

JAERI-M
7619

放射性同位体製造資料 - 1219

^{99}Mo 製造施設の換気設備
(放射性ヨウ素の挙動と活性炭フィルタの除去性能)

1978年4月

出雲三四六・岡根 章五・反田 孝美・青山 三郎

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

⁹⁹Mo 製造施設の換気設備

(放射性ヨウ素の挙動と活性炭フィルタの除去性能)

日本原子力研究所アイソトープ事業部・製造部

出雲三四六・岡根章五・反田孝美・青山三郎

(1978年2月20日受理)

²³⁵Uの核分裂生成物より約20 Ci/バッチの⁹⁹Moを製造するためには、約120 Ciの放射性ヨウ素(¹³¹I, ¹³²I, ¹³³Iなど)を取扱わなければならない。このためラジオアイソトープ製造棟に建設した20 Ciの⁹⁹Moを処理する製造施設の換気設備には排気中に放出される放射性ヨウ素を吸着、除去する目的でF.D型の活性炭フィルタ(米国, Barnebey-Cheney社製, KI₃添着炭, 2インチ層厚)2ケを内蔵したケースを装備した。1976年9月より1977年12月にかけて21回の⁹⁹Moの製造のために、換気設備は15ヶ月間連続して運転され、排気中のヨウ素の性状、漏洩量、およびフィルタの除去効率を監視した。この期間を通じて大量のヨウ素を取扱う施設の換気設備の運転保守に必要な放射線管理上、および活性炭フィルタの管理上の経験を得ることができた。すなわち、

- (1) ⁹⁹Mo製造装置から排気中へ漏洩するヨウ素は取扱量に対して約 10^{-3} %であった。
- (2) 最大処理風量で活性炭フィルタ・ケースを用いた時、15ヶ月間の平均除去率は98%以上であった。
- (3) 排気中へ漏洩するヨウ素の性状は、浮遊性ヨウ素は5%以下、無機ヨウ素成分95%以上、および有機ヨウ素成分は5%以下であった。
- (4) スタックから放出されるヨウ素量は平均2 μ Ci以下であり、管理目標値である28 μ Ci/バッチ以下に完全に適合した。

JAERI-M 7619

Ventilation System for ^{99}Mo Production Apparatus

Radioiodine Behavior and Removal Efficiency of Activated Charcoal Filter.

Mishiroku IZUMO, Shougo OKANE, Takami SORITA and Saburou AOYAMA

Division of Radioisotope Production, JAERI

(Received February 20, 1978)

In production of 20 Ci ^{99}Mo from ^{235}U fission, about 120 Ci of radioiodine (^{131}I , ^{132}I , and ^{133}I) is involved. To remove airborne radioiodine from the exhaust air from production apparatus and minimize radioiodine release to the atmosphere, the ventilation system is equipped with 2 units of Model-FD charcoal filter (KI_3 -impregnated charcoal 2 inch thick of Barnebey-Cheney Co.). From September 1976 to December 1977, 21 runs of ^{99}Mo production involving airborne radioiodine were carried out. The ventilation system was operated continuously for the whole 15 months period; variation in removal efficiency of airborne radioiodine from the exhaust air stream was observed.

In the runs valuable experiences were gained in operation and maintenance of the ventilation system including activated charcoal filter and health-physics management of such facility. Following are the results:

- (1) Airborne radioiodine from ^{99}Mo production apparatus is reduced to $10^{-3}\%$ of the original quantity.
- (2) When the ventilation system is operated at a maximum air flow rate through the filter, the average efficiency during 15 months is over 98%.
- (3) Airborne radioiodine released from ^{99}Mo production apparatus to the ventilation system is less than 5% particulate iodine and alkyl iodides and more than 95% inorganic iodine.
- (4) Airborne radioiodine released from the stack is less than $28\mu\text{Ci/run}$, which is below the limit in regulations on Radioisotope Production Laboratory.

Keywords: Molybdenum-99 Production, Fission Products, Ventilation System, Charcoal Filter, Airborne Radioiodine, Removal Efficiency, Iodine monitor, Relative Humidity, In-Place Test,

目 次

1. 序 論	1
2. 換気施設の調査, 設計および施工	1
2.1 調 査	1
2.1.1 排風機容量に関する調査	1
2.1.2 ヨウ素の除染係数に関する調査	2
2.1.3 活性炭フィルタに関する調査	2
2.1.4 給気湿度に関する調査	4
2.2 設 計	5
2.2.1 換気系統と機能	5
2.2.2 換気条件の設定	7
2.2.3 フィルタ・ケースの設計・製作	7
2.2.4 排気管およびサンプリング配管	8
2.3 施工と検査	11
3. インプレース・テストの調査と実施	11
3.1 調 査	11
3.2 測定装置と測定結果	12
4. 施設の運転	16
4.1 運転状況	16
4.2 活性炭フィルタ・ケースのヨウ素除去性能	19
4.2.1 除去性能の測定経過	19
4.2.2 測定法と除去効率の定義	20
4.2.3 ヨウ素漏洩量とその形態	22
4.2.4 除去効率測定結果	28
4.2.5 除去効率の経時変化	32
5. 製造に伴う想定事故解析と応急措置	33
6. まとめ	37
謝 辞	37
参考文献	39

Contents

1. Introduction	1
2. Investigation, design and fabrication of ventilation facilities	1
2.1 Investigation	1
2.1.1 Fan capacity	1
2.1.2 Decontamination factor of iodine	2
2.1.3 Activated charcoal filter	2
2.1.4 Relative humidity	2
2.2 Design	5
2.2.1 System and function of ventilation	5
2.2.2 Setting of ventilation conditions	7
2.2.3 Design and fabrication of filter case	7
2.2.4 Design of duct and sampling system	8
2.3 Fabrication and inspection	11
3. Investigation	11
3.1 Investigation	11
3.2 Apparatus and results of in-place test	12
4. Experiences of operation and maintenance of the production facilities	16
4.1 Situation of operation	16
4.2 Removal efficiency for ^{131}I with activated charcoal	16
4.2.1 Progress of determination of ^{131}I removal efficiency	19
4.2.2 Definition of the ^{131}I removal efficiency	20
4.2.3 Amount of ^{131}I released and its chemical form	22
4.2.4 Results of determination of ^{131}I removal efficiency	28
4.2.5 Change in ^{131}I removal efficiency with running time	32
5. Analysis and counterplans for possible troubles	33
6. Summary	37
7. Acknowledgement	37
References	39

1. 序 論

^{99}Mo の娘核種である $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は、近年核医学界で各種の診断、検査に広い用途が見出され大量に使用されている（1977年の ^{99}Mo 使用量：約 4000 Ci），原子炉中性子を利用して ^{99}Mo を製造する方法としては $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$ と $^{235}\text{U} (n, f) ^{99}\text{Mo}$ が考えられる。どちらの製造法が有利かは一概に結論することができないが詳細な比較をした結果¹⁾ ^{99}Mo の国産化を最終目標とし製造部では核分裂法を採用し、最大製造量 20 Ci / バッチ（年間 50 バッチ）の生産をおこなうこととした。このためターゲット物質には低濃縮（ ^{235}U ：2.6%）二酸化ウラン 120 g を用い、熱中性子束 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 4～7 日間照射し 2 日後に ^{99}Mo を分離製造する。この際に取り扱う全放射能は全 F.P で約 1 KCi である。このうち比較的大きな核分裂収率をもっている ^{131}I （ $T_{1/2}$ ：8.06 d）は約 28 Ci， ^{132}I （ $T_{1/2}$ ：2.3 h）は約 56 Ci， ^{133}I （ $T_{1/2}$ ：20.8 h）は約 36 Ci，であり製造時は大量のヨウ素を取り扱うため製造装置の気密化はもとより施設全体に亘り気密性を重視しなければならない。また特に排気筒（以下、スタックと言う）からのヨウ素の放出は ^{131}I で $28 \mu\text{Ci}/\text{バッチ}$ （年間 1.4 mCi）以下とする管理目標値がある。このためこれを基に換気設備の設計、施工をおこなった。

^{99}Mo 製造施設²⁾には、ラジオアイソトープ製造棟（以下、RI 製造棟）にある ^{131}I 製造施設³⁾のうち製造セル（5 基）をほぼ原型のまま ^{99}Mo の精製、配分出荷、およびキセノンガス回収のため転用するとともに、 ^{99}Mo を粗分離するため地下に重コンクリートケーブ 1 基を新設し、かつケーブとセルから排出される廃液の一時貯蔵施設および施設全体への給気と排気をおこなう換気設備を附設した。このうち換気設備については旧 ^{131}I 製造用のものを転用し大幅な改造はおこなわず既設の部分を利用した設計であるため余裕のある設備とすることは困難であった。

2. 換気施設の調査、設計および施工

2.1 調 査

2.1.1 排風機容量に関する調査

^{131}I 製造施設³⁾の換気設備を ^{99}Mo 製造用に改造するにあたり、排気する室内の空気容量には変更ないためこの系統の排風機（EF-18 系統と EF-19 系統）については設計変更の必要がない。しかし EF-17 系統の排風機（容量 $28 \text{ m}^3/\text{min}$ ，静圧 1650 mmAq）は従来の ^{131}I 製造セル 5 基分の約 11 m^3 を排気するために設置されたものであり、したがって今回の改造により排風機を新設することなくケーブ 1 基分の 11 m^3 を追加した場合の換気条件について調査、検討をおこなった。調査の対象は EF-17 の排風機を用いて各セルとケーブの最大換回数と負圧がどの程度維持できるかを検討することが主な項目である。従来この排気系統にはヨウ素除去用の活性炭フィルタ（米国，Bernebey-Cheney 社製，7 FE 型，処理風量 $28 \text{ m}^3/\text{min}$ ，圧力損失

1. 序 論

^{99}Mo の娘核種である $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は、近年核医学界で各種の診断、検査に広い用途が見出され大量に使用されている（1977年の ^{99}Mo 使用量：約 4000 Ci），原子炉中性子を利用して ^{99}Mo を製造する方法としては $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$ と $^{235}\text{U} (n, f) ^{99}\text{Mo}$ が考えられる。どちらの製造法が有利かは一概に結論することができないが詳細な比較をした結果¹⁾ ^{99}Mo の国産化を最終目標とし製造部では核分裂法を採用し、最大製造量 20 Ci / バッチ（年間 50 バッチ）の生産をおこなうこととした。このためターゲット物質には低濃縮（ ^{235}U ：2.6%）二酸化ウラン 120 g を用い、熱中性子束 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で 4～7 日間照射し 2 日後に ^{99}Mo を分離製造する。この際に取り扱う全放射能は全 F.P で約 1 KCi である。このうち比較的大きな核分裂収率をもっている ^{131}I （ $T_{1/2}$ ：8.06 d）は約 28 Ci， ^{132}I （ $T_{1/2}$ ：2.3 h）は約 56 Ci， ^{133}I （ $T_{1/2}$ ：20.8 h）は約 36 Ci，であり製造時は大量のヨウ素を取り扱うため製造装置の気密化はもとより施設全体に亘り気密性を重視しなければならない。また特に排気筒（以下、スタックと言う）からのヨウ素の放出は ^{131}I で $28 \mu\text{Ci}/\text{バッチ}$ （年間 1.4 mCi）以下とする管理目標値がある。このためこれを基に換気設備の設計、施工をおこなった。

^{99}Mo 製造施設²⁾には、ラジオアイソトープ製造棟（以下、RI 製造棟）にある ^{131}I 製造施設³⁾のうち製造セル（5 基）をほぼ原型のまま ^{99}Mo の精製、配分出荷、およびキセノンガス回収のため転用するとともに、 ^{99}Mo を粗分離するため地下に重コンクリートケーブ 1 基を新設し、かつケーブとセルから排出される廃液の一時貯蔵施設および施設全体への給気と排気をおこなう換気設備を附設した。このうち換気設備については旧 ^{131}I 製造用のものを転用し大幅な改造はおこなわず既設の部分を利用しての設計であるため余裕のある設備とすることは困難であった。

2. 換気施設の調査、設計および施工

2.1 調 査

2.1.1 排風機容量に関する調査

^{131}I 製造施設³⁾の換気設備を ^{99}Mo 製造用に改造するにあたり、排気する室内の空気容量には変更ないためこの系統の排風機（EF-18 系統と EF-19 系統）については設計変更の必要がない。しかし EF-17 系統の排風機（容量 $28 \text{ m}^3/\text{min}$ ，静圧 1650 mmAq）は従来の ^{131}I 製造セル 5 基分の約 11 m^3 を排気するために設置されたものであり、したがって今回の改造により排風機を新設することなくケーブ 1 基分の 11 m^3 を追加した場合の換気条件について調査、検討をおこなった。調査の対象は EF-17 の排風機を用いて各セルとケーブの最大換気回数と負圧がどの程度維持できるかを検討することが主な項目である。従来この排気系統にはヨウ素除去用の活性炭フィルタ（米国，Bernebey-Cheney 社製，7 FE 型，処理風量 $28 \text{ m}^3/\text{min}$ ，圧力損失

20 mmAq)を設置していたが⁹⁹Mo製造施設に改造するため後述する理由により別型の活性炭フィルタ(米国, Bernebey-Cheney社製, FD型-SP1504, 処理風量16.8 m³/min, 圧力損失20 mmAq)を用いることとした。このため排気流量は16.8 m³/minに規制されることとなり排風機の排気量には不足ないがこの排気量における最大換気回数はケーブで60回/hr, 各セルのインナ・ボックスで60回/hr, 各セル内(鉛遮蔽体とインナ・ボックス間)で30回/hrである。一方, 負圧に関しては改造に先立ち全排気系統の静圧の実測を排気量17 m³/min下において実施し, その結果から改造後の各所の圧力損失を推定した。実測値と推定値をTable 1に示す。排気量17 m³/minにおける排風機の静圧は1600 mmAqであった。従来の排気配管系では末端の各セル, インナ・ボックスの最大負圧は150 mmAqであったが, 今回は排気ろ過装置内へ設置する活性炭フィルタの数量が倍増すること, 新設ケーブへの配管などがあるためその分の圧力損失が加わり, 末端のケーブおよびインナ・ボックスにおける最大負圧は100 mmAq以下になることが予想された。フィルタの目詰りによる圧力損失は給気をあらかじめ浄化してあるため長期においても顕著な増加のない傾向にあり, したがってケーブおよびインナ・ボックスの常用負圧60 mmAq(設計値)には維持できると判断した。その結果, 改造にあたり負圧容量に十分な余裕はないがEF-17系統の排風機はそのまま使用することが可能であることが推定された。

2.1.2 ヨウ素の除染係数に関する調査

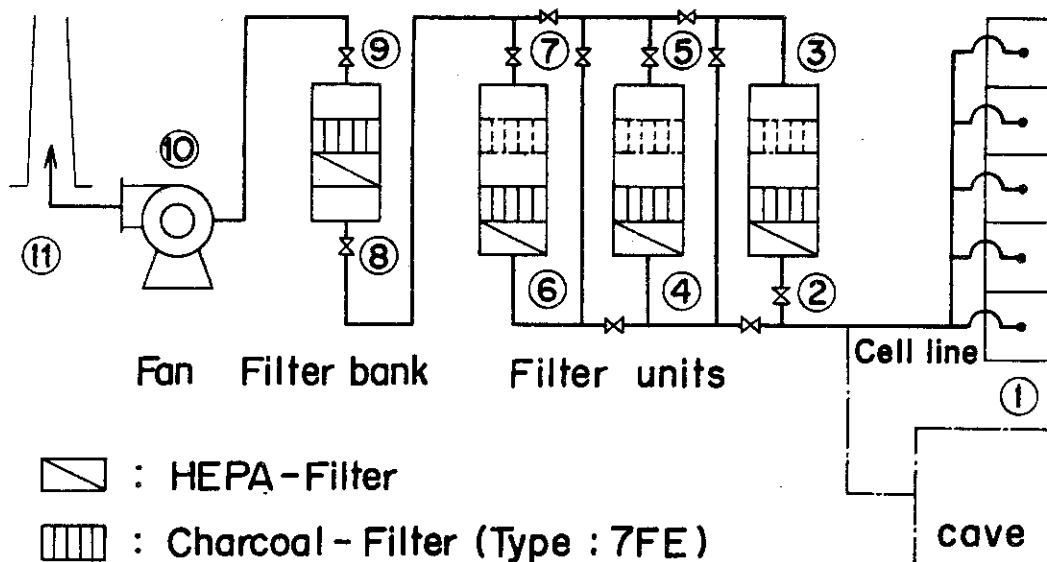
当製造施設における放射性ヨウ素放出の管理目標値は, 環境に対する被曝線量評価と総排気規制にともなう割当量の双方から評価して1バッチあたり¹³¹Iで28 μCiと算出されており, ¹³²I, ¹³³Iに対しては短半減期であるため被曝線量評価の対象外としている。⁹⁹Mo製造作業開始時における¹³¹Iの取扱量は約28 Ciであるため製造装置を含めてスタックまでに必要な除染係数は10⁻⁶である。実際には製造装置系で10⁻³程度まで除染する設計であるため, 換気設備での必要除染係数は10⁻³以上であれば充分と考えられた。しかし, 取扱中の全¹³¹Iが放出されるような事故, あるいは, 場合によっては貯蔵中の¹³¹Iを加算した量が放出される最大事故を想定すれば最大除染係数として10⁻⁷を必要とする。したがってこの全¹³¹I(約55 Ci, 連続した5バッチ分の合計)を換気設備の活性炭フィルタで除去するためにはフィルタ1ヶあたりの除去効率を99%として4ヶのフィルタが必要であるが, 連続通気の使用下において年単位の長期間にわたって高効率を期待することはできない。したがって実験による経験³⁾から推定して長期間の平均的除去効率を90~95%の範囲とし, 6ヶの活性炭フィルタを直列状態で使用することが必要となる。

2.1.3 活性炭フィルタに関する調査

ガス状の放射性ヨウ素を除去するために活性炭を用いた研究は数多く報告されており, すでに原子力発電所の非常用排気系などに実用化が進みその効果については実証ずみの段階である。放射性ヨウ素の活性炭への吸着機構はヨウ素の性状(浮遊性ヨウ素, 無機ヨウ素, 有機ヨウ素)によって異なる。とくに有機ヨウ素を効果的に除去するため, 活性炭にKI₃(KI+I₂), TEDA(トリエチレンジアミン)或いはSnI₂などの物質を添着し, 同位体交換反応などに基づき有機ヨウ素中の放射性ヨウ素を固定することにより活性炭中に保持する方法が採用されている。例え

Table 1 Measured and estimated values of negative pressure

Check point	Measurement (mmAq)	Estimation (mmAq)
1	150	90
1 ~ 2	160	160
2 ~ 3	70	100
3 ~ 4	300	300
4 ~ 5	65	85
5 ~ 6	250	250
6 ~ 7	65	85
7 ~ 8	150	150
8 ~ 9	100	100
9 ~ 10	200	200
10 ~ 11	50	50
Total static pressure	1560	1580



ばヨウ化メチルの場合は次のごとくである。



添着物質については無機物、有機物の双方に対して研究されているが、前記の物質を添着したやし殻活性炭が市販されている。無添着活性炭或いは添着活性炭を金網またはパンチングメタルを両端に設けた容器中にサンドイッチ状に充填したものが“活性炭フィルタ”として用いられており、活性炭の種類及び容器材質が使用状況に応じて選択できる。活性炭の選択にあたっては粒径、添着物質、着火温度、および硬度などを対象に検討したが、実質的には添着物質の選択であった。着火温度は種類によって約 250 から 500 °C の範囲に在る。着火の要因としては通気ガスが高温の場合と大量の放射性ヨウ素を吸着した結果起る崩壊熱の蓄積による場合が考慮されるが（実際には通気により冷却緩和される）、当施設においてはこのいずれも該当しない。これらのことから活性炭の種類については現在までに国内外で研究の対象として多用されている MSA-85851、BC-727、5%TEDA および SnI₂^{4),5)} の添着活性炭について文献調査の結果、性能的には有意な差を認め難く、使用の条件によって吸着能力、耐用期間に影響を与えると判断し使用経験のある BC-727 を採用した。BC-727 を充填した活性炭フィルタは FE（ひだ型、1 インチ層厚）、FD（ひだ型、2 インチ層厚）、及び FC（トレイ型、2 インチ層厚）の各型があり、容器材質はカーボンスチール、SUS-304、SUS-304 L のいずれかを通気ガスの雰囲気に応じて選択できる。当施設の場合、フィルター・ケースを設置する場所の形状の関係上 FC 型は使用困難であるため FD 型を採用し、⁹⁹Mo 製造工程により硝酸ガス雰囲気となる可能性に対処し容器材質は SUS-304 L で製作されている活性炭フィルタ（米国 Barnebey-Cheney 社製、FD 型-SP 1504）を用いることとした。

2.1.4 給気湿度に関する調査

放射性ヨウ素除去のため排気系に活性炭フィルタを用いた場合、その使用条件すなわち排気処理風量と面速度（滞留時間）、排気中の湿度、連続通気の有無などが吸着効率および吸着能力の低下に対して時間的な影響を与える。このうち湿度の吸着効率への影響は顕著である、単体ヨウ素の場合は飽和湿り空気でも高効率を期待できるが空気中に水滴が入ってくると急激に効率低下を示しその水分量は約 7.5g/m³ 相当と報告⁶⁾されている。一方有機ヨウ素のうちヨウ化メチルを対象に湿度との関係についての研究報告⁷⁾によれば、無添着炭の場合相対湿度が 40%~80% の間における効率低下が著しく大きく、100% 近くではほとんど吸着されないとされている。この原因は活性炭の水蒸気吸着量との関係から活性炭表面のヨウ化メチル吸着サイトが水蒸気で覆われることに基因すると推定されている。実際、筆者らが無添着炭（BC-416）を用いて長期間追跡した結果⁸⁾においても類似の傾向が測定された。このため前述した添着活性炭が開発され添着物質ごとに対する効率と相対湿度の関係が示されているが、湿度 80% 以上で漸次低下しはじめ 95% 以上では急激な効率低下を示すことが報告⁹⁾されている。

このような調査を背景に当施設の改造前における給気湿度の調査をおこなった。RI 製造棟の機械室では給気系に特別の除湿機を運転はしておらず、かつ勤務時間以外は給気停止をしている

ため年間を通じて当施設への給気中の相対湿度は2年間の平均値で次の通りであった。

月	勤務時間中(8時間) の相対湿度(%)	暖・冷房の有無	夜間(16時間) の相対湿度(%)
1	40 ± 15	暖房	70 ± 10
2	60 ± 10	"	80 ± 10
3	60 ± 15	"	80 ± 15
4	65 ± 5	無	85 ± 10
5	70 ± 15	"	90 ± 5
6	70 ± 15	"	85 ± 5
7	60 ± 10	冷房	85 ± 10
8	60 ± 10	"	85 ± 10
9	60 ± 5	"	80 ± 15
10	55 ± 5	無	80 ± 10
11	55 ± 15	暖房	80 ± 10
12	40 ± 15	"	80 ± 15

勤務時間内における給気湿度は冷・暖房等の空調により年間平均は60 ± 10%であるが夜間の場合は外気を直接吸引するため80 ± 12%と湿度が高い。当施設の排気系は終夜連続運転であるため一定した空調を必要としたが、¹³¹I製造施設の設計時点(1964年)においては有機ヨウ素の生成過程、除去方法などについて研究段階にあったため、現在では重要なことであるが設計条件に考慮しなかった経緯がある。施設改造にともない給気湿度の制御は必須条件であるため除湿の方法につき相対湿度60%以下とすることを目標に、(1)除湿機の新設、(2)除湿剤による除湿、(3)活性炭フィルタ前での加熱除湿、などにつき検討した。その結果経費面では不利であるが除湿性能が優れ、かつ一定した連続運転ができ保守の面で有利である除湿機の新設をおこない改造施設全域に対し給気する方法を採用した。

2.2 設計

2.2.1 換気系統と機能

2.1.1で述べたように今回の改造により追加される換気対象はケープ(11 m³)とそのオペレーションルーム(40 m³)である。前者はEF-17系統、後者はEF-18で排気することとした。これらを含めた施設的全換気系統をFig. 1に示す。空気の流れとしては、501室で除湿された空気がケープ・オペレーションエリア(以下309B)へ400 m³/hr、セル・オペレーションエリア(以下309O, A)へ900 m³/hr、およびセルのサービスエリアであり、かつケープの階上に位置するエリア(以下309SA)へ1700 m³/hrそれぞれ分割給気される。309Bの空気は309SAに流入するため309SAの全給気量は2100 m³/hrとなるがこのうちケープへ700 m³/hr、5基のセルへ500 m³/hrの合計1200 m³/hrが吸引されEF-17系統で排気する。309SAの残り900 m³/hrと309OAへ給気された分はEF-18系統で排気する。一方、廃液一時貯蔵施設であ

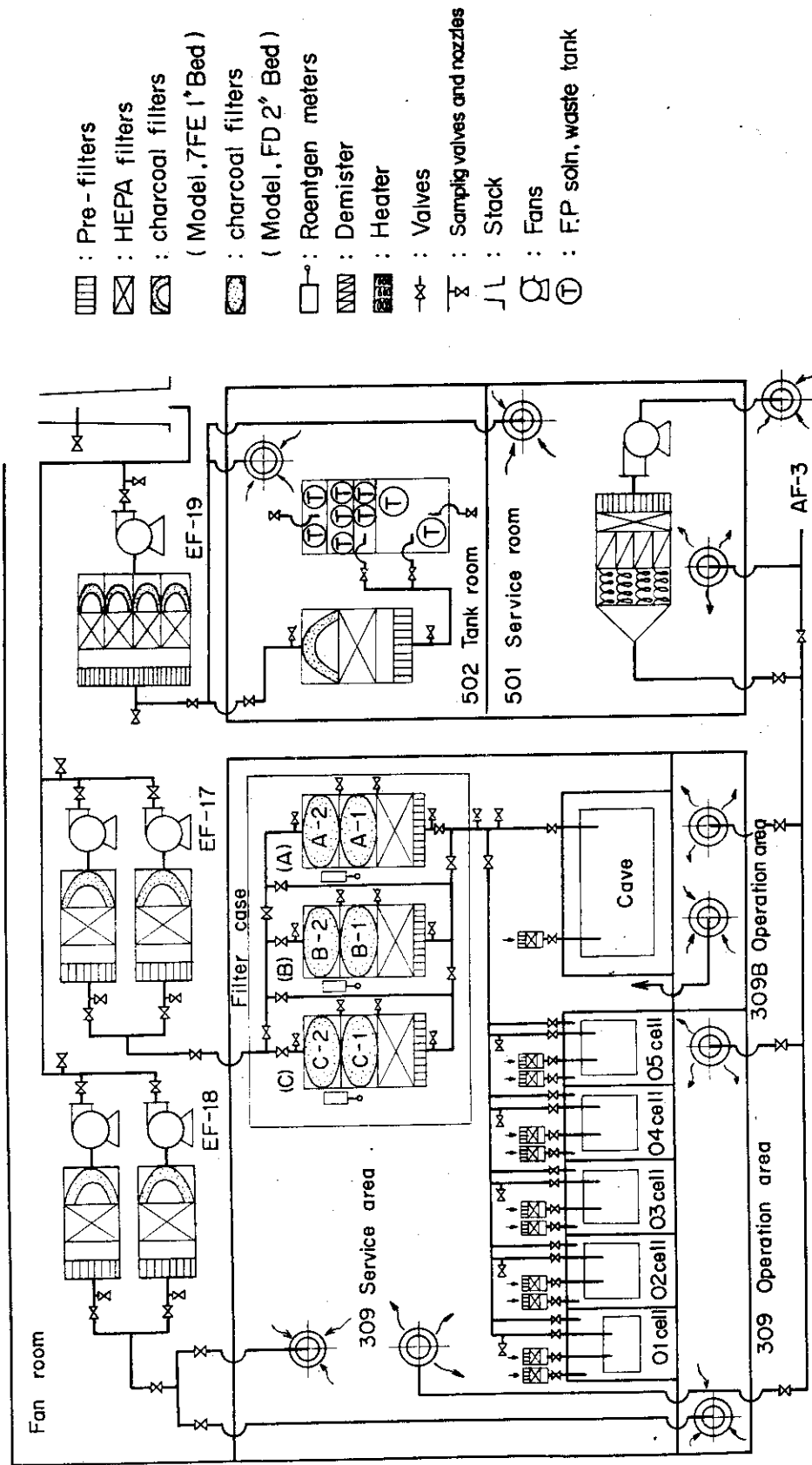


Fig. 1 Ventilation system of ^{99}Mo production facilities

る502室へは501室を經由して給気第3系統より直接4800 m³/hr給気され502室のタンク貯蔵ピットの換気も兼ねてEF-19系統で排気する。各排気系の末端には原研型排気ろ過ユニットが設置され、プレフィルタ、HEPA、および1インチ層厚の活性炭フィルタ(米国Barnebey-Cheney社製、7FE型)が装着されているが、EF-17ではフィルタ・ケース(A)、(B)、(C)(プレフィルタ、HEPA、2インチ層厚活性炭フィルタ×2ケ)で事前ろ過される。またEF-19の一部、タンク貯蔵ピットの空気もフィルタユニット(プレフィルタ、HEPA、7FE型)で事前ろ過される。以上主な換気の系統についてのべたが、基本的には改造前に準ずるものであり、給気系統を充実しながら拡大した換気対象区域を排風機の変更なしで所定の換気回数および負圧を維持することが設計の要点であった。設備機器の面ではEF-17系統の特にケーブ給気弁、フィルタ・ケース切替弁を従来の手動弁から圧空操作による完全気密蝶形弁に変更した。これによりフィルタ・ケースの使用系統の切替をスイッチ操作で瞬時におこないヨウ素放出などの緊急時対応性をよくした。セル、インナー・ボックスおよびケーブの負圧制御の方法は改造前と同様であり、検出器の場所を04セルインナー・ボックスからケーブに変更したのみである。また送風機と排風機間でインター・ロック回路を設け排風機稼動とともに送風機が運転され、送風機故障の場合でも排風機の稼動は可能とした。

2.2.2 換気条件の設定

換気条件としては換気回数、負圧、風向を設定する必要がある。換気回数を制限する要因は排風機容量とともに排気ろ過装置内に用いている各種フィルタの処理風量により決まる。したがって当施設の場合、EF-17では2.1.1、2.1.3でのべたことより16.8 m³/min(1080 m³/hr)、EF-18では28 m³/min(1480 m³/hr)、EF-19では7FE型フィルタを4ケ並列に用いているため112 m³/min(6720 m³/hr)がそれぞれ排気適性値である。また負圧に関しては主たる対象区域はセル内、インナ・ボックス及びケーブでありこれも2.1.1でのべたことにより可能であると判断しこれらの設計値をTable 2に示す。

2.2.3 フィルタ・ケースの設計、製作

この項で述べるフィルタ・ケースとは、EF-17系統に原研型排気ろ過ユニットとは別途に設置する(A)、(B)、(C) 3基のケースである。EF-19系統のタンク貯蔵ピットに用いたフィルタ・ユニットは従来のヨウ素製造時のものを転用することとしたため設計対象外とした。フィルタ・ケースの機能として要求されることは、2.1.2で述べたヨウ素の除染係数との関係から2インチ層厚活性炭フィルタ(以下FD型)2ケずつ各ケースに収納した合計6ケのフィルタを直列状態で通気でき、かつ1ケースごとの所定の性能を有することにある。それぞれのケースは150mm厚の鉄製しゃへい体内に収め、最大55 Ciの放射性ヨウ素を吸着蓄積した場合のケースからの放射線に備えるが、しゃへい体は改造前のものを転用するためケースの収納寸法は200×95×95cmに制限される。1ケースに必要なフィルタ・エレメントはプレフィルタ、HEPA、FD型×2ケを最低条件とし、次の諸点に留意して設計をおこなった。

- (1) 排気成分が硝酸系となりうるため構造材質はすべてSUSを用いる。
- (2) フィルタ・エレメントの交換は開口部については交換頻度を考慮してFD型2ケ、プレフ

Table 2 Conditions of ventilation

Vent. area	Volume (m ³)	frequency of exchange (%)	pressure drop (mmAq)	Exhaust Fan
309 I. B	1.2x5	60	60	EF-17
309 I. C	1.0x5	30	20	
⁹⁹ Mo Cave	11	60	60	
309 B	40	10	5	EF-18
309 S. A	370	6.5		
309 O. A	50	18		
501	480	5		EF-19
502	220	9		
T. R NO.1	21	9		
T. R NO.2-A	6	30		
T. R NO.2-B	3	60		
T. R NO.2-C	3	60		

I. B ; inner box
 I. C ; inside of cell
 S. A ; service area
 O. A ; operation area
 T. R ; Disposal tank room
 P. O ; pressure drop

フィルタとHEPA1ケの3分割としビニールバックアウト方式により処理する。

(3) ケース内におけるフィルタ・エレメントの設置はエレメントの重量、構造を考慮しパッキング面の損傷などによるバイパス発生のない方法とする。特にFD型の重量は約100kgであるため挿入、締めつけ方法を従来と変更する。

(4) ケース本体およびフィルタ・エレメントを設置する部分の気密度はケースと同様の $1\text{v}/6\text{hr}$ 以下とする。その結果、フィルタ・ケースの外形をFig. 2、フィルタ・エレメント締め付け構造をFig. 3に示す。気密試験はあらかじめ溶接線のカラーチェック、発泡試験($0.1\text{kg}/\text{cm}^2$)、ハロゲン・リーク試験(フレオン-12使用)による検査後、大気圧比較法による減圧試験(200mmAq)をおこなった。いずれも設計目標値を下回る漏洩率であった。

2.2.4 排気管およびサンプリング配管

今回の改造ではケースからフィルタ・ケース廻りまでの排気管を新設、または交換するのみであり、各セル、インナ・ボックス、およびフィルタ・ケースから排風機に至る排気管は改造前のまま使用した。新設および交換のための排気管は内面に硬質塩化ビニールをライニングした鋼管を用いた。フィルタ・ケース廻りの排気管取付状況をFig. 4に示す。また、製造施設内の空中濃度測定、フィルタ・ケースの性能測定などに必要なサンプリングノズルを各所に取付けた。取付個所はFig. 1にサンプリングバルブで示した。これらはノズルから配管により1ヶ所にまと

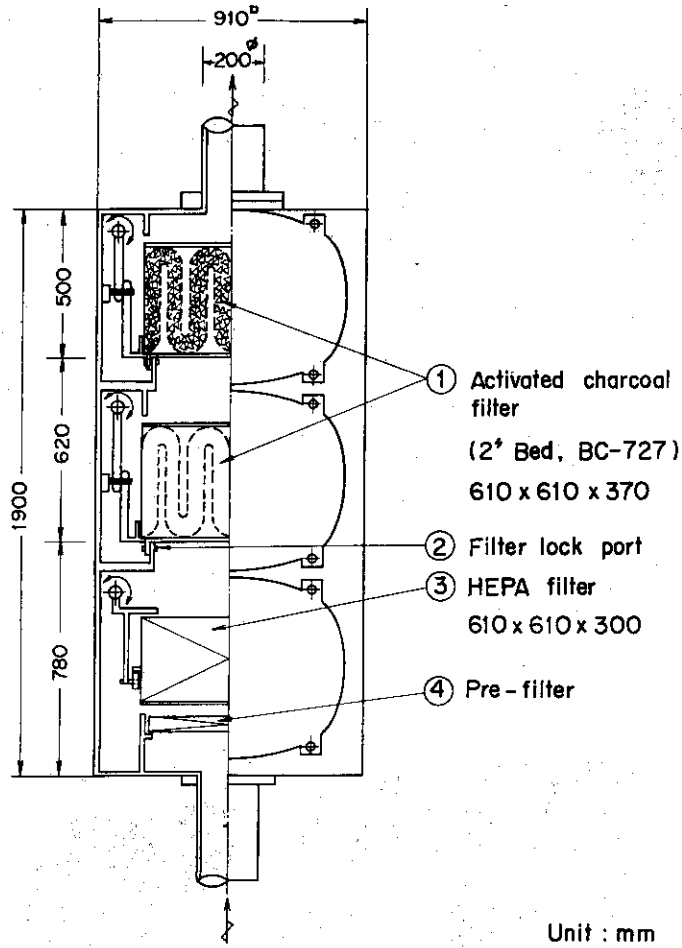


Fig. 2 Filter case in the ventilation system

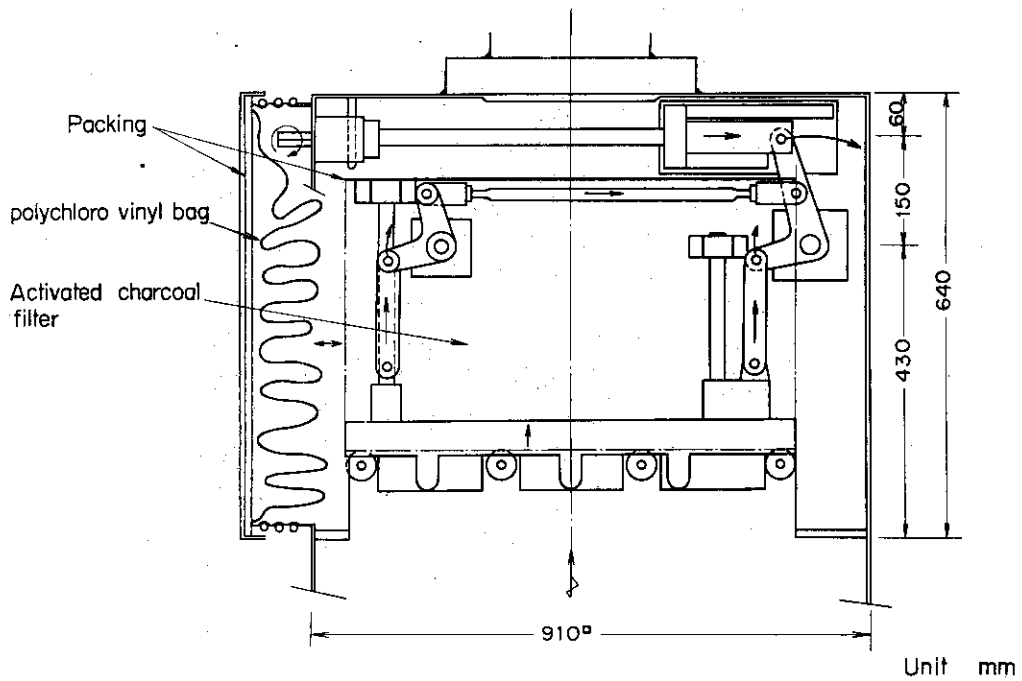
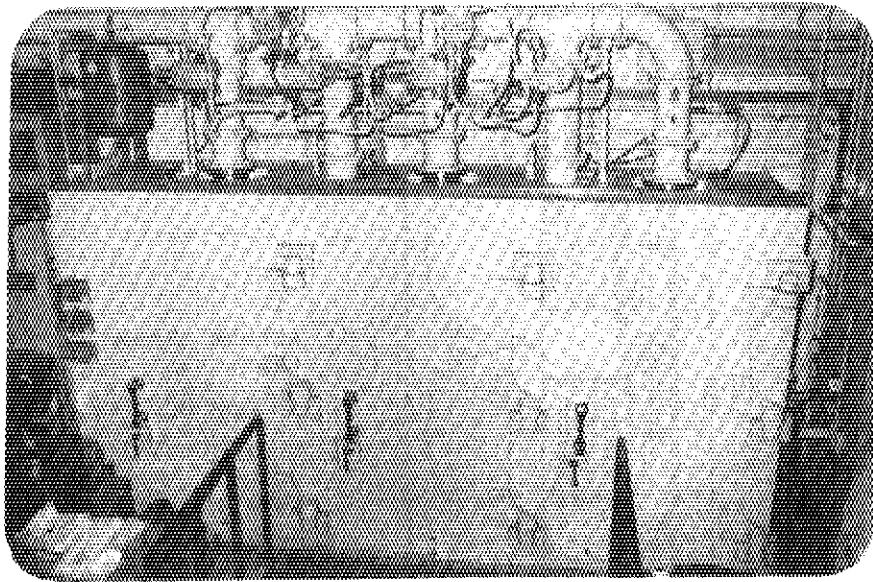
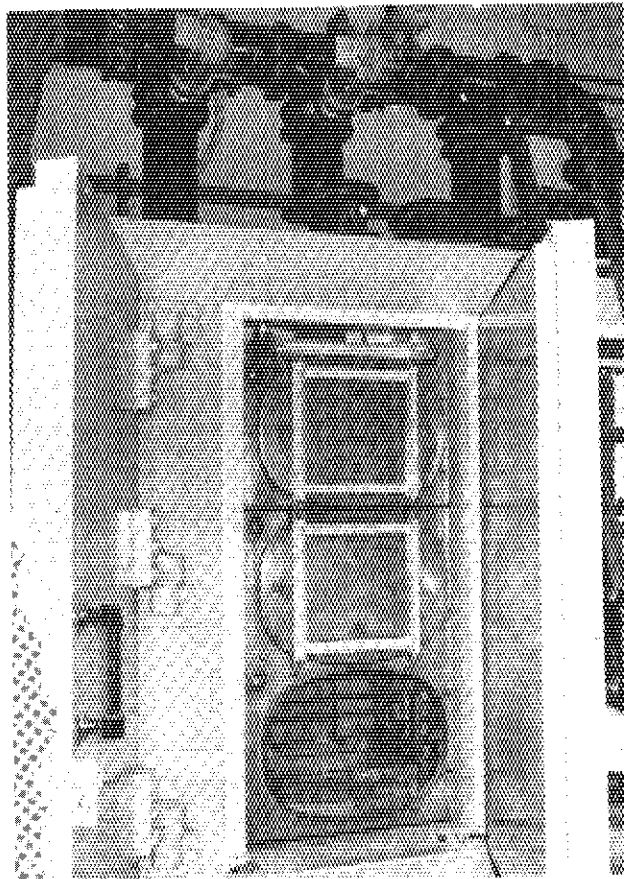


Fig. 3 Mechanism of lock part for activated charcoal filter



Shield of filter case and duct



Inside view of filter case

Fig. 4 Front view of the filter case and duct

め、その間の配管の気密は加圧試験 (2 kg/cm^2)、ハロゲン・リーク試験で検査した。排気管についても同様の検査をおこなった。

2.3 施工と検査

前述した設計内容にもとずき施工は順調におこなわれた。換気設備施工後の検査は、排気管気密試験、排風機と送風機のインターロック試験、除湿機性能試験、圧空弁作動試験、静圧制御試験、および 2.2.2 による換気条件設定値に対する適合試験などである。その結果すべての設計基準に達していた。

3. インプレース・テストの調査と実施

3.1 調査

2.2.3 でのべた EF-17 系統に用いるフィルタ・ケース内の、各フィルタ・エレメントのインプレース・テストに関し調査をおこなった。運転後のフィルタ、およびケースのフィルタ・エレメント締付け部分の性能の定期検査としては、1) インプレース・テストと、2) 放射性ヨウ素による除去効率測定が主である。後者については次章に詳述するのでここでは前者による HEPA と活性炭フィルタの検査について述べる。HEPA に関しては従来より D.O.P (Di-octyl Phthalate) スモークテストが一般化しており、とくに原子力施設における種々の条件などについて研究¹⁰⁾がなされている。また原子力研究所においては、使用施設運転委員会内に 1972 年 7 月に設置されたフィルタ専門部会により HEPA の現場試験および交換保守に関する技術的基準が明示されているので、これに適合する試験法を採用することとした。

一方、活性炭フィルタに対しては HEPA に準ずるような検査法が確立または一般化される段階にありそのための研究¹¹⁾が多くなされている。活性炭フィルタに関してはそのリーク径路としてフィルタ枠やガスケット部等の密着不良は HEPA と共通する点であるが、設置後または使用中において活性炭の充填層に空隙ないし薄層部の発生を考慮しなければならない。このため設置時および使用後定期的にリーク径路に対する検査が必要となる。検査方法としては、1) ハロゲン化合物による方法、2) 放射性ヨウ素 (単体状ヨウ素とヨウ化メチル) による方法、3) 非放射性ヨウ素による方法 (アクチバブルトレーサ法を含む) に分類される。2) は運転後に定期的 to 実施することとし、3) は 2) に比べて測定感度が悪く、かつ試料分析に長時間を要するため採用しないこととした。このようにして設置時の検査法として比較的手軽であるハロゲン化合物による検査につき調査した。試験気体としてフロン-112 (以下、F-112) または四塩化炭素を用いる方法がある。前法は後法に比べて測定値が不連続で空気中の水蒸気の影響を受けやすい欠点はあるが測定器によっては 99.99% までの設置効率が測定可能である。活性炭に吸着された F-112 は空気流に約 3 週間程さらすと 95% 以上が脱着され、かつそれ自身はヨウ素除去性能に影響をおよぼさないことが確かめられている¹²⁾が、ヨウ素またはヨウ化メチル除去効率との相関性が明らかでないためその研究がおこなわれている¹³⁾。原子力発電所の非常排気系に設置されている活性炭フィルタについては米国仕様に基づき F-112 を試験気体とする方法を採用するところが

め、その間の配管の気密は加圧試験 (2 kg/cm^2)、ハロゲン・リーク試験で検査した。排気管についても同様の検査をおこなった。

2.3 施工と検査

前述した設計内容にもとずき施工は順調におこなわれた。換気設備施工後の検査は、排気管気密試験、排風機と送風機のインターロック試験、除湿機性能試験、圧空弁作動試験、静圧制御試験、および2.2.2による換気条件設定値に対する適合試験などである。その結果すべての設計基準に達していた。

3. インプレース・テストの調査と実施

3.1 調査

2.2.3でのべたEF-17系統に用いるフィルタ・ケース内の、各フィルタ・エレメントのインプレース・テストに関し調査をおこなった。運転後のフィルタ、およびケースのフィルタ・エレメント締付け部分の性能の定期検査としては、1) インプレース・テストと、2) 放射性ヨウ素による除去効率測定が主である。後者については次章に詳述するのでここでは前者によるHEPAと活性炭フィルタの検査について述べる。HEPAに関しては従来よりD.O.P (Di-octyl Phthalate) スモークテストが一般化しており、とくに原子力施設における種々の条件などについて研究¹⁰⁾がなされている。また原子力研究所においては、使用施設運転委員会内に1972年7月に設置されたフィルタ専門部会によりHEPAの現場試験および交換保守に関する技術的基準が明示されているので、これに適合する試験法を採ることとした。

一方、活性炭フィルタに対してはHEPAに準ずるような検査法が確立または一般化される段階にありそのための研究¹¹⁾が多くなされている。活性炭フィルタに関してはそのリーク径路としてフィルタ枠やガスケット部等の密着不良はHEPAと共通する点であるが、設置後または使用中において活性炭の充填層に空隙ないし薄層部の発生を考慮しなければならない。このため設置時および使用後定期的にリーク径路に対する検査が必要となる。検査方法としては、1) ハロゲン化合物による方法、2) 放射性ヨウ素 (単体状ヨウ素とヨウ化メチル) による方法、3) 非放射性ヨウ素による方法 (アクチバブルトレーサ法を含む) に分類される。2) は運転後に定期的実施することとし、3) は2) に比べて測定感度が悪く、かつ試料分析に長時間を要するため採用しないこととした。このようにして設置時の検査法として比較的手軽であるハロゲン化合物による検査につき調査した。試験気体としてフロン-112 (以下、F-112) または四塩化炭素を用いる方法がある。前法は後法に比べて測定値が不連続で空気中の水蒸気の影響を受けやすい欠点はあるが測定器によっては99.99%までの設置効率が測定可能である。活性炭に吸着されたF-112は空気流に約3週間程さらずと95%以上が脱着され、かつそれ自身はヨウ素除去性能に影響をおよぼさないことが確かめられている¹²⁾が、ヨウ素またはヨウ化メチル除去効率との相関性が明らかでないためその研究がおこなわれている¹³⁾。原子力発電所の非常排気系に設置されている活性炭フィルタについては米国仕様に基づきF-112を試験気体とする方法を採用するところが

多く、設置時および年1回の定期検査の結果は所轄省（この場合通産省）に報告している。原研においてもJPDR, NSRR, (F-112法), JMTR(四塩化炭素法)の各排気設備の活性炭フィルタは定期検査がなされている。しかし前述したように所内基準の設定に至っていないため設置効率の基準をそれぞれ、JPDRで99.9%, JMTRで99%, NSRRでは95%としてインプレース・テストを実施している。これらの調査にもとずき当施設における検査法はF-112を試験気体としてエレクトロンキャプチャ型検出器を用いてガスクロマトグラフ分析をおこない設置効率99.95%以上の検出をおこなえるよう検討した。

3.2 測定装置と測定結果

HEPAの試験をおこなうために必要な装置は主に次のものである。

- i) DOP粒子発生器およびコンプレッサー
- ii) DOPエアロゾル濃度測定用のじん埃濃度計
- iii) 試料採取ポンプ及び採取管

また、活性炭フィルタを試験するF-112法に必要な装置は次のものから構成される。

- i) F-112発生器およびコンプレッサー
- ii) エレクトロンキャプチャ型ガスクロマトグラフまたは拡散型水素炎イオン化ガスクロマトグラフ
- iii) 活性炭フィルタ上流側試料の稀釈装置一式
- iv) 試料採取ポンプ, 採取管, 窒素ガスおよび付属品

これらの装置は一般的にはフィルター製作会社が所持しており、フィルター施設の新設時あるいはその後の交換時などの検査は製作会社に依頼することができる。

当施設では新設後においてフィルタの交換頻度が多くなると推定されたので、現場係員による自主検査を必要に応じてすぐ実施可能とするため、これらの装置のうち測定器関係の物品のうち、DOPエアロゾル濃度測定のためには前方散乱式じん埃濃度計(TDA-2C; ATI社製)を、F-112の濃度測定には高感度のエレクトロンキャプチャ型ガスクロマトグラフ(GC-3BE; 島津製作所製)をそれぞれ担当の部所より借用することとし、DOP発生器、F-112発生器および稀釈装置などの付属品を具備したインプレーステスト装置を製作、所持することとした。Fig. 5に装置の系統を、Fig. 6に装置の内部を示す。

これらの測定装置物品を用いてフィルタ・ケース内のHEPAフィルタ3ヶ、活性炭フィルタ6ヶについてインプレーステストを実施した。テストに先立ちフィルタの挿入はフィルタ・ケース内へ手順に従っておこなわれ特別の処置はおこなっていない。

HEPAフィルタ(ケンブリッジフィルタ, モデル1G-1000; DOPテスト99.99%以上)については各フィルタ・ケースへ設置後Fig. 6のD.O.P発生器より圧力 $2.2\text{kg}/\text{cm}^2$ にてD.O.P.エアロゾルを投入し上流側, 下流側よりサンプリングをおこない原研内の基準にもとづく測定, 設置効率計算をおこなった。測定は1ヶのHEPAに対して5回おこないその平均値を採用した。その結果, フィルタ・ケース(A)のHEPAは99.996%, (B)は99.995%, (C)は99.949%の設置効率でありいずれも99.9%の原研内の基準を上回り, 設置状況およびHEPAの性能が良好であることを確認した。

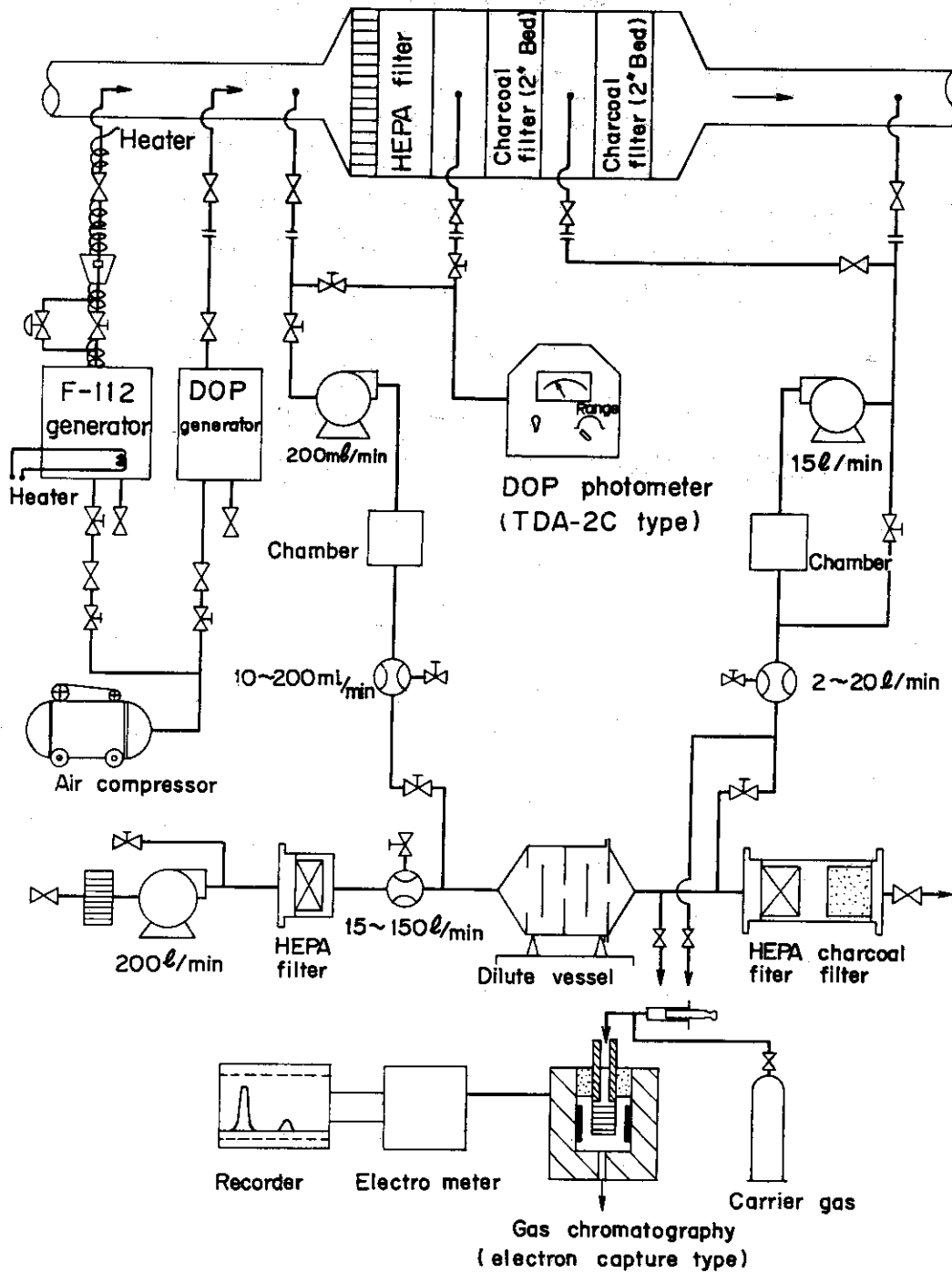


Fig. 5 In-place test system of HEPA and charcoal filter

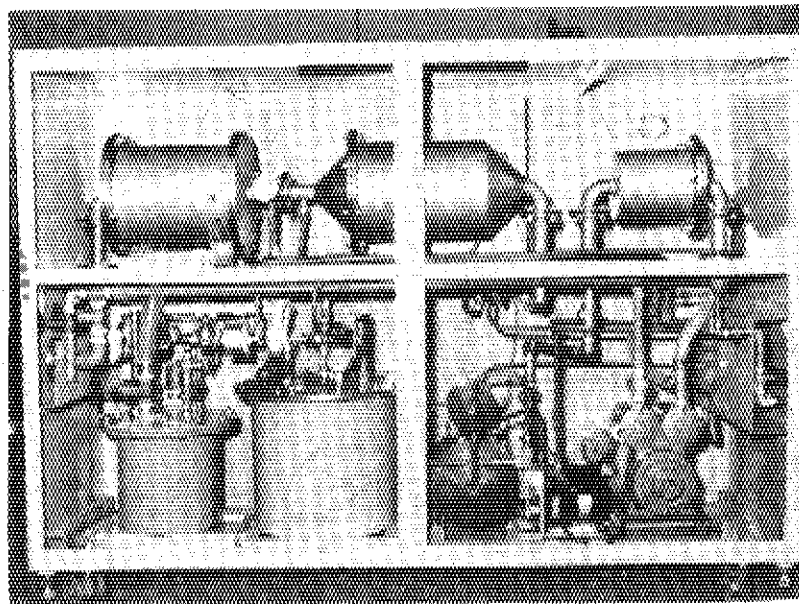


Fig. 6 Inside view of in-place test apparatus

活性炭フィルタ（米国 Barnebey Cheney 社製，FD型，F-112 リークテスト；99.99%以上）については，まずフレオン-112 濃度とピーク面積（ mm^2 ）の検量線を使用測定器で作成しておき，次にFig. 6 のF-112 発生器を95℃前後に加熱（ダクト本管までの注入管も同温度に加熱）したのち0.5 kg/cm^2 程度の圧力でF-112 ガスをダクト本管に注入する。この条件下での発生量は15~20 g/min である。上流側のサンプルは稀釈装置に導入されるがサンプリングする流量と稀釈する流量とによって稀釈倍率が算出される。稀釈倍率は通常1000~2000を必要とする。稀釈した一部をガスサンプリングすると同時に下流側のガスもサンプリングしそれぞれの定量をおこなう。定量したピーク面積（ mm^2 ）から検量線によりF-112 濃度を算出したのち稀釈倍率および流量比の補正をおこない次式により効率を算出する。

$$\eta = \frac{C_i - (C_o - C_B)}{C_i} \times 100 \quad (\%)$$

- ここで， η : 活性炭フィルタの全体設置効率
 C_i : 活性炭フィルタ上流側のフレオンガス濃度
 C_o : 活性炭フィルタ下流側のフレオンガス濃度
 C_B : 活性炭フィルタ下流側のバックグラウンド濃度

このようにF-112 を試験気体とした活性炭フィルタのインプレース・テストの結果をTable 3に示す。1基のフィルタケースには2ケの活性炭フィルタが装備されているのでそれぞれの効率を求めたのち2ケ分の効率測定もおこなったが実際は下流側濃度測定が困難であった。その結果，設計基準とした99.95%をいずれも上回り活性炭フィルタ自体の効率である99.99%に匹敵する。したがって設置によるガasket部のリーク，あるいは損傷による欠陥はないものと判定

Table 3 Results of in-place test for FD type activated charcoal filter with F-112

Filter case	Filter NO	Test run	Inlet		outlet	Efficiency (%)	F-112 aerosol generator
			F-112 (ppb)	Dilution ratio	F-112 (ppb)		
A	A1	1	165	1000	33	99.98	temp. 80°C pres. 0.2 kg/cm ²
		2	72	1000	31	99.96	
	A2	1	360	1000	34	99.99	temp. 95°C pres. 0.6 kg/cm ²
		2	640	2000	50	99.99	
	A1+A2	1	600	1000	N.D	> 99.99	
		2	640	2000	40	99.99	
B	B1	1	50	2000	33	99.97	temp. 60°C pres. 0.1 kg/cm ²
	B2	1	57	2000	32	99.97	
	B1+B2	1	70	2000	N.D	> 99.99	
C	C1	1	78	2000	30	99.98	temp. 60°C pres. 0.1 kg/cm ²
	C2	1	78	2000	31	99.98	
	C1+C2	1	78	2000	N.D	> 99.99	

Test conditions

Exhaust capacity : 17 m³/minF-112 aerosol generator : pressure 0.1 ~ 0.6 kg/cm²,

Temperature 60 ~ 95°C

Gas chromatograph : Shimazu Co, Ltd (Type : GC-3BE)

するとともに、次章にて述べる放射性ヨウ素除去時のバイパスリーク率は0.05%以下であることが評価できた。

フィルタ・ケースに装備したHEPAフィルタ、活性炭フィルタの設置状況は極めて良好であり、かつフィルタの交換設置にあたり特別の調整は不要であることから再現性も充分期待できるものである。当⁹⁹Mo製造施設のうちでも換気設備は安全上重要な部分であり、その中でもフィルタ・ケースの気密性とフィルタの設置状況および効率の良否は安全性にからみ⁹⁹Moの大量定常製造の継続を左右する要因であることから、ここで得られた結果は非常に満足すべきものであった。

ここにのべたインプレーステストは最少限、フィルタの交換毎に実施すべきテストであるが、次章でのべるところごとくフィルタ交換の必要が現在のところ無いためその後のテストは実施していない。

4. 施設の運転

4.1 運転状況

換気設備の運転は施設竣工後の1975年10月よりおこなわれた。1976年9月までの約1年間は⁹⁹Mo製造装置の組込および装置の稼動試験に費されたため特にEF-17系統の排気はフィルタ・ケースをバイパスして運転された。その後10月よりTable 4に示すごとく⁹⁹Mo、¹³¹Iおよび¹³³Xeを用いたトレーサー・テスト、未照射二酸化ウランの実規模溶解試験、照射済二酸化ウランによるスケール・アップ試験、および大量製造試験が約1年間にわたって実施され、この期間はフィルタ・ケース(A)を用いて24時間連続換気運転を実施した。フィルタ・ケースの放射性ヨウ素除去効率については4.2で詳述するので、ここでは設計段階で考慮した給気湿度、換気回数、減圧度、および全体の作動状況について記す。

給気湿度について運転後2年間の月別平均値は次の通りである。

月	給気相対湿度(%)	温度(℃)	冷・暖房の有無
1	30 ± 5	20	暖房
2	30 ± 5	20	"
3	30 ± 5	20	"
4	50 ± 10	21	無
5	60 ± 5	23	"
6	65 ± 5	25	"
7	60 ± 5	22	冷房
8	65 ± 5	22	"
9	50 ± 5	25	"
10	45 ± 5	25	無
11	45 ± 5	25	暖房
12	35 ± 5	25	"

するとともに、次章にて述べる放射性ヨウ素除去時のバイパスリーク率は0.05%以下であることが評価できた。

フィルタ・ケースに装備したHEPAフィルタ、活性炭フィルタの設置状況は極めて良好であり、かつフィルタの交換設置にあたり特別の調整は不要であることから再現性も充分期待できるものである。当⁹⁹Mo製造施設のうちでも換気設備は安全上重要な部分であり、その中でもフィルタ・ケースの気密性とフィルタの設置状況および効率の良否は安全性にからみ⁹⁹Moの大量定常製造の継続を左右する要因であることから、ここで得られた結果は非常に満足すべきものであった。

ここにのべたインプレーステストは最少限、フィルタの交換毎に実施すべきテストであるが、次章でのべるところごとくフィルタ交換の必要が現在のところ無いためその後のテストは実施していない。

4. 施設の運転

4.1 運転状況

換気設備の運転は施設竣工後の1975年10月よりおこなわれた。1976年9月までの約1年間は⁹⁹Mo製造装置の組込および装置の稼動試験に費されたため特にEF-17系統の排気はフィルタ・ケースをバイパスして運転された。その後10月よりTable 4に示すごとく⁹⁹Mo、¹³¹Iおよび¹³³Xeを用いたトレーサー・テスト、未照射二酸化ウランの実規模溶解試験、照射済二酸化ウランによるスケール・アップ試験、および大量製造試験が約1年間にわたって実施され、この期間はフィルタ・ケース(A)を用いて24時間連続換気運転を実施した。フィルタ・ケースの放射性ヨウ素除去効率については4.2で詳述するので、ここでは設計段階で考慮した給気湿度、換気回数、減圧度、および全体の作動状況について記す。

給気湿度について運転後2年間の月別平均値は次の通りである。

月	給気相対湿度(%)	温度(°C)	冷・暖房の有無
1	30 ± 5	20	暖房
2	30 ± 5	20	"
3	30 ± 5	20	"
4	50 ± 10	21	無
5	60 ± 5	23	"
6	65 ± 5	25	"
7	60 ± 5	22	冷房
8	65 ± 5	22	"
9	50 ± 5	25	"
10	45 ± 5	25	無
11	45 ± 5	25	暖房
12	35 ± 5	25	"

Table 4 Variation of Iodine content in exhaust gas at the test production of ⁹⁹Mo

Year		1977														
Month		1976			1977									1977		
		10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Test production	Tracer test	1 2 □ 3 □ 4 □ 5 □ 6 □ 7 □ 8 □														
	UO ₂ dissolution test				1 □ 2 □ 3 □											
	Irradiated UO ₂ test					1 □ 2 □ 3 □ 4 □ 5 □ 6 □ 7 □ 8 □ 9 □ 10 □ 11 □ 12 □										
¹³¹ I measurement																
Treated amount of ¹³¹ I (Ci)		1.0 × 10 ⁶	1 × 10 ⁶	2.8 × 10 ⁶	7.2 × 10 ⁶	1 × 10 ⁶	1.3 × 10 ⁶	2 × 10 ⁶	1.3 × 10 ⁶	1.3 × 10 ⁶	2.4 × 10 ⁶	2.4 × 10 ⁶	2.4 × 10 ⁶	2.4 × 10 ⁶	2.4 × 10 ⁶	2.4 × 10 ⁶
Remarks		Damage of iodine trap reappear and test														
					Test failed			Damage of "quick-connector" of NO ₂ alkaline trap for iodine reappear and test								

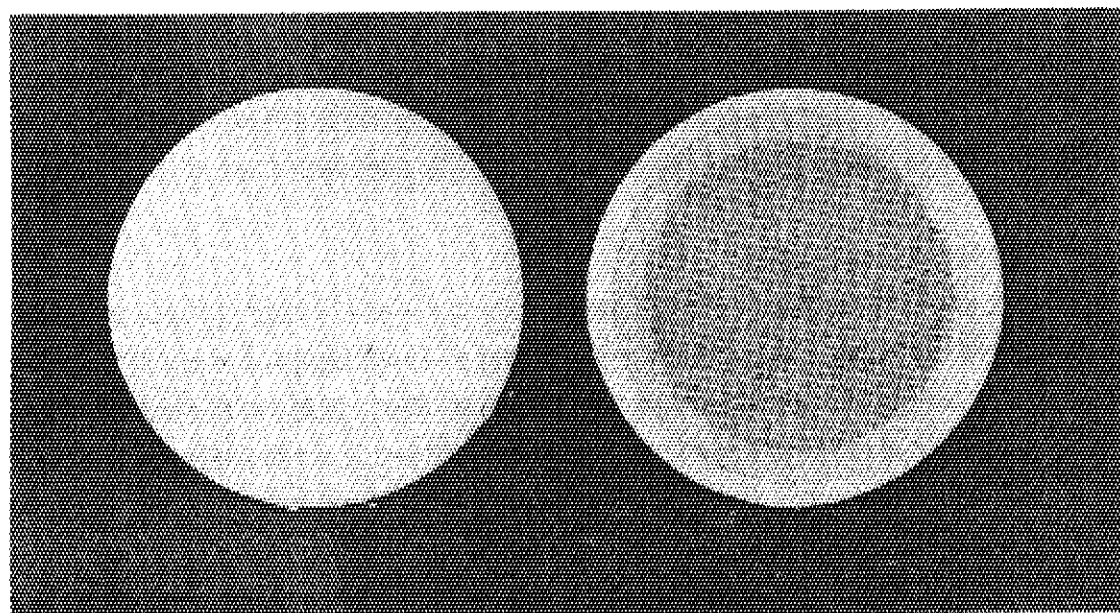
これらの結果では2.1.3でのべた除湿前に比べて明らかに除湿効果が認められ年間を通じて安定しているが、外気湿度の高くなる5月、6月、7月、8月では除湿しきれない傾向にある。設計値は60%以下を目標としているがこれを超える場合があるため、その後1977年8月に除湿機と湿度検出器の制御回路の改良と追加工事をおこない現在は60%をこえることはない。これにより活性炭フィルタのヨウ素除去性能が湿度による直接的影響を受けることはないと判断できる。

換気回数、減圧度については2.2.2で示した設計値に合った運転が継続されており静圧制御器の不調による負圧変動などの不安定要素は全くない。また設計時に懸念したダクト騒音およびダクトへの放射性物質の塵埃蓄積も認められない。更にケーブ給気弁、フィルタ・ケース切替弁などに用いた圧空操作の完全気密蝶形弁の性能は極めて良好であり、排気運転中の瞬時切替え操作においても負圧および流量変動はほとんどおこらず、気密性能のよいこともあってケーブ内空気の逆流などの心配もない。このように施設全体の稼動状況は設計通りの結果が得られた。

しかしながらトレーサー・テストを開始した2ヶ月後の1976年11月頃、フィルタ・ケース(A)による放射性ヨウ素除去効率測定を実施していたところ、ケース下流側の排気ガス吸引に用いているサンプリングホルダーの集塵ろ紙に活性炭微粉末の飛散(以後、脱炭という)を認めた。この状況をFig. 7に示す。この原因は活性炭フィルタの定格処理風量(16.8 m³/min)の37%増である23 m³/minを通気した期間(流量調整試験のため)があるため活性炭層内で風圧によるバイブレーションが顕著におこり脱炭したものと推定した。このため一時期21 m³/min(定格処理風量の25%増)に低下させて脱炭の程度を検査したが減少しなかった。その後すぐに定格処理風量に戻したところ極端に減少し、その後の継続運転においては脱炭を認めなかった。フィルタ・ケース(A)より脱炭した活性炭はFig. 1に示したEF-17系統の原研型排気ろ過ユニット内のプレフィルタおよびHEPAフィルタに集まるので脱炭現象の停止したのちこのプレフィルタとHEPAフィルタを取出し、脱炭した全量を秤量した。その結果、脱炭した重量は946 gであり、フィルタ・ケース内の2ヶの活性炭フィルタ(FD型:各34.45 kg)から同一条件での脱炭現象と仮定すれば1ヶ当りの脱炭率は1.37%である。一般に活性炭フィルタの出荷に際してはプレブローによって微粉末をほとんど除去する。例えばフィルタ・ケース内に使用しているFD型の場合でも活性炭粒度の分布は次のごとくである。

8メッシュ以上	0.8%
8~12メッシュ	47.1%
12~16メッシュ	48.7%
16メッシュ以下	3.1%
18メッシュ以下	0.3%

このため粒度の細い活性炭の一部は定格風量以上の風圧をうけることによってより多く飛散する傾向にあり、活性炭の硬度にもよるが一部は風圧によるバイブレーションで粉砕されてケースのパンチング孔より飛散する。この件につき1977年10月に原研で「米国原子力施設におけるチャコールフィルタの現状」を講演したDr. J. L. Kovach(N.R.C顧問)によれば、約2倍の処理風量(面速度も2倍になる)下においては顕著に脱炭がおこり、例えば面速度20 cm/secを40 cm/secに変化させると一時的に脱炭がおこりそののち20 cm/secに下げると停止するという報告をしている。ただし定格風量下においても風圧によるバイブレーションで少量は常に脱



Original filter paper

After use

Fig. 7 Charcoal powder collected on filter paper (HE-40)

炭しており、その量は最大、最低粒度（16～18メッシュ）の量の1/100程度であるという。いずれにせよ処理風量と脱炭の定量的報告は見当らず今後施設運転上の問題として別途に検討する必要がある。脱炭を少なくすることは活性炭の硬度を増すことによりある程度可能であるが反面、吸着表面積を低下させることになるため両者の兼合いが必要となろう。脱炭がおこったことによる放射性ヨウ素の除去能力への影響に関する評価は4.2でのべる。

4.2 活性炭フィルタ・ケースのヨウ素除去性能

4.2.1 除去性能の測定経過

当施設における⁹⁹Mo製造開発の経緯はTable 4に示すごとく最初は⁹⁹Mo, ¹³¹I, ¹³³Xeを用いて各核種の工程毎の分布を求めたトレーサー・テストを8回（¹³¹I取扱量：約10 mCi）、未照射二酸化ウランを用いた実規模溶解試験を3回（UO₂ 240 g/バッチ）、照射済二酸化ウランによるスケール・アップ試験を6回（¹³¹I取扱量：約500 mCi）および1977年7月からの大量製造試験9回（¹³¹I取扱量：約24 Ci）に区分される。このように約1年間に合計24回の各テストをおこなったがこの期間中製造開発の段階に沿って施設内の作業環境および施設外環境安全の観点からヨウ素（¹³¹I, ¹³³I, ¹³²I）を対象として、(1)製造装置からの漏洩量、(2)製造工程とヨウ素性状の関係、(3)フィルタ・ケース内の活性炭フィルタ（FD型）のヨウ素除去効率、(4)除去効率の経年変化、について観察と測定をおこなった。実施した回数はヨウ素を取扱った21回のテストのうち18回でありTable 4にその時期を示した。この間、ヨウ素の漏洩量と直接関係する製造装置の欠陥としてはトレーサー・テストの終了した1977年1月に判明したヨウ素第1捕集槽部分の漏水と照射済二酸化ウランによるスケール・アップ試験ののちに判明したヨウ素第2捕集槽のガス出口のクイック・コネクター部からのガス漏洩が主なものであり、これらが製造装置

系からのヨウ素漏洩率の変動した原因と考えられる。またこの期間中はフィルタ・ケース(A)を連続使用し、排風機室の原研型排気ろ過装置を経由してスタックから排気される系統で運転したため主にフィルタ・ケース(A)に係る除去効率測定と経年変化につき検討したが、フィルタ・ケース(B)、(C)についても3.1にのべたごとく放射性ヨウ素による除去効率測定をおこなった。

4.2.2 測定法と除去効率の定義

ケーブおよびセル内で漏洩したヨウ素は合流してフィルタ・ケースに流入するが、製造工程或いは施設の配管上から考えてほぼ全部のヨウ素の漏洩はケーブ内で起るものでセル内での漏洩量は無視できる。除去効率の測定には空気中の ^{131}I 濃度測定の目的で開発されたヨウ素サンプラを用いた。放射性ヨウ素のサンプリングに関しては、空気中におけるヨウ素の性状、すなわち塵埃などに付着した浮遊性ヨウ素(I^- , IO_3^- , IO_4^- の化合物)とガス状の無機ヨウ素(I_2 , HIO , HIO_3 など)、および有機ヨウ素(CH_3I , $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$ など)によってサンプリングに用いる捕集剤を選択するとともに、2.1.4でのべたことと同様に捕集剤に対する湿度の影響を除外するためサンプリングした空気を加熱する方法がとられる。また捕集剤の捕集効率は表面流速、サンプリング時間の長短、相対湿度および捕集剤の内容によって変化する。これらに関しては環境モニタリングの見地から報告¹⁴⁾されているのでこれらを参考にして当施設におけるサンプリングの条件を検討した。当施設ではヨウ素サンプラを2機種所有しており、1台は空気加熱法のサンプラであるか1台は空気加熱をおこなわない従来のヨウ素サンプラ¹⁵⁾¹⁶⁾である。このため測定の目的に応じて主にヨウ素の性状測定に空気加熱法のサンプラを、漏洩量および効率測定には従来のヨウ素サンプラを用いた。空気加熱法のサンプラとホルダーの内部をFig. 8に示す。室内の相対湿度が65%以下であることからいずれのサンプラにおいても捕集剤の表面流速が25 cm/sec以下の流速となる流量とした。サンプリングホルダー中に用いた捕集剤は集塵ろ紙(東洋ろ紙HE-40, 56 mm ϕ , セルローズアスベスト)、活性炭含浸ろ紙(東洋ろ紙CP-20, 56 mm ϕ \times 2mm 活性炭含有率: 45 w/o)、および活性炭カートリッジ(東洋ろ紙CHC-50, 56 mm ϕ \times 18mm, 50メッシュ)であり必要に応じて活性炭カートリッジの個数を変更するとともに5 w/oのTEDAを添着したものをを用いた。これらのサンプラをフィルタ・ケースの入気側および排気側の採取口に接続して(ケース内には2ヶの活性炭フィルタが収納されているため1ヶあたりの効率測定時には採取口を変更する)それぞれ入気・排気中の ^{131}I を任意の時間(または工程ごと)サンプリングホルダー中の集塵ろ紙、活性炭含浸ろ紙および活性炭カートリッジに捕集し、この時間内に捕集した ^{131}I をその0.364 MeVの γ -線をNaI(Tl)検出器と γ -線波高分析器で測定・定量した。この場合、入気側の定量値は装置からの漏洩量であり工程ごとの解析も可能である。

除去効率については、製造作業開始後t時間内にフィルタ・ケースに流入した ^{131}I 量 Q_t μCi 、同じt時間内にフィルタ・ケースを通過またはこれから脱離した ^{131}I 量qt μCi から、このt時間の除去効率 η_t は

$$\eta_t = 1 - \frac{qt}{Q_t}$$

で定義する。

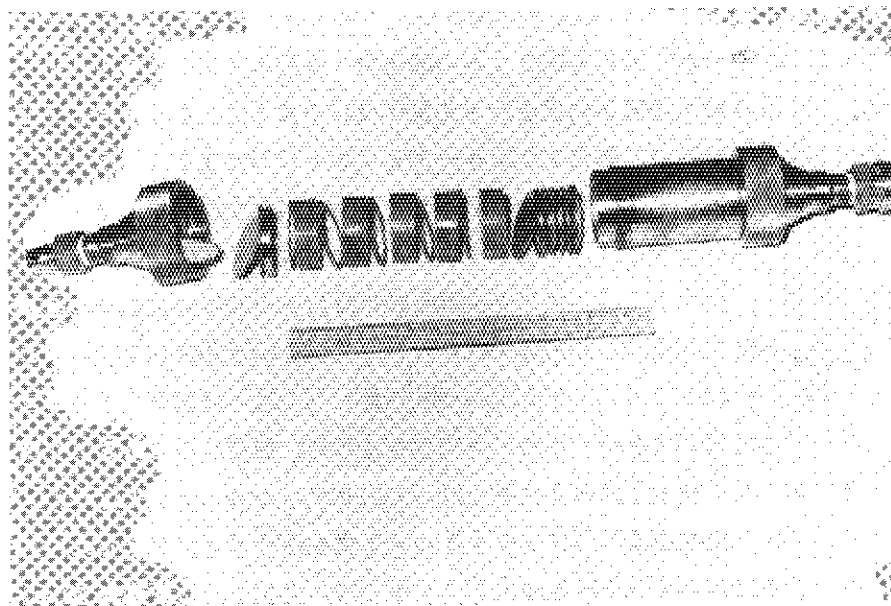
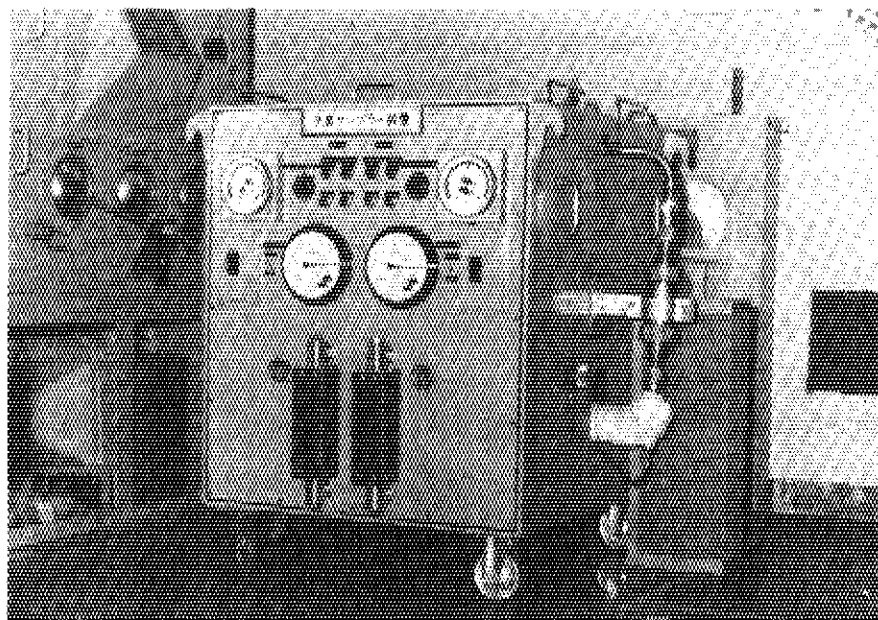


Fig. 8 View of Iodine sampler and sampling holder

4.2.3 ヨウ素漏洩量とその形態

漏洩率： ^{99}Mo の製造にともなって排気ガス中へ漏洩するヨウ素量に関しては、フィルタ・ケース(A)の上流側において工程ごとにサンプリングとその定量をおこない、かつこれを1週間継続してその合計量を各ランごとの漏洩量とした。漏洩量はヨウ素の取扱量により当然変化し評価しにくいため漏洩量を取扱量で除して漏洩率として表わした。全部のランの漏洩率と取扱量の関係をFig. 9 に示した。すなわちヨウ素漏洩の個所や工程などが一定であれば漏洩率も一定の範囲にとどまるはずであるが実際には $1 \sim 10^{-4} \%$ の範囲に分布しており、とくにトレーサー・ランとホット・ランの初期において高い漏洩率を示している。この原因としてトレーサー・ランでは4.2.1でのべたようにヨウ素第1捕集槽に小孔が発生し、ヨウ素を捕集したアルカリ性溶液の一部が漏洩してヨウ素が直接排気系へ吸引されたことと、装置系内のヨウ素分布を細かく把握するために装置各所からヨウ素を含む溶液のサンプリングがなされその溶液が非密封に近い状態でケーブル内に貯蔵されたためこの溶液(硝酸酸性)からヨウ素が揮発したものと考えられる。またホット・ラン4, 6, 7において比較的高い漏洩率であるのは4.2.1でのべたようにヨウ素ガスの経路にあたるクイック・コネクタ内部の気密用ガスケット(弗素ゴムOリング)が主に薬品による損傷を受け、ガスの漏洩が認められたことから判断して、2ケのアルカリ捕集槽で捕集しきれないヨウ素ガスの一部がこの部分から漏洩したためと考えられる。一方これら装置上の欠陥を補修したのちホット・ラン9以降は取扱量の段階的増加を計り最終的取扱量である $20 \sim 30 \text{ Ci}$ のヨウ素を取扱ったが装置系からの漏洩量は最高で 3 mCi 以下にとどまり、したがって漏洩率としては $10^{-2} \sim 10^{-3} \%$ の範囲で安定している。この期間中、ヨウ素の挙動に関連すると考えられる製造工程の変更、とくに ^{99}Mo の品質に係わるヨウ素の強制的な除去(蒸留法による)を省略するなどがおこなわれたが、それらがヨウ素の漏洩量に直接的に影響を与えているような現象は見られず、このことは製造装置系の気密性が非常に良好であることを裏付けている。むしろヨウ素の漏洩源としては、照射済二酸化ウランターゲットのカプセルをチョップリーチ方式に類似した切断をしたのち溶解槽に充填するまでの間におこなわれる断熱材除去などのカプセル解体の操作により、回収できない二酸化ウラン微細片がケーブル内に飛散するためこれらから放出されるヨウ素が大半を占めると考えられる。カプセル開封時に放出されるヨウ素量につき核分裂ガス放出率を二酸化ウランの熱伝導積分との関連で計算した37%相当の予想放出に比較すればはるかに少ない値であり $10^{-3} \%$ 程度である。もう1つの漏洩源としては、装置内の溶液移送のために用いている真空ポンプの吐出ガスがケーブル内に排気されるため、装置系内にあるヨウ素ガスを強制的に吐出(全体的漏洩量になる)させる結果となっていたが、これに対してはラン15以降真空ポンプの排気側に活性炭充填筒を取りつけほぼ全部のヨウ素を除去する系統とした。

このように製造装置系から排気系へ漏洩するヨウ素の量は当初予想した最高50%、最低でも5%の値をはるかに下回る 10^{-2} から $10^{-3} \%$ の範囲にあり、かつ極めて安定していることが判明した。この値は大量の放射性ヨウ素を非密封で、かつ酸性溶液で加熱、蒸留などの工程を経て取扱っていることを考慮すれば、極めて少ない漏洩の程度であることが理解できる。今後も製造装置の気密に係わる部分に重大な欠陥が生じないかぎり $10^{-2} \%$ 以下の漏洩率を維持できることが推定できる。

放出率：一方、このように製造装置系から漏洩したヨウ素はフィルタ・ケース(A)で吸着除去さ

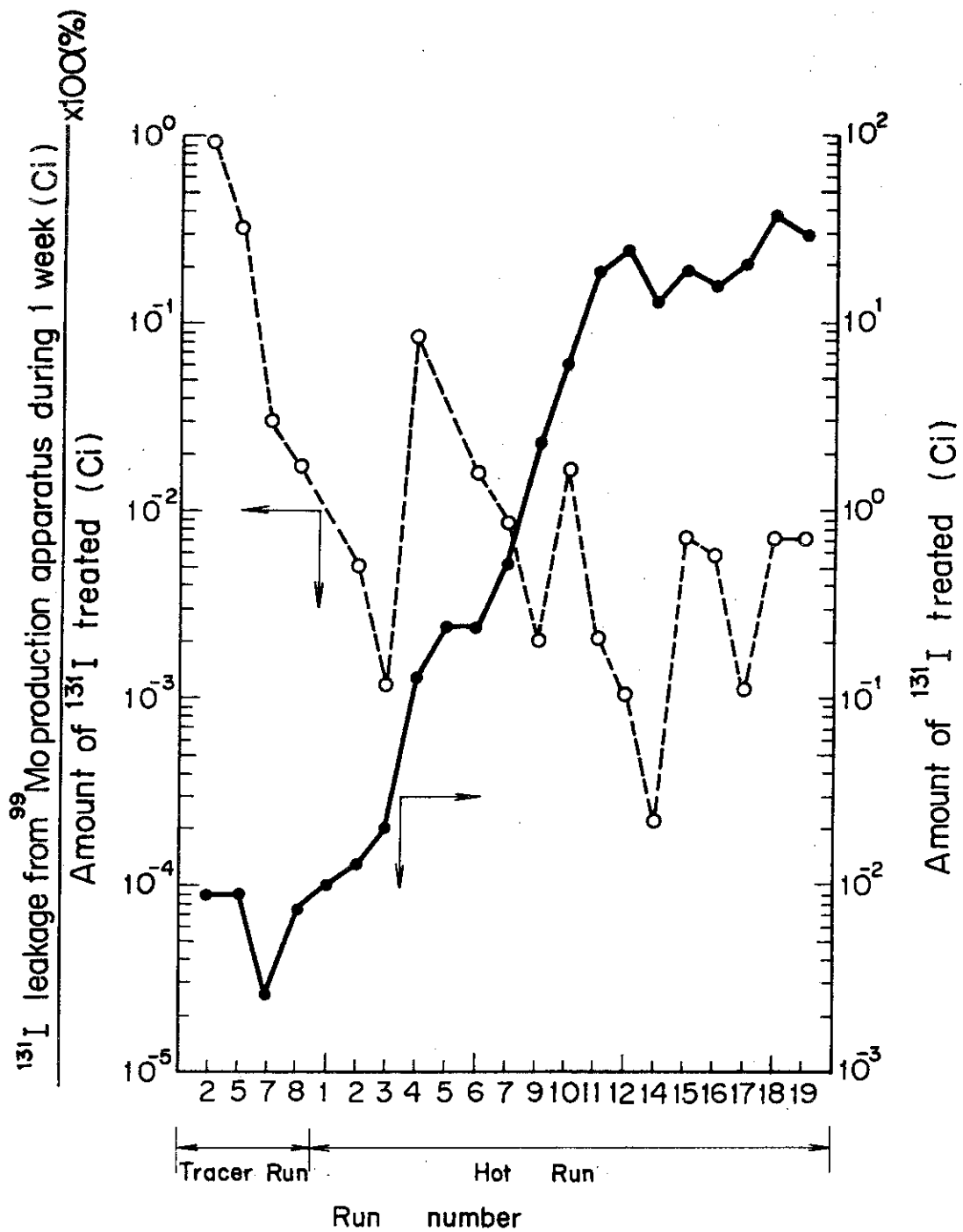


Fig. 9 Variation in the percentage of ^{131}I leakage from ^{99}Mo production apparatus

れるが、ここで吸着除去しきれないヨウ素または吸着後、活性炭フィルタから離脱（脱炭によるものを含める）したヨウ素をフィルタ・ケース(A)の下流側にて同様のサンプリングと定量をおこない、これをフィルタ・ケース(A)からの放出量としてヨウ素取扱量で除して放出率として表わした。全ランの放出率と取扱量の関係を Fig. 10 に示した。放出率は漏洩率に各ランにおけるフィルタ・ケース(A)の平均除去効率を乗じたのにはほぼ等しく、したがって 4.2.4 にのべるように平均除去効率が 98%以上であることから放出率の推移は漏洩率の形態に類似している。その値は $10^{-2} \sim 10^{-6}$ % に分布しているが $10^{-5} \sim 10^{-6}$ % の範囲にとどまる傾向である。ランごとの放出率の増減の原因は漏洩率増減の原因に等しいものと評価できる。

放出量の申請値倍数：全ランを通じてフィルタ・ケース(A)からの放出量は $36.4 \mu\text{Ci}$ でありラン平均では $2 \mu\text{Ci}$ である。しかしながらここで放出されたヨウ素は 2.2.1 でのべた排風機室に設置されている原研型排気ろ過ユニットで再度浄化されるためスタックにおける連続監視モニターではほとんどの場合検出限界以下であった。このため実際的ではないがフィルタ・ケース(A)下流側のヨウ素が環境へ放出された場合を仮定した、過大評価に基づいて申請値（ $28 \mu\text{Ci}$ / バッチ以下）との倍数を各ランにつき Fig. 11 に示す。その結果、ホット・ラン 10 は申請値に近い値であったが、ヨウ素取扱量の増加したラン 11 以降においても $1/10$ 程度であり完全に申請値以下に適合した。したがってスタックから実際放出された量と申請値との倍数は排気ろ過ユニットの除去効率が 90% であるとして $1/100$ 以下であることが推定される。

製造工程と漏洩形態： ^{99}Mo の製造工程の進行にともなうヨウ素の漏洩および放出の形態変化につき代表的な例として 3 例を Fig. 12, 13, 14, に示した。製造工程を開封、溶解、蒸留、抽出、精製に分割し、それぞれの時間帯のサンプリングをおこなうとともに製造が中断される夜間と製造終了後に引き続き漏洩するヨウ素についてもサンプリングをおこない、ヨウ素濃度と製造経過時間の関係であらわした。その結果、Fig. 12 (Run-9), Fig. 13 (Run-14) から明らかなようにヨウ素の漏洩は開封、溶解および蒸留工程時に顕著であり、抽出、精製工程では明らかな漏洩を認め難い。Fig. 14 (Run-19) はヨウ素蒸留工程を省いた漏洩曲線であり開封と溶解工程時にのみ漏洩を認めた。したがって蒸留工程があることによって装置からの漏洩があるように思われ前述したことと矛盾するが、実際は装置系付属の真空ポンプの排気中のヨウ素を除去したことによって低減した結果である。フィルタ・ケース(A)から放出されるヨウ素の形態は一般の漏洩形態に類似するが Fig. 14 にみられるような場合は 4.1 でのべた脱炭現象が顕著に起った結果であり、開封、溶解時に比較的高い放射能濃度下でフィルタに吸着されたヨウ素の一部が脱炭したため、これがサンプラーのろ紙に捕集されることによって漏洩形態に類似しない放出が認められる。したがってこの部分においては当然除去効率の一時的低下を認めることとなる。脱炭現象は非常に少ない量では常時認められたがフィルター使用 1 年後ぐらいからは風量の増減と無関係に脱炭量および回数の増加を認めるようになった。

活性炭フィルタ・ケース(A)への入気と排気中のヨウ素の性状に関して吉田¹⁴⁾らの報告にもとずき大まかな分布を検討した。すなわちサンプリングに用いたろ材により浮遊性ヨウ素はろ紙、ガス状無機ヨウ素は活性炭含浸ろ紙に、有機ヨウ素は活性炭カートリッジ（5 w/o TEDA 添着）に捕集されるのでこれを製造工程ごとの入、排気の放射能分布として Fig. 15 に示す。入気の性状は各ランごとの測定にもかかわらず工程に関係なくほぼ一定しており無機ヨウ素が 90% 以上を

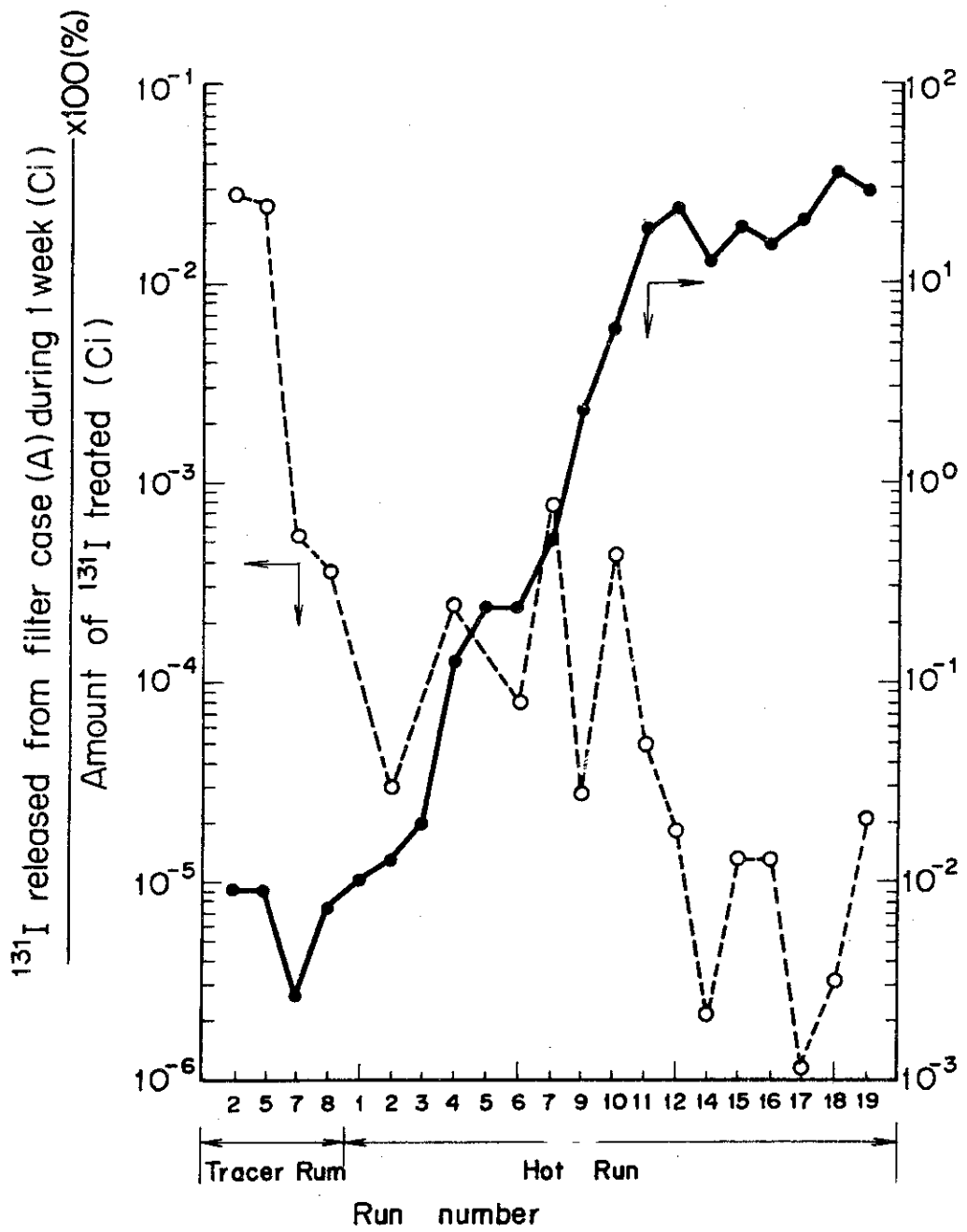


Fig. 10 Variation in the percentage of ^{131}I released from the filter case (A)

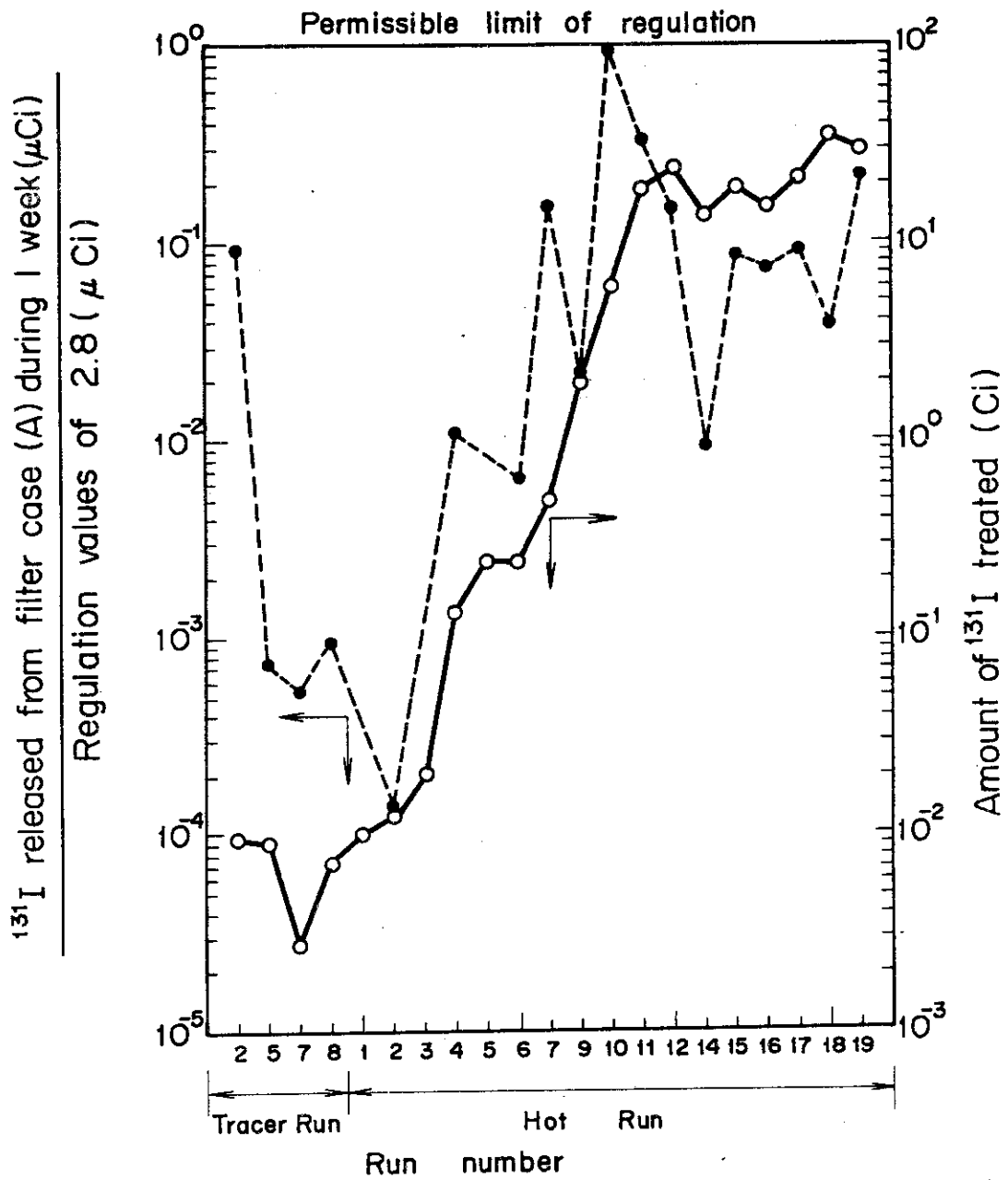


Fig. 11 Variation in the ratio to the maximum permissible concentration of regulation

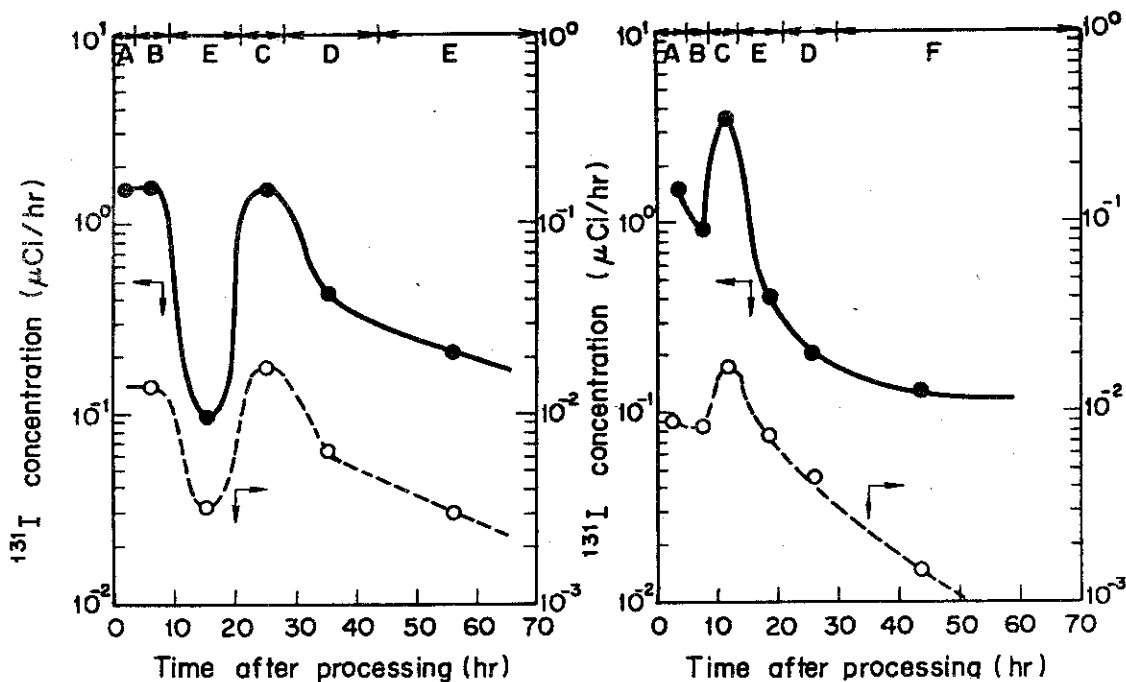


Fig.12 Releasing condition of ^{131}I during processing of ^{99}Mo at the Run 9

Fig.13 Releasing condition of ^{131}I during processing of ^{99}Mo at the Run 14

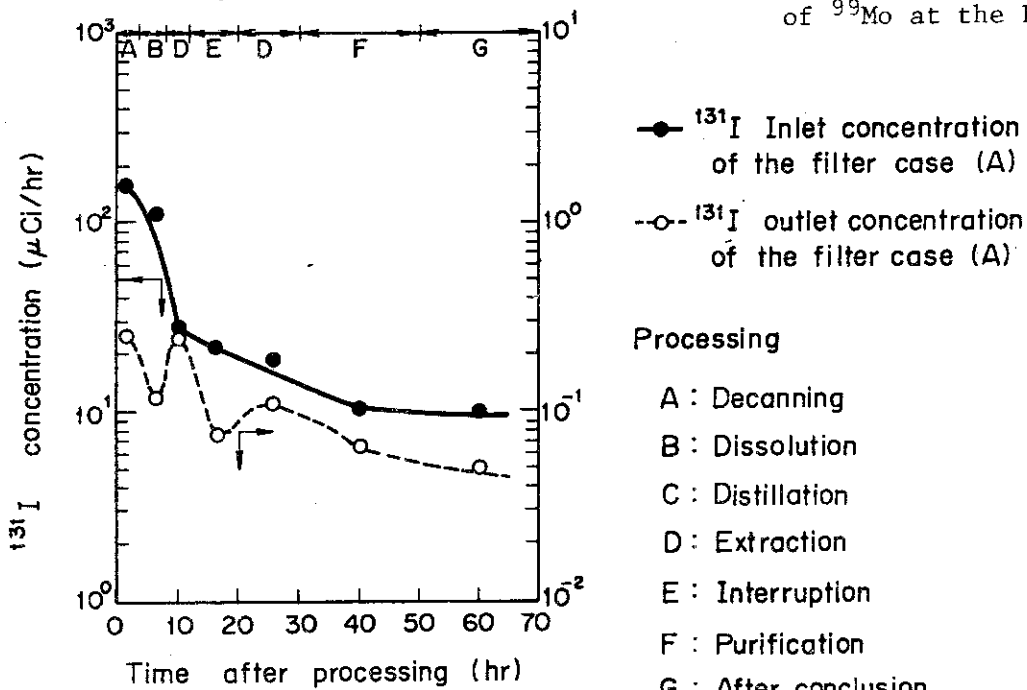


Fig.14 Releasing condition of ^{131}I during processing of ^{99}Mo at the Run 19

● ^{131}I Inlet concentration of the filter case (A)
 -○- ^{131}I outlet concentration of the filter case (A)

Processing

- A : Decanning
- B : Dissolution
- C : Distillation
- D : Extraction
- E : Interruption
- F : Purification
- G : After conclusion

占め、浮遊性ヨウ素、有機ヨウ素はそれぞれ5%以内にとどまる。それに比べ排気の性状は各ランごとに一定せず、特に脱炭をともなった場合は浮遊性ヨウ素の比率が増大するため各成分比は相対的に不明確になる。本来浮遊性ヨウ素はフィルタ・ケース内のHEPAで除かれるため排気中にはほとんど認められないのが通常である。これらの分布と比較するために二酸化テルルからヨウ素を製造した際の排気中のヨウ素成分につきほぼ同一の測定によって得られた結果をFig. 16に示した。すなわちこの場合は入気中の無機ヨウ素と有機ヨウ素の分布は一定せず、かつ工程の進行(時間経過)にともない有機ヨウ素成分が増える傾向にある。排気では活性炭フィルタ(無添着炭使用)で無機ヨウ素は除去されるが有機ヨウ素は除去されずに通過するため分布量は逆転する。同時に脱炭現象はなかったためFig. 15に比べ浮遊性ヨウ素はほとんど無視できる量であることが判る。

このように本製造における入気中のヨウ素成分はそのほとんどが無機ヨウ素であり、排気中では徐々に有機ヨウ素が増加する傾向を示しているが放射能量が微量である。このためガス中の有機ヨウ素成分のラジオガスクロマトグラフィー分析を試みたがいずれも放射能量が少なく定性分析も困難であった。

4.2.4 除去効率測定結果

フィルタ・ケース(A)、(B)、(C)のそれぞれについては、3章でのべたようにインプレース・テストとの比較のため放射性ヨウ素による除去性能を使用初期に測定した。その結果をTable 5に示す。A₁フィルタの99%以外は99.5%以上の効率を示しインプレース・テストの結果と同様に設置上の欠陥はないと判断した。放射性ヨウ素による設置効率測定後は一貫してフィルタ・ケース(A)を使用している。このためヨウ素を取扱った合計21回のランのうちフィルタ・ケース(A)の除去効率測定を18回実施した。いずれの除去効率も工程との関係においてその変化を追跡したものでありほぼ同様の形態を呈した。その中から前述したラン9、14、19の場合の除去効率曲線をFig. 17、18、19に示す。いずれも製造開始後3日間連続して測定した結果であり製造工程との関連で示した。その結果、製造開始時には高効率であるが10時間後から約20時間の間に1~2%の効率低下が認められた。これは脱炭による影響が大きく寄与したものであり、開封、溶解工

Table 5 Results of in-place test for FD type activated charcoal filter with ¹³¹I

Filter case	Filter No	Efficiency (%)
A	A 1	99.0
	A1+A2	99.5
B	B 1	99.6
	B1+B2	99.8
C	C 1	99.5
	C1+C2	99.9

程時に吸着された比較的高濃度のヨウ素が約10時間後からフィルタの下流側に飛散するためである。その量および時間帯は不規則であって使用経過期間との関係も明らかな傾向は認められない。フィルタへ入気するヨウ素の性状分布が製造工程とは無関係に一定であることから除去効率の時間変化がヨウ素の性状による吸着形態の変化とは認められない。

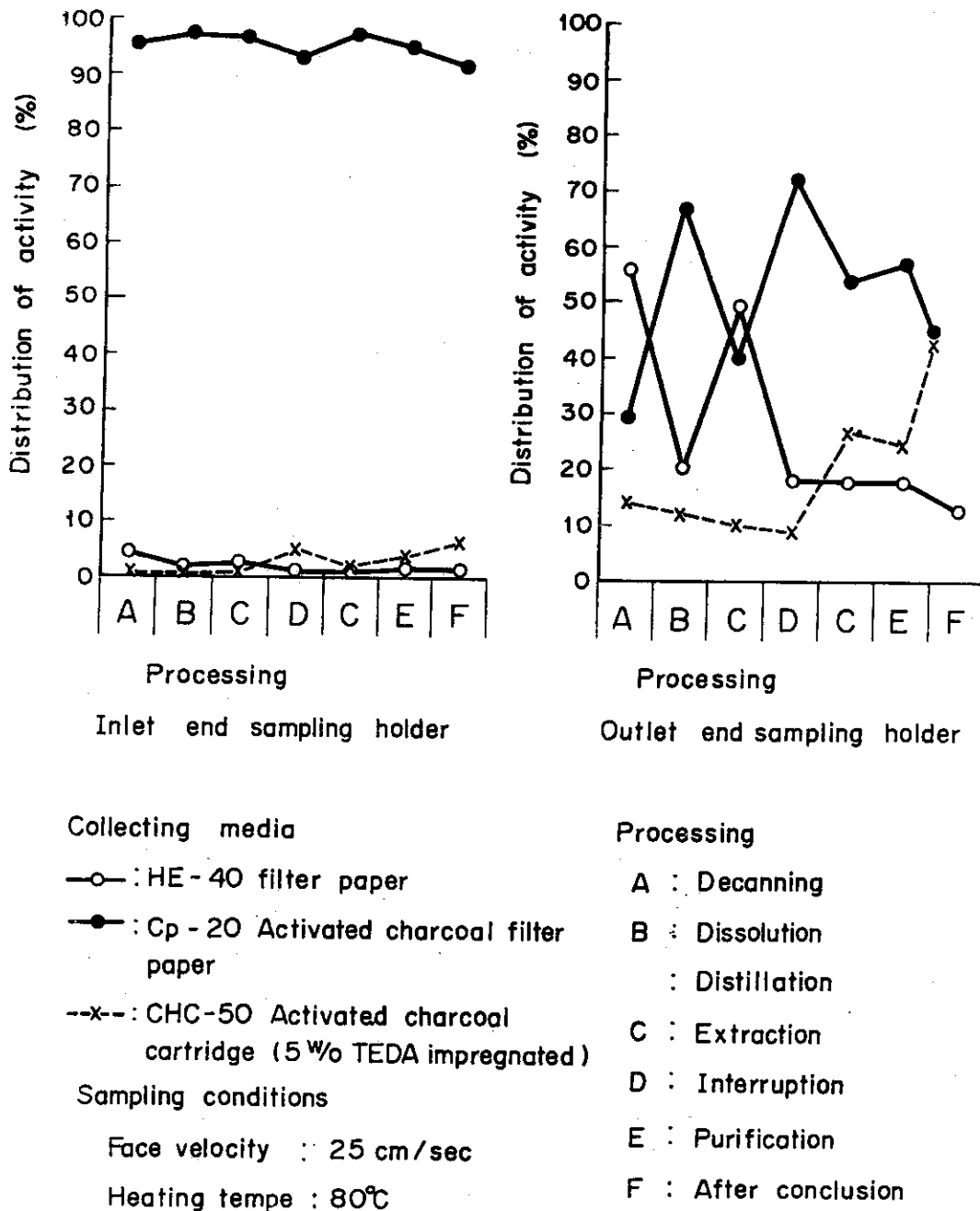


Fig. 15 Distribution of ^{131}I activity of the inlet end and outlet end of filter case (A) at the Run 19

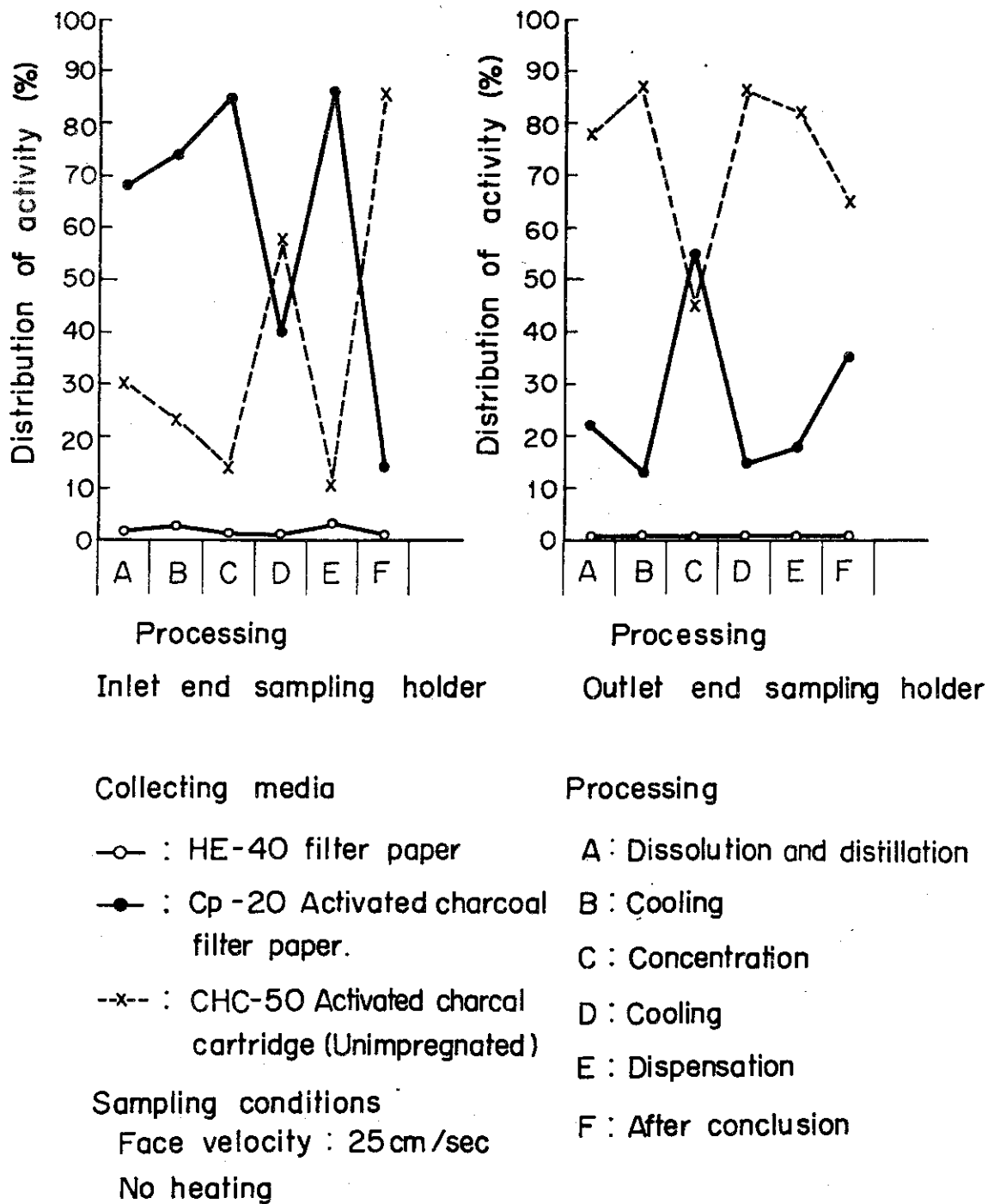


Fig. 16 Distribution of ¹³¹I activity from irradiated TeO₂ of the inlet end and outlet end of filter box (A)

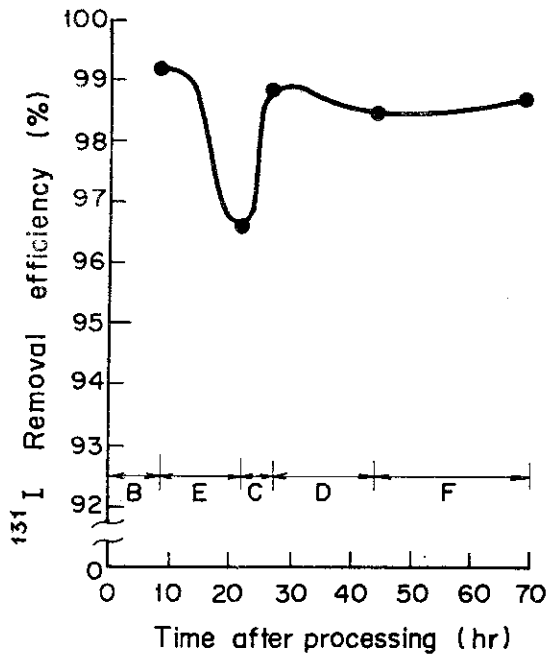


Fig.17 ¹³¹I removal efficiency of the filter case (A) at the Run 9

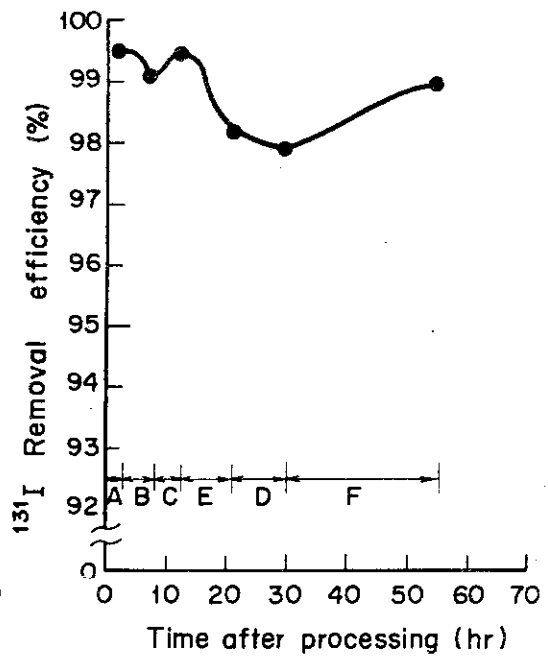


Fig.18 ¹³¹I removal efficiency of the filter case (A) at the Run 14

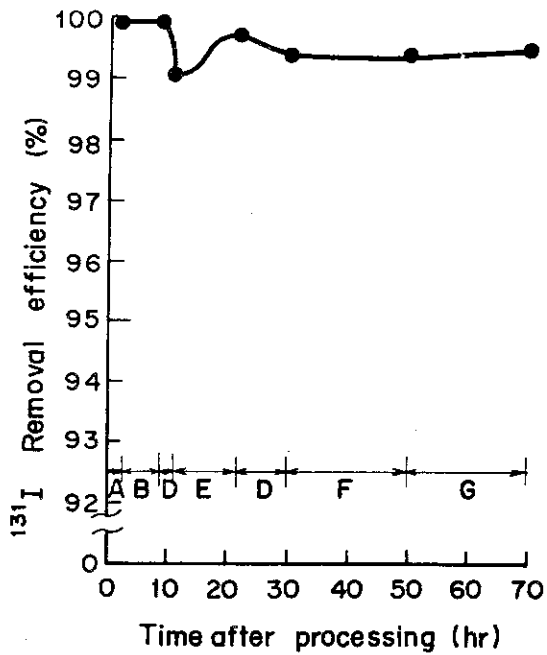


Fig.19 ¹³¹I removal efficiency of the filter case (A) at the Run 19

Service times

Run 9,	9 month
Run 14,	12 month
Run 19,	14 month

Processing

- A : Decanning
- B : Dissolution
- C : Distillation
- D : Extraction
- E : Interruption
- F : Purification
- G : After conclusion

4.2.5 除去効率の経時変化

フィルタ・ケース(A)の除去効率の経時変化につき、各ランの除去効率曲線の平均値でランごとに表示した。Fig. 20 にその結果を示す。期間は約 15ヶ月の連続使用であり活性炭フィルタの換気回数(全処理風量/フィルタ容積)を下欄に示した。すなわち使用開始初期の極端な効率低下の原因は 4.1 にのべたように処理風量の増加による顕著な脱炭によるものであり、適正処理風量に是正したトレーサー・ラン・7以降は 98 から 99.7 %の範囲内で安定している。活性炭フィ

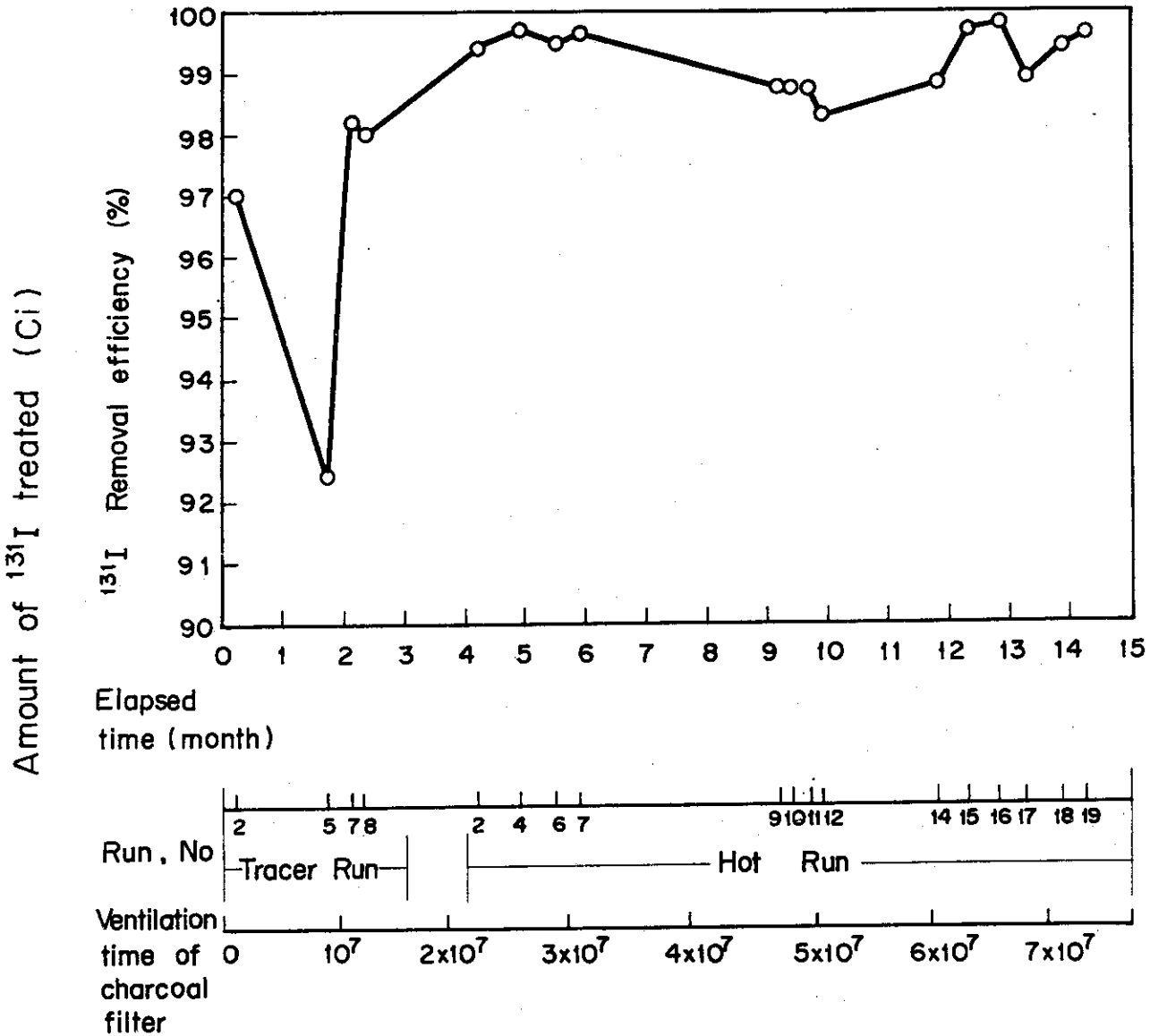


Fig. 20 Variation in the percentage of ¹³¹I removal efficiency of the filter case (A)

ルタに関するウェザリング*の効果についてはAckley,¹⁷⁾¹⁸⁾ Collins,⁵⁾ Durant¹⁹⁾らによりすでに広範な研究がなされており、当施設において使用したものと同種のヨウ素添着活性炭(BC-727)の場合もポイズニングによる $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ 除去性能の低下は、使用初期の94%から4ヶ月後では84%程度に低下することを報告している。除去性能を低下させる気流中の成分としてヨウ素、塩素、イオウ、 NO_2 、および一般有機溶媒として四塩化炭素、トリクロルエチレンなどが影響することを種々の実験条件で報告している。これらポイズニングの効果は $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ の除去性能低下にかぎらず単体状放射性ヨウ素の除去性能にも影響をあたえ、中でも NO_2 、四塩化炭素がKI添着活性炭にあたえる性能劣化の程度は大きいとしている。さらにCollinsらによればウェザリングの影響は活性炭に流通する空気量の関数であるとして性能の劣化は近似的に換気回数に対し指数関数的であり性能($\log_{10} \text{D.F./滞溜時間}$)が半減する換気回数は 10^8 であると報告している。これらのことを考慮した場合、当施設においては放射性ヨウ素の回収向上のため用いている担体ヨウ素、二酸化ウラン溶解に用いる高濃度硝酸からの NO_2 、あるいは抽出稀釈剤としての四塩化炭素が微量ではあるが常にフィルタに流入する状態にあるため多少なりとも性能低下の影響をうけていることが推定される。これらに関し定量的検討を加えるに至っていないが現在のところ顕著な性能低下は認められない。また換気回数も 8×10^7 に相当するがこれによる性能低下も明確ではないが、99%以上の高効率を長期にわたって維持できず数%の範囲で変動しているのは脱炭とウェザリングの相乗的效果とも考えられる。

このように活性炭フィルタの性能と使用経過時間との間に明らかな関係を見出すに至っていないため今後も引きつづき測定をおこない性能劣化の期間、原因などにつき資料を得られるよう検討を加える予定である。

5. 製造に伴う想定事故解析と応急措置

^{99}Mo の定常生産の開始に先立って、製造にともなう各種の放射線管理上の事故を想定しその対策をたてた。その概要をTable 6に示す。最も重大な事故は二酸化ウラン溶解中の槽の破損、高レベル廃液移送中の飛散、および貯蔵タンク破損が考えられる。これらの事故が環境にあたえる影響では、廃液貯蔵施設で発生した場合が一番大きく、申請値の約10倍のヨウ素が放出される可能性がある。いずれも事故発生の確率は極めて少ないとともに十分な対策を講じている。現在までにこの種の事故は発生していない。

* Weathering; 大気が活性炭を流通することにより気流中に含まれている成分が活性炭に吸着あるいは反応することにより、一般に活性炭の除去性能が低下することをいう。

ルタに関するウェザリング*の効果についてはAckley,¹⁷⁾¹⁸⁾ Collins⁵⁾, Durant¹⁹⁾らによりすでに広範な研究がなされており、当施設において使用したものと同種のヨウ素添着活性炭(BC-727)の場合もポイズニングによる $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ 除去性能の低下は、使用初期の94%から4ヶ月後では84%程度に低下することを報告している。除去性能を低下させる気流中の成分としてヨウ素、塩素、イオウ、 NO_2 、および一般有機溶媒として四塩化炭素、トリクロルエチレンなどが影響することを種々の実験条件で報告している。これらポイズニングの効果は $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ の除去性能低下にかぎらず単体状放射性ヨウ素の除去性能にも影響をあたえ、中でも NO_2 、四塩化炭素がKI添着活性炭にあたえる性能劣化の程度は大きいとしている。さらにCollinsらによればウェザリングの影響は活性炭に流通する空気量の関数であるとして性能の劣化は近似的に換気回数に対し指数関数的であり性能($\log_{10} \text{D}\cdot\text{F}/\text{滞留時間}$)が半減する換気回数は 10^8 であると報告している。これらのことを考慮した場合、当施設においては放射性ヨウ素の回収向上のため用いている担体ヨウ素、二酸化ウラン溶解に用いる高濃度硝酸からの NO_2 、あるいは抽出稀釈剤としての四塩化炭素が微量ではあるが常にフィルタに流入する状態にあるため多少なりとも性能低下の影響をうけていることが推定される。これらに関し定量的検討を加えるに至っていないが現在のところ顕著な性能低下は認められない。また換気回数も 8×10^7 に相当するがこれによる性能低下も明確ではないが、99%以上の高効率を長期にわたって維持できず数%の範囲で変動しているのは脱炭とウェザリングの相乗的效果とも考えられる。

このように活性炭フィルタの性能と使用経過時間との間に明らかな関係を見出すに至っていないため今後も引きつづき測定をおこない性能劣化の期間、原因などにつき資料を得られるよう検討を加える予定である。

5. 製造に伴う想定事故解析と応急措置

^{99}Mo の定常生産の開始に先立って、製造にともなう各種の放射線管理上の事故を想定しその対策をたてた。その概要をTable 6に示す。最も重大な事故は二酸化ウラン溶解中の槽の破損、高レベル廃液移送中の飛散、および貯蔵タンク破損が考えられる。これらの事故が環境にあたえる影響では、廃液貯蔵施設で発生した場合が一番大きく、申請値の約10倍のヨウ素が放出される可能性がある。いずれも事故発生の確率は極めて少ないとともに十分な対策を講じている。現在までにこの種の事故は発生していない。

* Weathering; 大気が活性炭を流通することにより気流中に含まれている成分が活性炭に吸着あるいは反応することにより、一般に活性炭の除去性能が低下することをいう。

Table 6 Analysis and counterplans for possible trouble concerning radioiodine treated in ^{99}Mo production

Place	Daytime			Nighttime			Assumption for estimation
	Cave	Cell (05)	Passage of waste soln.	Cave	Cell (05)	Tank room	
Process	Dissolution of UO_2	Dissolution of UO_2	Transportation of high level waste	Standing of F.P. soln.	Trapping and storage of iodine	Storage of high level waste	1) Two thirds of I^* are transferred into the extractor with F.P. soln. by emergency steps and the rest is released to the exhaust.
Possible troubles	Breakeage of dissolver	Defunctness of refrigerator	Breakeage of transfer system	Breakeage of extractor	Defunctness of refrigerator	Breakeage of high level waste tank	
I^* treated, Ci	~ 30	~ 0.5	~ 25	~ 30	~ 0.5	~ 25	2) Although I^* is unreliable to escape from molecular seive column, because of short time for emergency steps 20% is assumed to escape at max.
Chem. form of I^* in question	I_2 in 10N HNO_3	I_2 in molecular seive column	I_2 in 10N HNO_3	I_2 in 5N HNO_3	I_2 in molecular seive column	I_2 in 5N HNO_3 or organic soln.	
Situation of troubles	Continuous release of large amount iodine and NO_2 directly into atmosphere in cave.	Loss of cooling power. Slow release of gaseous I^* from molecular seive column to exhaust.	Leakage of F.P. soln. during transfer due to breakeage of valve or pipe. Release of gaseous I^* to tank room.	Continuous release of gaseous I^* to exhaust.	Loss of cooling power. Iodine release by increasing pressure inside molecular seive column.	Leakage of F.P. soln. from tank to tank pit, and continuous release of gaseous I^* to exhaust.	3) Possibility of spilling whole waste soln. is very small 10% of waste soln. spills.
Emergency steps	1) Stop heating and carrier gas. 2) Increase negative pressure of ventilation. 3) Transfer soln. to extractor.	1) Transfer gaseous I^* liq. N_2 trap. 2) Shut off gas flow.	1) Transfer soln. from emergency port to spare tank. 2) Decontaminate under perfect protection	1) Transfer soln. from extractor to spare tank or other vessel. 2) Increase negative pressure for ventilation.	1) Transfer gaseous I^* liq. N_2 trap.	1) Transfer soln. into spare tank collect spilled soln. into tank. 2) Decontaminate under perfect protection.	
Alarm	Area dust-monitor	Temp. indicator of refrigerator	Area dust-monitor	Area dust-monitor	Temp. indicator of refrigerator	Area dust-monitor	4) Two thirds of F.P. soln. can be transferred into the spare tank. The rest spills into the cave releasing I^* into the exhaust.
Time necessary for emergency step, hr	0.5	0.5	1.0	2.0	2.0	2.0	
Max. ^{131}I conc. in room $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	$\sim 10^{-8}$	$\sim 10^{-10}$	$\sim 10^{-7}$	$\sim 10^{-8}$	$\sim 10^{-10}$	$\sim 10^{-7}$	5) Whole waste soln. spills but is recovered in the spare tank. Maximum 10% of I^* is released at max. to the exhaust.
Release to exhaust, Ci/8hr	~ 51	$< 0.1^2$	$< 2.5^3$	$\sim 3^4$	$< 0.1^2$	$< 2.5^5$	
Min. efficiency of filters ⁶⁾	95x7 unit	95x7 unit	95x3 unit	95x7 unit	95x7 unit	95x3 unit	6) Ventilation line EF-17 can use 7 filter unit in series, and EF-19 3 filter unit.
Release from stack mCi/8hr	4×10^{-6}	8×10^{-8}	3.1×10^{-1}	2.3×10^{-6}	8×10^{-8}	3.1×10^{-1}	
^{131}I Conc. at stack $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \cdot 8\text{hr}$	1.2×10^{-13}	2.4×10^{-15}	9.4×10^{-9}	6.9×10^{-14}	2.4×10^{-15}	9.4×10^{-9}	7) The value of the regulation is 28 $\mu\text{Ci}/\text{Batch}$.
Ratio to values of the regulation ⁷⁾	1.4×10^{-4}	2.8×10^{-6}	1.1×10^1	8.2×10^{-5}	2.8×10^{-6}	1.1×10^1	
Ratio to the alarm level ⁸⁾	4×10^{-6}	8×10^{-8}	3.1×10^{-1}	2.3×10^{-6}	8×10^{-8}	3.1×10^{-1}	8) The alarm level is $3 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \cdot \text{hr}$ for 300's lab.
Counterplan	Dissolver made of stainless steel prevents breakeage or corrosion.	A back up liq. N_2 trap installed after molecular seive prevent release of I^* .	Canal made of stainless steel installed along piping receive spilling soln.	Extractor made of stainless steel prevent breakeage or corrosion.	A back up liq. N_2 trap installed after molecular seive prevent release of I^* .	Stainless steel receiver installed outside tank prevent spilling soln. to diffuse.	

6. ま と め

^{235}U の核分裂により ^{99}Mo を 20 Ci/バッチ製造するにあたり取扱われる放射性ヨウ素は ^{131}I (T $_{1/2}$: 8.06 d) 約 28 Ci, ^{132}I (T $_{1/2}$: 2.3 h) 約 56 Ci, ^{133}I (T $_{1/2}$: 20.8 h) 約 36 Ci である。これらのヨウ素を安全な管理下におき環境への影響を抑止することはとりもなおさず ^{99}Mo 製造実施の可否を決するものである。このため製造装置の恒久的安定性とその気密性能には十分な技術を駆使したのみならず、制御できないヨウ素の一部分が施設の排気系に漏洩した場合に対処するため換気施設の設計、施工には十分な調査と細心の注意を払い、フィルタの選択、空調、フィルタ・ケースの製作、およびフィルタの設置状態などにつき検討を加え満足すべき結果をえた。施設製作完了後は一般的稼動試験ののち少量の ^{131}I を用いて装置からの漏洩率、フィルタの除去効率を測定し、安全性とその後の増量に対する見通しがえられたので段階的にスケール・アップを実施した。1977年7月以降は実規模試験の継続であって、この段階でフィルタ除去効率、漏洩率、放出率、ヨウ素の性状、および経時変化に対する測定を重点的におこなった。これらの結果をTable 7に示した。

製造装置系からの漏洩率は $10^{-3}\%$ のオーダーで安定し、漏洩したヨウ素の性状は無機ヨウ素90%相当、浮遊性ヨウ素、有機ヨウ素がそれぞれ5%程度である。これらを吸着除去するために用いた活性炭フィルタ(米国 Barnebey Cheney 社製、FD型SP-1504, KI添着炭BC-727, 層厚2インチ)2ヶの除去効率は15ヶ月間の連続使用に対し平均98%以上を維持しており現在なお劣化の傾向を認めない。フィルタを通過または脱離するヨウ素の放出率は $10^{-5}\sim 10^{-6}\%$ の範囲にあり、最大 $26\ \mu\text{Ci}$ 平均放出量は $2\ \mu\text{Ci}$ 程度である。ここでいう放出量 $2\ \mu\text{Ci}$ はさらに排風機室に設置した層厚1インチの活性炭フィルタで吸着除去されるためスタック出口における量はこれより1桁程度低下したものとなる。したがってスタック出口に取付けた装置による連続モニタリングにおいても申請値であり、かつ管理目標値の $28\ \mu\text{Ci}$ /バッチを超えることはなく環境に影響をおよぼすことはなかった。しかしながら使用初期の処理風量の超過に起因して脱炭現象を誘起したため正確なフィルタ効率、フィルタを通過するヨウ素の性状を把握することができなかった。その反面、現在のところ脱炭による顕著な性能劣化も認められず今後も追跡測定をおこない活性炭フィルタに関する資料を蓄積することとしたい。

謝 辞

この実験を遂行するにあたり、換気設備の設計、施工では小坂部一男氏(設備課)、池田三郎氏、前田賢三氏(施設1課RI棟駐在)の各氏に、放射性ヨウ素の安全管理では原田康典氏、箕輪雄資氏(放射線管理課RI棟駐在)に、また実験データの集収にあたり製造課、 ^{99}Mo 製造グループの各諸氏に御協力をいただき、ここに厚く感謝いたします。

6. ま と め

^{235}U の核分裂により ^{99}Mo を 20 Ci/バッチ製造するにあたり取扱われる放射性ヨウ素は ^{131}I (T $_{1/2}$: 8.06d) 約 28 Ci, ^{132}I (T $_{1/2}$: 2.3h) 約 56 Ci, ^{133}I (T $_{1/2}$: 20.8h) 約 36 Ci である。これらのヨウ素を安全な管理下におき環境への影響を抑止することはとりもなおさず ^{99}Mo 製造実施の可否を決するものである。このため製造装置の恒久的安定性とその気密性能には十分な技術を駆使したのみならず、制御できないヨウ素の一部が施設の排気系に漏洩した場合に対処するため換気施設の設計、施工には十分な調査と細心の注意を払い、フィルタの選択、空調、フィルタ・ケースの製作、およびフィルタの設置状態などにつき検討を加え満足すべき結果をえた。施設製作完了後は一般的稼動試験ののち少量の ^{131}I を用いて装置からの漏洩率、フィルタの除去効率を測定し、安全性とその後の増量に対する見通しがえられたので段階的にスケール・アップを実施した。1977年7月以降は実規模試験の継続であって、この段階でフィルタ除去効率、漏洩率、放出率、ヨウ素の性状、および経時変化に対する測定を重点的におこなった。これらの結果をTable 7に示した。

製造装置系からの漏洩率は $10^{-3}\%$ のオーダーで安定し、漏洩したヨウ素の性状は無機ヨウ素90%相当、浮遊性ヨウ素、有機ヨウ素がそれぞれ5%程度である。これらを吸着除去するために用いた活性炭フィルタ(米国 Barnebey Cheney 社製、FD型SP-1504、KI添着炭BC-727、層厚2インチ)2ケの除去効率は15ヶ月間の連続使用に対し平均98%以上を維持しており現在なお劣化の傾向を認めない。フィルタを通過または脱離するヨウ素の放出率は $10^{-5}\sim 10^{-6}\%$ の範囲にあり、最大26 μCi 平均放出量は2 μCi 程度である。ここでいう放出量2 μCi はさらに排風機室に設置した層厚1インチの活性炭フィルタで吸着除去されるためスタック出口における量はこれより1桁程度低下したものとなる。したがってスタック出口に取付けた装置による連続モニタリングにおいても申請値であり、かつ管理目標値の28 μCi /バッチを超えることはなく環境に影響をおよぼすことはなかった。しかしながら使用初期の処理風量の超過に起因して脱炭現象を誘起したため正確なフィルタ効率、フィルタを通過するヨウ素の性状を把握することができなかった。その反面、現在のところ脱炭による顕著な性能劣化も認められず今後も追跡測定をおこない活性炭フィルタに関する資料を蓄積することとしたい。

謝 辞

この実験を遂行するにあたり、換気設備の設計、施工では小坂部一男氏(設備課)、池田三郎氏、前田賢三氏(施設1課RI棟駐在)の各氏に、放射性ヨウ素の安全管理では原田康典氏、箕輪雄資氏(放射線管理課RI棟駐在)に、また実験データの集収にあたり製造課、 ^{99}Mo 製造グループの各諸氏に御協力をいただき、ここに厚く感謝いたします。

Table 7 Data of ¹³¹I removal in off gas

Run classification	Run No	Run Date	Treatment Conditions			Removal efficiency of filter case (A) (%)					¹³¹ I leakage from apparatus		¹³¹ I release from filter case (A)		Ratio to Values of the regulation (1)
			¹³¹ I Radioactivity (Ci)	Irradiation Reactor	Weight of irradiated UO ₂ (g)	Decanting	Distillation	Extraction	Inter-refiltration	Mo purification	Average (%)	Amount (μCi)	Rate (%)	Amount (μCi)	
Tracer	Run - 2	1976.10.6	9.1x10 ³			97.7	96.4	96.9	96.9	97.0	8.9x10 ¹	9.7x10 ¹	2.6x10 ⁰	2.9x10 ³	9.2x10 ⁻²
	Run - 5	1976.11.19	9x10 ³			92.4				92.4	3.0x10 ¹	3.3x10 ¹	2.2x10 ²	2.5x10 ²	7.8x10 ⁻⁴
	Run - 7	1976.12.1	2.8x10 ³			97.0		99.4		98.2	8.6x10 ⁻¹	3.0x10 ³	1.5x10 ²	5.3x10 ⁻⁴	5.3x10 ⁻⁴
	Run - 8	1976.12.9	7.2x10 ³			95.8	99.5	98.8		98.0	1.3x10 ⁰	1.8x10 ²	2.6x10 ²	3.6x10 ⁻⁴	9.3x10 ⁻⁴
Hot	Run - 1	1977.2.7	1.0x10 ²	JRR-3	9.5x10 ⁻²										
	Run - 2	1977.2.8	1.3x10 ²	JRR-3	1.1x10 ¹	98.9			100	99.4	6.6x10 ⁻¹	5.1x10 ³	3.9x10 ³	3.0x10 ⁻³	1.4x10 ⁻⁴
	Run - 3	1977.2.14	2.0x10 ²	JRR-2	1.3x10 ¹						2.3x10 ⁻¹	1.2x10 ³			
	Run - 4	1977.2.28	1.3x10 ¹	JRR-3	1.2x10 ⁰	99.9	99.6	99.8	99.6	99.7	1.1x10 ²	8.4x10 ²	3.3x10 ¹	2.5x10 ⁻⁴	1.1x10 ⁻²
	Run - 5	1977.3.8	2.4x10 ¹	JRR-2	1.5x10 ⁰										
Run	Run - 6	1977.3.15	2.4x10 ¹	JRR-3	1.4x10 ⁰	99.5		99.8	99.3	99.5	3.8x10 ¹	1.6x10 ²	1.9x10 ¹	7.9x10 ³	6.8x10 ⁻³
	Run - 7	1977.3.22	5.1x10 ¹	JRR-2 JRR-3	1.4x10 ⁰ 1.3x10 ⁰				92.7	99.9	4.5x10 ¹	8.8x10 ³	4.1x10 ⁰	8.0x10 ⁻¹	1.5x10 ⁻¹
	Run - 9	1977.7.5	2.3x10 ⁰	JRR-3	1.2x10 ¹	99.2	98.8	96.6	98.6	98.7	4.8x10 ¹	2.1x10 ³	6.4x10 ¹	2.8x10 ¹	2.2x10 ⁻²
	Run - 10	1977.7.11	6.0x10 ⁰	JRR-2 JRR-3	1.2x10 ¹ 1.2x10 ¹	99.3	99.1	98.8	96.3	96.9	9.9x10 ²	1.6x10 ²	2.6x10 ¹	4.4x10 ⁻⁴	9.4x10 ⁻¹
	Run - 11	1977.7.18	1.9x10 ¹	JRR-2	1.2x10 ²	97.5	97.6	98.0	97.3	97.4	3.9x10 ²	2.1x10 ³	9.3x10 ⁰	4.9x10 ³	3.3x10 ⁻¹
	Run - 12	1977.7.26	2.4x10 ¹	JRR-3	1.2x10 ²	99.2	99.4	97.6	98.0	97.6	2.4x10 ²	1.0x10 ³	4.2x10 ⁰	1.7x10 ³	1.5x10 ⁻¹
	Run - 14	1977.9.26	1.3x10 ¹	JRR-3	1.2x10 ²	99.4	99.1	99.5	98.2	99.0	2.9x10 ¹	2.2x10 ⁴	2.7x10 ¹	2.1x10 ⁶	9.9x10 ⁻³
	Run - 15	1977.10.11	1.9x10 ¹	JRR-2	1.2x10 ²	99.7	99.9	99.5	99.7	99.8	1.3x10 ³	7.0x10 ³	2.4x10 ⁰	1.3x10 ⁵	8.6x10 ⁻²
	Run - 16	1977.10.24	1.6x10 ¹	JRR-2	1.2x10 ²			99.8		99.8	8.8x10 ²	5.5x10 ³	2.1x10 ⁰	1.3x10 ⁵	7.5x10 ⁻²
	Run - 17	1977.11.7	2.1x10 ¹	JRR-3	1.2x10 ²	99.8	99.8	98.9		98.9	2.3x10 ²	1.1x10 ³	2.6x10 ⁰	1.1x10 ⁶	9.3x10 ⁻²
Run - 18	1977.11.21	3.6x10 ¹	JRR-2	1.2x10 ²	99.8	99.8	98.6	98.7	99.5	2.6x10 ³	7.2x10 ³	1.1x10 ⁰	3.1x10 ⁶	3.9x10 ⁻²	
Run - 19	1977.12.5	2.9x10 ¹	JRR-2	1.2x10 ²	99.8	99.9	99.0	99.7	99.5	2.1x10 ³	7.2x10 ³	6.3x10 ⁰	2.1x10 ⁷	2.3x10 ⁻¹	

(1) The value of the regulation is 28 μCi / Batch as total for one week

参 考 文 献

- 1) 山林尚道, 出雲三四六, 本木良蔵, 加瀬利雄, 石川勇, 岡根章五, 本石章司, 黒沢清行, 反田孝美: ^{99}Mo 大量製造技術の開発-(I) 第14回理工学における同位元素研究発表会, 講演番号 1a-III-9, 要旨集 p. 110 (1977)
- 2) 立川克浩, 井口明, 青山三郎, 出雲三四六: ^{99}Mo 大量製造施設の設計 第13回理工学における同位元素研究発表会, 講演番号 30a-II-5, 要旨集 p. 39 (1976)
- 3) 天野恕, 四方英治, 井口明, 出雲三四六, 鈴木恭平: ヨウ素-131 製造技術の開発 JAERI-Report 1232 (1973)
- 4) 木谷進, 高田準一, 宇野清一郎: 原子炉用添着活性炭による放射性ヨウ素の捕集, 空気清浄第10巻第2号 p. 63~70 (1972)
- 5) D. A. Collins, et al., Development of Impregnated Charcoals for Trapping Methyl Iodide at High Humidity CONF-660904, p. 159 (1967)
- 6) G. H. Prigge: Application of Activated carbon in reactor Containment DP-778, (1962)
- 7) 村田寿典ら: 日本原子力学会誌, 11, p. 612 (1969)
- 8) 出雲三四六, 井口明, 山口五十夫, 佐藤彰, 赤石悟, 伊藤太郎: ヨウ素-131 大量製造施設排気ろ過装置のろ過性能, 日本原子力学会誌14, p. 540~546 (1972)
- 9) R. D. Ackley, et al.: CONF-660904, p. 199 (1967)
- 10) 吉田芳和, 池沢芳夫, 狐塚正夫: 高性能エアフィルタの現場試験法に関する研究, 空気清浄第8巻第7号 (1971)
- 11) 木谷進, 池沢芳夫, 狐塚正夫: チャコールフィルタの現場試験に関する研究, 空気清浄第8巻第7号 (1971)
- 12) D. R. Muhlbaier: Nondestructive Test of Carbon Beds for Reactor Confinement Applications, DP-1053 (1966)
- 13) W. S. Durant, R. C. Milham, D. R. Muhlbaier and A. H. Peters.: Activity Confinement System of the Savannah River Plant Reactors, DP-1071 (1966)
- 14) 吉田芳和, 成富満夫: 放射性ヨウ素のモニタリング, 保健物理, 9, p. 233~241 (1974)
- 15) FUKUDA S. and NARITOMI M.: Performance of an improved air sampler for collecting air-borne radioiodine, J. Nucl. Sci. Technol. (Tokyo), 7, p. 450-457 (1970)
- 16) 成富満夫, 福田整司: 浮遊性ヨウ素に対する活性炭ろ紙の捕集特性, 日本原子力学会誌 13, p. 174-181 (1971)
- 17) R. E. Adams and R. D. Ackley: Trapping of Radioactive Iodine and Methyl Iodide by Iodided Charcoal, p. 111, ORNL-4228 (1967)

- 18) R. D. Ackley and R. E. Adams : Aging and Weathering of Impregnated Charcoals Used for Trapping Radioiodine (An Interim Report), p. 170 CONF-680821 (1968)
- 19) W. S. Durant : Performance of Activated Carbon Beds in SRP Reactor Confinement Facilities DP-1028 (1966)