}N 、 ^{17}O 、 ^{13}C と中性子との核反応で生成することが知られている。そのほとんどは、燃料製造の工程中に不純物としてわずかに混入する窒素によるものである。

再処理施設から放出される ^{14}C は剪断・溶解工程で主に二酸化炭素、その他少量の一酸化炭素や有機系炭素の化学形で存在するといわれている。一部は排気筒から放出され、また一部は廃液処理系で処理される。

2.2 ^{14}C のモニタリング

排気中の ^{14}C のモニタリング法としては、電離箱によりその β 線を直接測定する方法とバブリングにより溶液等に捕集し、液体シンチレーションカウンタで測定する方法に大別される。

再処理施設の排気のモニタリングでは共存する ^{85}Kr 、 ^3H 等の β 線放出核種による影響等を考慮し後者の方法を採用することとした。

2.2.1 捕集方法

再処理施設の排気中の ^{14}C は大部分が CO_2 の形になっているが、一部少量の CO あるいは CmHn の化学形のものが存在するといわれている。これらについては白金触媒を用いた酸化炉で CO_2 に変えて、 ^{14}C をすべて CO_2 の化学形で捕集することとした。

CO_2 の捕集方法としては、液体シンチレーション測定における試料調製の操作性に適した方法として、有機溶媒に吸収捕集する液体バブリング法を採用した。

また捕集剤には、 CO_2 の捕集容量、捕集効率が大きく、液体シンチレーション測定における試料調製の単純なモノエタノールアミンを選んだ。

モノエタノールアミンの捕集効率は ^{14}C (CO_2 の化学形)の実験ループと標準ガスを用いた実流試験により定量的に捕集されることを確認した。また、排気中に共存する NO_x が CO_2 の捕集効率に与える影響についても同様に実流試験により、東海再処理施設の排気中の NO_x 濃度では、測定に支障が無いことを確認した。

捕集剤の充填量は多すぎると廃棄物が増え、検出限界値も悪くなるが、あまり少ないと捕集剤が着色し、クエンチングの影響で測定効率の低下等の支障をきたす。長期にわたるサンプリング試験から、検出限界値をできるだけ低く保ち、着色しない捕集剤の充填量を得ることができた。

2.2.2 ^{14}C の濃度測定方法

^{14}C の測定では、回収した捕集試料の一部を測定用バイアルびんに取り、シンチレータ溶液およびカクテルを均一化するためのメタノールを加えて調製した後、液体シンチレーションカウンタにより測定を行う。回収試料：シンチレータ：メタノールの混合比については、種々の割合での測定試験を行い、試料調製割合・測定効率・クエンチング・操作性・安定性等から最適な混合比を得た。

また、測定を妨害する要因について対策を実施し、問題ないことを確認した。排気中に共存する ^3H は測定を妨害する要因となるが、放出する β 線のエ

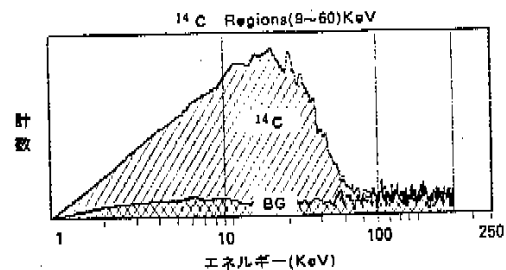


図-1 ^{14}C のスペクトル例

ネルギーが ^{14}C に比べて低いのでシンチレーション測定においてもエネルギー弁別により影響を排除することができる。図-1に液体シンチレーションカウンタによる ^{14}C のスペクトルを示す。しかし、サンプリングされた排気中の水分が捕集剤に多量に混入した場合、調製後の試料が十分混合されず不均一になる。測定値の信頼性を向上させるためにも、 ^3H も含めた水分の除去が望ましいため、捕集装置の酸化炉で分子状の水素を酸化させ水蒸気として電子冷却式除湿器によってその湿分を大部分除去することとした。この方法を用いることにより、 ^3H はほとんど混入せず、水分による試料調製の不均一性をなくすことができた。

CO_2 の吸収に伴いモノエタノールアミンの粘性が強くなり回収試料中に気泡が残ることがあるが、気泡を含んだまま試料調製・測定を行うと気泡中に存在する ^{85}Kr の β 線により ^{14}C の測定が妨害される。そこでサンプリング終了時に数分間、空気によるバージを行うことによって、 ^{85}Kr を追い出し、測定の妨害をなくすことができた。図-2に ^3H 、 ^{85}Kr が混入した場合のスペクトルを示す。

^{129}I については ^{14}C に比べて濃度が非常に低いためサンプリング排気中の ^{129}I が全量捕集されても測定に影響することはないことが評価の結果分かった。

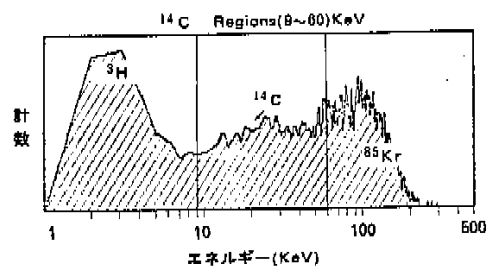
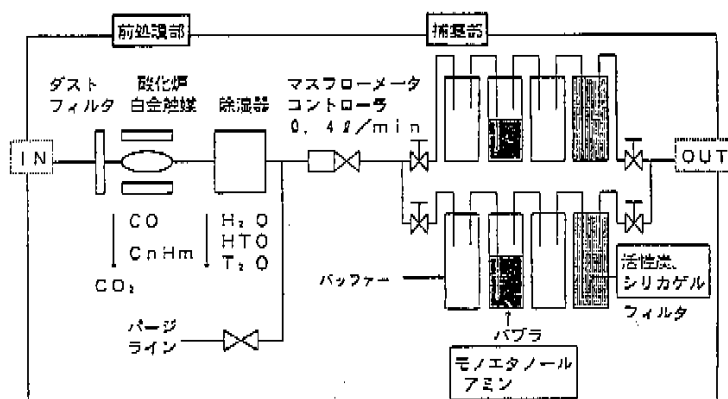


図-2 ^{85}Kr 、 ^3H および ^{14}C が混入した場合のスペクトル例

図-3 ^{14}C 捕集装置システム構成図

2.2.3 捕集装置

図-3に ^{14}C 捕集装置の概略図を示す。捕集容器の交換時にバルブの切り替えのタイミングを制御するとともに、 ^{85}Kr を追いつく機構を運動させることで、捕集剤の逆流防止と、捕集容器の交換を容易にすることができた。

排気のサンプリング系外への漏洩防止のため捕集装置は系内を負圧に維持することが必要である。負圧雰囲気では ^3H ・湿分を除去できる電子冷却式除湿器を2台切り替えて運転することとし、さらに前段にプレクーラー機構を設け除湿能力を強化させた。捕集装置の流量率、酸化温度、パージ時間等は自動制御とし、さらに捕集装置にコンピューターを設置し、そのディスプレイに逐次サンプリング状況を表示するとともに、一定時間毎にその状況を印字させサンプリング条件の把握を可能とした。そのほか、捕集剤の後方への飛散等を考慮し、捕集装置の試作試験を行い良好な運転性能を得、その試作機のデータを基に、安定した運転能力のある定置式捕集装置を製作した。

2.3 成果

^{14}C の捕集方法、測定方法の検討結果を基に、捕集装置の製作を行い再処理施設の排気中 ^{14}C のモニタリングの方法を開発し、定常の排気監視に実用化した。

3. 放射性ヨウ素のモニタリング

排気中の放射性ヨウ素(^{129}I , ^{131}I)は、活性炭フィル

タおよびカートリッジを用い排気中のヨウ素を捕集し、一週間毎に回収・測定することにより、放射性ヨウ素の放出量および平均濃度の評価を行っている。さらに、放射性ヨウ素濃度の変動傾向を把握するために、サンプリング中のこれらヨウ素捕集材をNaI(Tl)シンチレーション検出器で常時測定し、連続的な監視も合わせて行っている。

放射性ヨウ素モニタリングにおいては ^{129}I および ^{131}I の同時測定用検出器に関する試験、排気中ヨウ素の物理・化学形態の調査等を実施し、モニタリング技術の向上を図った。

3.1 ^{129}I および ^{131}I の同時測定ヨウ素検出器

連続監視用の検出器については ^{129}I の39keVおよび ^{131}I の364keVのエネルギーの大きく異なる γ 線の同時測定を行うために、2"φ×25mm³のNaI(Tl)シンチレータを採用している。表-1にヨウ素検出器の仕様を示す。

2"φ×25mm³のNaI(Tl)シンチレータの採用に当たっては、直径2"で厚さがそれぞれ2mm、5mm、10mm、25mmおよび50mmの5種類のNaI(Tl)シン

表-1 ヨウ素検出器仕様

検出器	NaI(Tl)シンチレータ
入射窓	2"φ×25mm ³ 200 $\mu\text{m}^2\text{Al}$

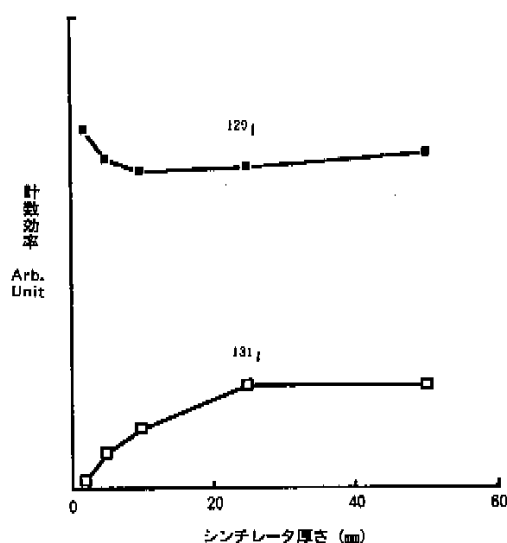


図-4 NaI(Tl)シンチレータ厚さ毎の ^{129}I および ^{131}I の γ 線計数効率

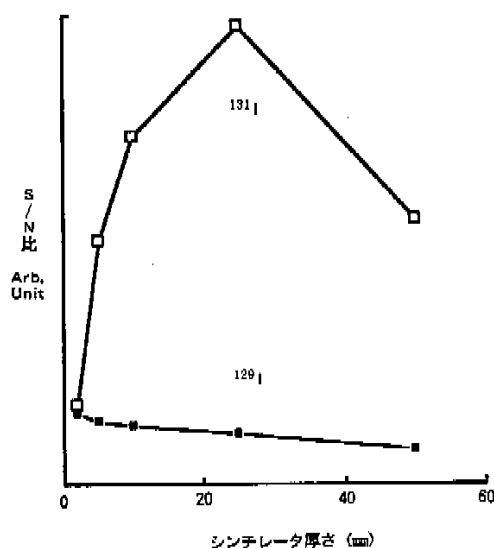


図-5 NaI(Tl)シンチレータ厚さ毎の ^{129}I および ^{131}I のS/N比

チレータを用い試験を実施した。

図-4に各NaI(Tl)シンチレータ厚さ毎の ^{129}I および ^{131}I の γ 線の計数効率、図-5に各NaI(Tl)シンチレータ厚さ毎の ^{129}I および ^{131}I のS/N比(計数率と $\sqrt{\text{B.G.}}$ の比)を示す。 ^{129}I の39keV γ 線の測定効率はシンチレータ厚に依らずあまり変わらないが、 ^{131}I の364keV γ 線の計数効率はシンチレータの厚さが大きくなるほど良くなる。

また、S/N比(計数率と $\sqrt{\text{B.G.}}$ の比)については ^{129}I 測定ではシンチレータの厚さが大きくなるほど低下するが、 ^{131}I の測定では25mm厚において最もよい結果が得られた。

以上の結果より、計数効率およびS/N比の点において、 ^{131}I の測定に適したNaI(Tl)シンチレータの厚さは25mmであった。 ^{129}I を測定する場合、 ^{129}I の計数効率はシンチレータ厚にそれほど依存しないが、S/N比はシンチレータが薄いほど良いことが分かる。したがって、 ^{131}I および ^{129}I の同時測定用検出器として $2''\phi \times 25\text{mm}^1$ のNaI(Tl)シンチレータを採用することにした。

3.2 排気中ヨウ素の物理・化学形態調査

再処理施設から大気中へ放出されるヨウ素の物理・化学形態を把握することは、ヨウ素の放出量低減化対策および環境中での移行を解明する上で重要である。そこで、87-2および88-1キャンペーンにおいて、再処理施設排気中の ^{129}I の物理・化学形態につ

いてアルカリスクラバ法およびメイバックサンブラ法を用いて調査を実施した。

図-6にアルカリスクラバ法およびメイバックサンブラ法による試験装置の概略図を示す。再処理施設から放出されるヨウ素の物理・化学形態は粒子状ヨウ素、無機形ヨウ素および有機形ヨウ素があると考えられ、それぞれの方法はヨウ素の物理・化学形態により捕集効率に違いが生ずることを利用したものである。

3.2.1 アルカリスクラバ法

アルカリスクラバ法ではダストフィルタにて粒子状ヨウ素を取り除いた後、無機形ヨウ素を2M水酸化ナトリウム溶液にバブリングさせて捕集し、後段のトリエチレンジアミン(TEDA)添着活性炭カートリッジで有機形ヨウ素を捕集する。ヒータはバブラによる湿度上昇の影響を低減させ、後段の活性炭カートリッジへのヨウ素の捕集効率を低下させないためのものである。

3.2.2 メイバックサンブラ法

メイバックサンブラ法は各種のフィルタを組合せ、簡便にヨウ素を物理・化学形態別に捕集する方法である。

再処理施設排気での試験においては4種類のフィルタを使用した。1段目のダストフィルタで粒子状ヨウ素、2段目の銀メッシュフィルタで元素状ヨウ

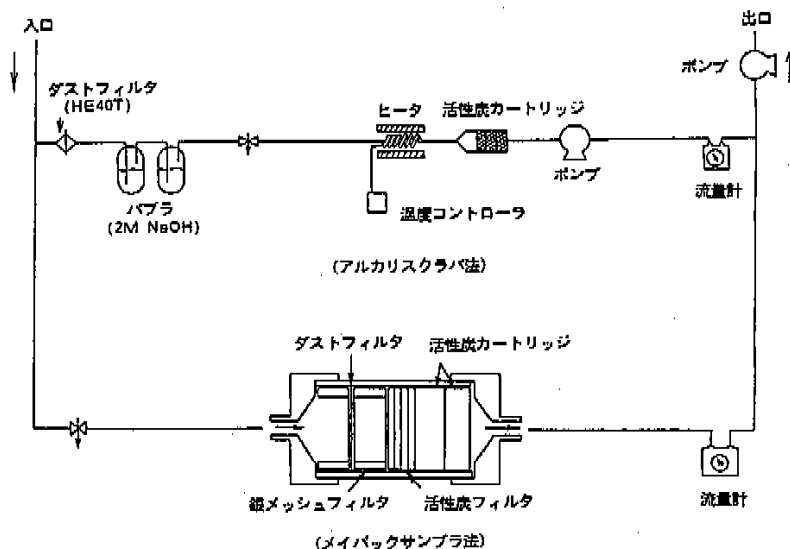


図-6 アルカリスクラバ法およびメイバックサンブラ法試験装置概略図

系、3段目のフェノール添着フィルタでヨウ化物、4段目のTEDA添着活性炭カートリッジで有機形ヨウ素を捕集するものである。3段目のフェノール添着フィルタでは有機形ヨウ素も幾分捕集されるため、補正が必要である。

3.2.3 調査結果

試験は87-2および88-1キャンペーン期間中に主排気筒の排気をアルカリスクラバ法およびメイバックサンブラ法で同時にサンプリングし、それぞれの結果を比較した。比較評価の結果、両方式における無機形と有機形ヨウ素の割合はほぼ一致した。

今後、さらに調査を継続し、データを蓄積することにより、無機形ヨウ素と有機形ヨウ素の割合と工程運転との関係について進めている。

4. まとめ

再処理施設の排気モニタリングに関する開発として、 ^{14}C および放射性ヨウ素に関するモニタリング技術の開発を行った。

今後とも施設のさらなる安全および安定運転に寄与することを目的として、排気モニタリング技術の開発を進めていく。

参考文献

- 1) National Council on Radiation Protection and Measurement, "Carbon-14 in the Environment", NCRP Report No.81, May 1985
- 2) United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, "Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects", UNSCEAR 1982 Report to the General Assembly, 1982
- 3) United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, "Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation", UNSCEAR 1988 Report to the General Assembly, 1988
- 4) 原子力安全委員会、再処理施設安全審査指針、昭和61年2月、平成元年3月改訂