

使用済燃料の再処理に伴うトリチウムの 化学形及び排気・廃水への移行割合

(技術報告)

2002年3月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184,

Japan

© 核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2002

使用済燃料の再処理に伴うトリチウムの 化学形及び排気・廃水への移行割合

(技術報告)

三上 智^{*}，井坂圭輔^{**}，横田友和^{**}，小沢友康^{**}，秋山聖光^{*}，宮部賢次郎^{*}

要 旨

核燃料サイクル開発機構（以下、サイクル機構という）東海事業所の再処理施設において、使用済燃料の再処理に伴って発生するトリチウムの化学形及び排気・廃水への移行割合を調査するため、文献調査を行うとともに主排気筒及び海洋放出廃水のモニタリングデータを解析した。

その結果、主排気筒から放出されるトリチウムの70～80%は水分状トリチウム(HTO)であり、残り20～30%が水素ガス状トリチウム(HT)であること、また、主排気筒から放出されるトリチウム量は燃料中に含まれる全トリチウム量の1%未満、海洋放出量は同じく約20～40%であることが確認できた。

* 放射線安全部放射線管理第二課

** 検査開発(株)

Chemical Forms and Discharge Ratios to Stack and Sea of Tritium from Tokai Reprocessing Plant

(Technical Document)

Satoshi MIKAMI*, Keisuke ISAKA**, Tomokazu YOKOTA**,
Tomoyasu KOZAWA**, Kiyomitsu AKIYAMA*,
and Kenjiro MIYABE*

ABSTRACT

Chemical forms and discharge ratios to stack and sea of tritium from Tokai Reprocessing Plant of Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) were investigated by analyzing monitoring data.

It was ascertained that approximately 70-80% of tritium discharged from the main stack was tritiated water vapor (HTO) and approximately 20-30% was tritiated hydrogen (HT) as a result of analyzing the data taken from reprocessing campaigns in 1994,1995,1996,1997,2000 and 2001, and also that the amount of tritium released from the stack was less than 1% of tritium inventory in spent fuel and the amount of tritium released into sea was approximately 20-40% of inventory.

* Reprocessing Radiation Control Section, Radiation Protection Division

** Inspection Development Company Ltd.

目 次

1 . はじめに.....	1
2 . 排気中トリチウムの化学形調査.....	1
2 . 1 概要.....	1
2 . 2 化学形調査方法.....	1
2 . 3 サンプリング及び測定方法.....	2
2 . 4 調査結果.....	3
2 . 5 排気筒から放出されるトリチウムの化学形に関する文献調査結果..	6
3 . トリチウム移行割合の調査.....	6
3 . 1 工程内挙動概要.....	6
3 . 2 排気, 廃水への移行割合.....	7
3 . 3 排気, 廃水以外への移行割合の考察.....	8
3 . 4 処理燃料の違いによる移行先の考察.....	8
4 . おわりに.....	9
5 . 参考文献.....	10
付録 . 外れ値の取扱いについて.....	24

図目次

図-1	排気筒トリチウムサンプラー系統図.....	11
図-2	東海再処理施設におけるトリチウムの工程内挙動.....	12
図-3	燃料中トリチウムの移行先及び排気中トリチウムの化学形.....	13

表目次

表 1	排気中トリチウムの化学形 (1994 年度 94-1 キャンペーン)	14
表 2	排気中トリチウムの化学形 (1995 年度 95-1 キャンペーン)	15
表 3	排気中トリチウムの化学形 (1996 年度 96-1 キャンペーン)	16
表 4	排気中トリチウムの化学形 (1997 年度 97-1 キャンペーン)	17
表 5	排気中トリチウムの化学形 (2001 年度 01-2 キャンペーン)	18
表 6	排気筒から放出されるトリチウムの化学形別割合.....	19
表 7	ORIGEN 計算値との比較(00-1A キャンペーン).....	20
表 8	ORIGEN 計算値との比較(00-2 キャンペーン).....	21
表 9	ORIGEN 計算値との比較(01-1 キャンペーン).....	22
表 10	モニタリングデータと ORIGEN 計算値との比較.....	23

1. はじめに

使用済燃料中には原子炉運転中に3重核分裂等で生成したトリチウムが含まれる。使用済燃料中のトリチウムは、せん断・溶解工程において、被覆材(以下、ハル)中で水素化物を形成しているトリチウムを除いてその一部はガスとして換気系へ移行し、残りは溶解液中に含まれる^{1),2)}。

サイクル機構東海事業所再処理施設(以下、東海再処理施設)においては主排気筒(以下、排気筒)及び海洋放出管から放出するトリチウム量をモニタリングしている。また、排気筒にトリチウムサンプラーが2系統設置されている利点を活かして、トリチウムの化学形調査を実施することができる。今回、実測データを基に排気筒から放出されるトリチウムの化学形割合及び排気、廃水への移行割合を調査するとともに、関連する文献調査も行った。

2. 排気中トリチウムの化学形調査

2.1 概要

東海再処理施設の01-2キャンペーン(2001年10月10日~2001年12月11日)において排気筒から放出される排気に含まれるトリチウムの化学形調査を目的としてデータ採取を行うとともに過去のキャンペーンにおける排気筒トリチウムモニタリングのデータを整理した。また、再処理施設から放出されるトリチウムの化学形に関する文献調査も行った。

2.2 化学形調査方法

東海再処理施設排気筒にはコールドトラップ法によるトリチウムサンプラーが設置されている。トリチウムサンプラーの定期点検やその他トラブル等の際にもサンプリングを中断させないためサンプラーは2系統設置されている(図-1参照)。

2系統設置されている排気筒トリチウムサンプラーの1系統は酸化炉(550℃)を作動させることで水分状トリチウム(HTO)に加え、水素ガス状トリチウム(HT)も水分状トリチウムとして捕集し、他方は、酸化炉を作動させず、水分状トリ

トリウムのみを捕集し、排気中に存在する水素ガス状トリウムと水分状トリウムの割合を評価した。

2.3 サンプルング及び測定方法

トリウムサンプラーは、図-1 に示すように温湿度計、白金触媒の酸化装置、トラップ装置、及びトリウム水回収タンク等で構成されている。排気に含まれる水分状トリウム (HTO) はトラップ装置で-32℃ に冷却凝縮される。冷却凝縮された水分状トリウムをヒーターで加熱、溶解することでトリウム水として回収する。トラップ装置は2系統あり、一系統で冷却凝縮 (サンプルング) を行い、その間、他系統では加熱溶解を行い、回収タンクに凝縮水を排出する。12時間毎に冷却と加熱の自動切替えを行い、排気中トリウムを連続的にサンプルングしている。(切替え4時間前から予冷却を行っている。) 排気のサンプルング流量は2l/minとし、1週間毎に回収タンクに集まった凝縮水を回収、トリウム濃度の測定及び放出量の評価を行う。

捕集した排気中のトリウム濃度は、シンチレータとして Aquasol-2 を使用し、試料5ml に対しシンチレータ 15ml を混合し、液体シンチレーションカウンタ (パッカード 2550TR/AB) で測定する。

排気筒から放出されるトリウム量は、(1) 式により算出している。

$$Q=C \times V \times 10^{-3} \dots \dots \dots (1)$$

ただし、

$$C=C_w \times H_r \times 10^{-2}$$

$$C_w =E \times 1/S$$

- Q : 放出量 [GBq]
- C : 排気中の放射能濃度 [Bq/cm³]
- V : 捕集期間中の排気筒排风量 [m³]
- C_w : 凝縮試料水中の放射能濃度 [Bq/g]
- : 捕集期間中の排気中平均温度における飽和水蒸気密度 [g/cm³]
- H_r : 捕集期間中の排気中平均相対湿度 [%]
- E : ³H 試料分析値 [Bq]
- S : 液体シンチレーションカウンタで測定時の凝縮試料水量 [g]

2.4 調査結果

過去の試験データを表1から表4に示す。また、01-2 キャンペーン（キャンペーン期間 2001 年 10 月 10 日 2001 年 12 月 11 日）時に採取したデータを表5に示す。

試験データの中には、「(HTO+HT)の放出量 < HTO の放出量」のような工学的に明らかに疑わしい結果となっている週があるが、この原因としてはサンプリングや試料調整に伴う不確かさ、排気に含まれる水素ガス状トリチウム (HT) の量が非常に少ないことなどが考えられる。そこで、キャンペーン毎のデータにおいて、「(HTO+HT)の放出量 < HTO の放出量」のような工学的に明らかに疑わしい値を排除した上で評価を行うために、水素ガス状トリチウムの放出量の平均値を算出するに当たっては、(2)式ではなく(3)式により評価した。

$$\frac{\sum E_{HT}}{n} = \frac{\sum (E_{HTO+HT})}{n} - \frac{\sum (E_{HTO})}{n} \dots \dots \dots (2)$$

$$\frac{\sum E_{HT}}{n} = \frac{\sum (E_{HTO+HT} - E_{HTO})}{n} \dots \dots \dots (3)$$

ただし、

E_{HT} ：水素ガス状トリチウムの放出量 [GBq]

E_{HTO} ：水分状トリチウムの放出量 [GBq]

n ：各キャンペーンにおけるサンプリング期間の数 [sample]

また、今回のデータ解析においては、1つの突出したデータ（データの集まりから極端に離れたデータの値を「異常値」または「外れ値」とよぶ³⁾が本報告では「外れ値」に統一して記載する。）により平均値を引き上げられたり、引き下げられたりすることがないように、外れ値と見られるデータについてはそのキャンペーン毎に「修正トンプソン- 法」⁴⁾による検定作業を行い外れ値かどうかの見極めを行った。同一キャンペーン中であれば処理燃料及びサンプリング、測定作業など測定結果に不確かさを与えるような条件がある程度同等であると考えられ、取得データも比較的ばらつきの少ない、すなわち概ね平均的

なデータが期待できるため、データはキャンペーン毎に解析した。

94-1 キャンペーン時に採取したデータを表 1 にまとめた。サンプリング期間は 1994 年 3 月 30 日から 1994 年 6 月 29 日まで 13 週間で、この間に処理された燃料は主に PWR 燃料 (PWR 燃料 112 体 [平均燃焼度 26,089MWD/t], BWR 燃料 26 体 [平均燃焼度 27,753MWD/t]) であった。94-1 キャンペーンにおける試験結果は以下の通りである。

水分状トリチウム量に対する水素ガス状トリチウム量の比は平均で約 0.4 ,全トリチウム量に占める水素ガス状トリチウムの割合は平均で約 28% であった。

ただし、1994 年 3 月 30 日から 4 月 6 日の 1 週間のデータは他の期間のデータと比べて極端に離れており外れ値と疑われるので、修正トンプソン- 法により、このデータが外れ値であるかどうか、試験データとして採用すべきかどうかを判定した結果、このデータは外れ値と判定されたため、このデータを排除した上で平均値等を算出した (付録参照)。

95-1 キャンペーン時に採取したデータを表 2 にまとめた。サンプリング期間は 1995 年 1 月 25 日から 6 月 21 日までの 21 週間で、この間に処理された燃料は BWR 燃料が 139 体 [平均燃焼度 25,054MWD/t], ATR 燃料が 135 体 [平均燃焼度 10,872MWD/t], PWR 燃料が 40 体 [平均燃焼度 26,646 MWD/t] であった。95-1 キャンペーンにおける試験結果は以下の通りであった。

水分状トリチウム量に対する水素ガス状トリチウム量の比は平均で約 0.3 ,全トリチウム量に占める水素ガス状トリチウムの割合は平均で約 20% であった。

ただし、2 月 8 日から 2 月 15 日の週はトリチウムサンプラーの点検のため酸化炉なしのデータが残っていなかった。また、2 月 15 日から 2 月 22 日の週、3 月 8 日から 3 月 15 日の週及び 4 月 5 日から 4 月 12 日の週は酸化炉を作動させて水素ガス状トリチウム (HT) も含めてサンプリングした方が水分状トリチウム (HT0) のみをサンプリングしたものより少ないトリチウム量 (濃度 χ (HT0+HT) の放出量 < HT0 の放出量) になっており、工学的判断として、データ整理の際には採用していない。なお、3 月 15 日から 3 月 22 日の週は (HT/HT0+HT の割合が) 平均値と比べ最も低い値であり、4 月 19 日から 4 月 26 日の週は逆に最も大きな値であったので、外れ値を疑い、前述の修正トンプソン- 法により判定したが、共に外れ値とは判定されなかったためデータとして採用した。

96-1 キャンペーン時に採取したデータを表 3 にまとめた。サンプリング期間は 1996 年 3 月 27 日から 6 月 26 日の 13 週間で、この間に処理された燃料は BWR

燃料が 98 体 [平均燃焼度 27,901MWD/t], ATR 燃料が 34 体 [平均燃焼度 10,298MWD/t], PWR 燃料が 14 体 [平均燃焼度 15,080MWD/t] であった。96-1 キャンペーンにおける試験結果は以下の通りであった。

水分状トリチウム量に対する水素ガス状トリチウム量の比は平均で約 0.3 , 全トリチウム量に占める水素ガス状トリチウムの割合は平均で約 24% であった。

ただし , 4 月 10 日から 4 月 17 日 , 4 月 24 日から 5 月 1 日及び 6 月 19 日から 6 月 26 日の各週のデータはいずれも酸化炉を作動させて水素ガス状トリチウム (HT) も含めてサンプリングした方が水分状トリチウム (HTO) のみをサンプリングしたものより少ないトリチウム量 (濃度) (HTO+HT) の放出量 < HTO の放出量) になっており , 工学的判断として , データ整理の際には採用していない。また 5 月 22 日から 5 月 29 日の週のデータは平均値からの偏差が最も大きい値であり外れ値を疑い , 修正トンプソン- 法により判定した結果 , 外れ値ではないと判定されたためデータとして採用した。

97-1 キャンペーン時に採取したデータを表 4 にまとめた。サンプリング期間は 1997 年 1 月 29 日から 4 月 2 日までの 9 週間で , この間に処理された燃料はすべて BWR 燃料 [平均燃焼度 24,771MWD/t] で 103 体であった。97-1 キャンペーンにおける試験結果は以下の通りであった。

水分状トリチウム量に対する水素ガス状トリチウム量の比は平均で約 0.2 , 全トリチウム量に占める水素ガス状トリチウムの割合は平均で約 16% であった。

ただし , 2 月 5 日から 2 月 12 日の週のデータは酸化炉を作動させて水素ガス状トリチウム (HT) も含めてサンプリングした方が水分状トリチウム (HTO) のみをサンプリングしたものより少ないトリチウム量 (濃度) (HTO+HT) の放出量 < HTO の放出量) になっており , 工学的判断として , データ整理の際には採用していない。なお , 1 月 29 日から 2 月 5 日のデータは平均値からの偏差が最も大きい値であり外れ値を疑い , 修正トンプソン- 法により判定した結果 , 外れ値ではないと判定されたためデータとして採用した。

01-2 キャンペーン時に採取したデータを表 5 にまとめた。サンプリング期間は 2001 年 10 月 10 日から 12 月 12 日までの 9 週間で , この間に処理された燃料は PWR 燃料 [平均燃焼度 28,000MWD/t] が 18 体 , ATR 燃料 [平均燃焼度 16,958MWD/t] が 32 体であった。

水分トリチウム量に対する水素ガス状トリチウム量の比は平均で約 0.4 , 全トリチウム量に占める水素ガス状トリチウムの割合は平均で約 29% であった。

ただし、11月7日から11月14日の週、11月28日から12月5日の週及び12月5日から12月12日の週のデータは酸化炉を作動させて水素ガス状トリチウム（HT）も含めてサンプリングした方が水分状トリチウム（HTO）のみをサンプリングしたものより少ないトリチウム量（濃度）（HTO+HT）の放出量＜HTOの放出量）になっており、工学的判断として、データ整理の際には採用していない。

2.5 排気筒から放出されるトリチウムの化学形に関する文献調査結果

W.A.Havey によると Hanford の再処理工場のスタックから放出されるトリチウムの75%が水分状トリチウムであると報告している⁵⁾。米国 NFS 社の場合、スタックから大気中へ放出されるトリチウムのうち74%が水分状トリチウム（HTO）で、残り26%が水素ガス状トリチウム（HT）として放出されるとしている（燃料の燃焼度 20,000MWD/MTU）。また、他の再処理工場と工程が異なるが、米国 AGNS 社の場合は94.7%が水分状トリチウム（HTO）で残り5.3%が水素ガス状トリチウム（HT）として放出される（燃料の燃焼度 40,000MWD/MTU）と評価している⁶⁾。今回の東海再処理施設における排気中トリチウムの化学形調査の結果も過去の文献値と同等の結果であった。文献値も含めトリチウムの化学形別割合を表6にまとめた。

3. トリチウム移行割合の調査

3.1 工程内挙動概要

原子炉での燃焼時の線出力にもよるが、使用済燃料中のトリチウムの一部はハル中に移行し、一部は再処理施設で燃料をせん断、溶解中に水素ガス状トリチウムとして換気系に移行する。これらを除く、残りのトリチウムを含む溶解液はその後抽出分離、精製、濃縮等の各工程で処理されるが、トリチウムの化学形の大部分は HTO であるので水と同様の挙動をし、一部は高レベル廃液として貯槽に送られ、その後ガラス固化処理されるが、ほとんどは液体廃棄物処理系へ移行する^{1), 2), 9)}。

図-2 に東海再処理施設においてこれまでの経験を基に評価された各工程におけるトリチウムの挙動を示す¹⁾。ただし、ハルに移行するトリチウムについて

は直接分析したデータがないので、文献値を参考にして、燃料中で生成したトリチウムの60%がハルに移行するとともに残りの40%が溶解液、不溶解残さあるいはオフガスに移行するものとし^{7),8)}、せん断、溶解工程で溶解液及びオフガスに移行するトリチウムを100%としてそれ以降の移行割合の算出を行っている¹⁾。

3.2 排気、廃水への移行割合

00-1A キャンペーン、00-2 キャンペーン、01-1 キャンペーンを利用し、トリチウムの排気筒からの放出量及び海洋への放出量を ORIGIN コード (ORIGIN79) で計算した燃料中に含まれるトリチウム量 (以下、ORIGIN 計算値という。) と比較することで、燃料中に含まれるトリチウムのうち排気筒から放出される割合、及び廃液として海洋放出される割合を評価した。トリチウムモニタリングデータから、燃料処理に伴い発生するトリチウムはキャンペーン終了後も約1週間から4週間程度は大気及び海洋へ放出されることがわかる。このため、トリチウム放出量の評価対象期間は最初の燃料の処理 (せん断) 開始からキャンペーン終了後、トリチウム放出量がバックグラウンドレベルに戻るまでとした。

まず、00-1A キャンペーン時の採取データを表7に示す。キャンペーン期間は2000年6月29日から2000年8月1日であり、この間に処理された燃料は全てBWR 燃料 [平均燃焼度 28,037MWD/t] で32体である。データ解析のためのサンプリング期間は2000年6月28日から8月29日とした。00-1A キャンペーンにおけるトリチウムの ORIGIN 計算値 (燃料中に含まれるトリチウム量) は 5.22×10^4 GBq であり、6月28日から8月29日の間に排気筒から放出されたトリチウムは 4.3×10^2 GBq (ORIGIN 計算値の0.8%)、海洋放出されたトリチウム量は 1.2×10^4 GBq (ORIGIN 計算値の23.5%) であった。8月30日以降の放出量はバックグラウンドレベルであった。

00-2 キャンペーン時の採取データを表8に示す。キャンペーン期間は2000年11月20日から2000年12月18日であり、この間に処理された燃料は全てATR 燃料 [平均燃焼度 16.962MWD/t] で18体である。データ解析のためのサンプリング期間は2000年11月15日から12月26日とした。00-2 キャンペーンにおけるトリチウムの ORIGIN 計算値は 1.6×10^4 GBq であり、サンプリング期間中に排気筒から放出されたトリチウムは 1.4×10^2 GBq (ORIGIN 計算値の0.9%)、海洋放出されたトリチウム量は 4.8×10^3 GBq (ORIGIN 計算値の30.7%) であった。

12月27日以降の放出量はバックグラウンドレベルであった。

01-1 キャンペーン時の採取データを表 9 に示す。キャンペーン期間は 2001 年 3 月 8 日から 2001 年 6 月 26 日であり，この間に処理された燃料は BWR 燃料 [平均燃焼度 26,131MWD/t] 34 体及び PWR 燃料 [平均燃焼度 25,485 MWD/t] 45 体である。データ解析のためのサンプリング期間は 2000 年 3 月 7 日から 7 月 31 日とした。01-1 キャンペーンにおけるトリチウムの ORIGEN 計算値は 2.1×10^5 GBq であり，サンプリング期間中に排気筒から放出されたトリチウムは 1.7×10^3 GBq (ORIGEN 計算値の 0.8%)，海洋放出されたトリチウム量は 8.9×10^4 GBq (ORIGEN 計算値の 43.0%) であった。8 月 1 日以降の放出量はバックグラウンドレベルであった。

3 つのキャンペーンにおけるトリチウムデータを整理すると，排気筒からの放出量は ORIGEN 計算値の 1% 未満，海洋放出量は同じく約 20% ~ 40% であった(表 10 参照)。

3.3 排気，廃水以外への移行割合の考察

図-2 に示すように，全トリチウムのうちハルへ移行する割合が約 60%，せん断，溶解工程に移行する割合が約 40%¹⁾ との仮定のもとで考察すると，せん断，溶解工程に移行するトリチウムのうち高レベル廃液貯槽に移行する割合が約 4%，低レベル廃液貯槽に移行する割合が約 1% であるならば，全トリチウムのうち高レベル廃液貯槽に移行する割合は約 1.6%，同じく低レベル廃液貯槽には 0.4% であると考えられる。

3.4 処理燃料の違いによる移行先の考察

処理燃料がすべて BWR 燃料であった 00-1A キャンペーン時のデータと PWR 燃料が主であった 01-1 キャンペーン時のデータを比較すると，排気筒から放出される割合は等しいが，00-1A(BWR) キャンペーンの方が廃水（海洋放出）に含まれる割合が少ない。PWR 燃料より BWR 燃料の方が線出力が大きいためハルへ移行するトリチウムの割合が多いと報告されているが⁹⁾，今回のデータでも同様の傾向であった。

4. おわりに

東海再処理施設の排気筒におけるトリチウムモニタリングの結果，排気筒から放出されるトリチウムの化学形は，16%～29%が水素ガス状トリチウム（HT），71～84%が水分状トリチウム（HTO）であった。また，燃料中に含まれるトリチウムの移行先については，海洋放出されるトリチウム量を合わせて評価した結果，全トリチウムの約20%～40%が海洋放出され，1%未満が排気筒から放出されることがわかった。

一方，文献によると全トリチウムのうち高レベル廃液貯槽に移行する割合は約1.6%，同じく低レベル廃液貯槽には約0.4%，同じくハルへは約60%とされる^{1), 7)}。

以上の結果を図-3に示す。

今回は，化学形調査については5キャンペーン，排気筒及び廃水への移行割合の調査については3キャンペーンのデータ解析結果を報告したが，ほとんどのキャンペーンは処理する燃料としてPWR，BWR，及びATR燃料が同一キャンペーンに含まれているため燃料毎の調査は困難であったのでキャンペーン単位でデータ解析を行った。また，ハル，低レベル廃液貯槽，及び高レベル廃液貯槽への移行割合については文献値を参考にして，燃料中に含まれるトリチウムの移行先及び移行割合の考察を行った。

トリチウムの化学形調査及び排気・廃水への移行割合調査については今後もデータの蓄積を継続して行う。

5 . 参考文献

- 1) 宮部賢次郎：“再処理施設におけるトリチウムモニタリングの経験”，「トリチウム安全理工学」専門研究会「施設・環境放射能動態」研究専門委員会報告書，p24-39(2002)
- 2) 辻 信雄，他：“イオン交換法/液体シンチレーションスペクトル分析法による再処理工程試料中のトリチウム分析方法の検討-再処理工程管理分析法の検討 第7報-”，PNC ZN841 81-43（1981）
- 3) 永田靖：“入門統計解析法”日科技連（1992）
- 4) ANSI/ASME：“計測の不確かさ，アメリカ機械学会性能試験規約 計測機器及び試験装置に関する補則，第1部(日本機械学会訳)”，ANSI/ASME PTC19.1（1985）
- 5) 渡部孝三，他：“燃料再処理に伴うトリチウムのモニタリング”，保健物理6，p183-187(1971)
- 6) 北原義久：“再処理におけるトリチウムの挙動”，NIRS-M No.42，p17-26(1981)
- 7) 再処理施設安全対策班：“東海再処理施設の安全性確認に係る基本データの確認”，JNC TN8410 99-002（1999）
- 8) Peter Taylor：“A survey of method immobilize tritium and carbon-14 arising from a nuclear fuel reprocessing plant”，AECL-10300（1991）
- 9) 山之内種彦，他：“再処理工場におけるトリチウムの挙動”，PNC TN841 81-37(1981)

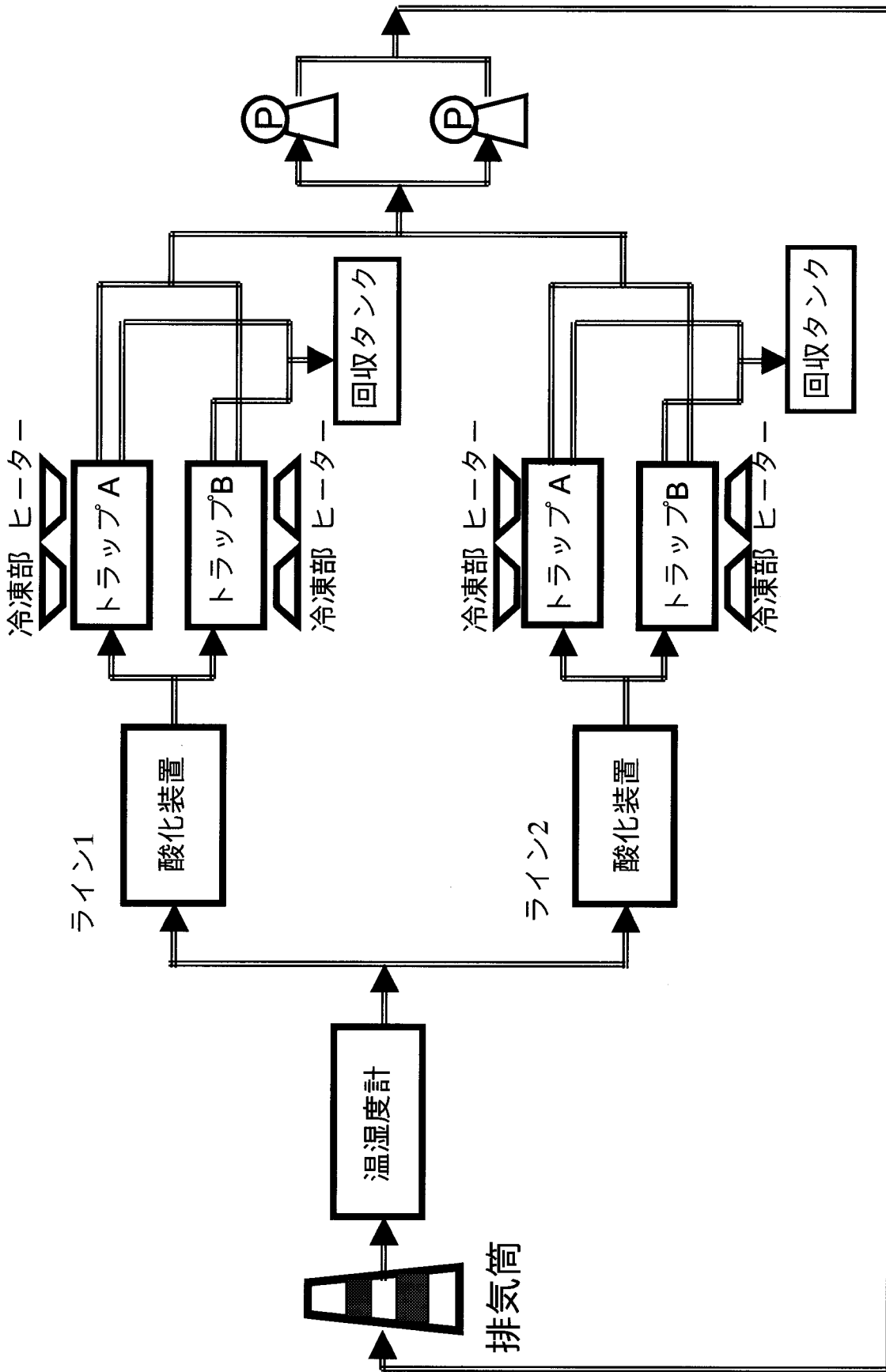


図-1 排気筒トリチウムサンプラシステム図

注() : 溶解液及びオフガス系に移行するトリチウムに対する割合
 [] : 使用済燃料中トリチウムに対する割合

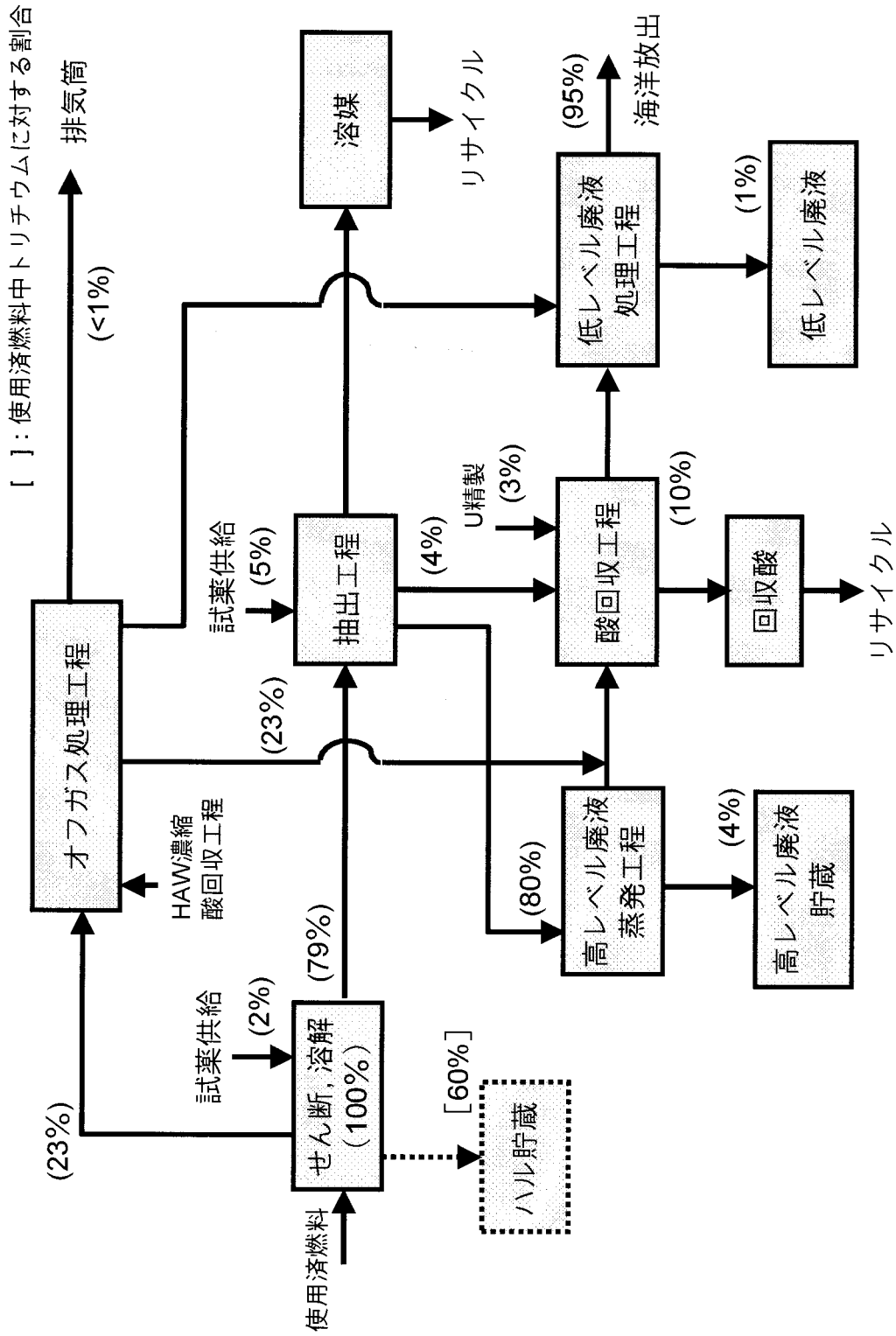


図-2 東海再処理施設におけるトリチウムの工程内挙動¹⁾

表1 排気中トリチウムの化学形 (1994年度 941キャンペーン)

	放出量					備考
	酸化炉あり[]	酸化炉なし[]	-	割合	比	
サブ・リンク・期間	HTO+HT [GBq]	HTO [GBq]	HT [GBq]	HT / HTO+HT	HT/HTO	
3月29日 ? 4月5日	1.08E+02	4.40E+01	6.40E+01	59.26%	*	* : 修正トンプソン- 法により外れ値と判定
4月5日 ? 4月12日	2.16E+02	1.21E+02	9.50E+01	43.98%	7.9.E-01	
4月12日 ? 4月19日	2.26E+02	1.98E+02	2.80E+01	12.39%	1.4.E-01	
4月19日 ? 4月27日	2.76E+02	2.34E+02	4.20E+01	15.22%	1.8.E-01	
4月27日 ? 5月5日	4.90E+02	3.13E+02	1.77E+02	36.12%	5.7.E-01	
5月5日 ? 5月10日	2.07E+02	1.62E+02	4.50E+01	21.74%	2.8.E-01	
5月10日 ? 5月17日	3.25E+02	2.36E+02	8.90E+01	27.38%	3.8.E-01	
5月17日 ? 5月24日	2.79E+02	1.95E+02	8.40E+01	30.11%	4.3.E-01	
5月24日 ? 5月31日	2.62E+02	1.80E+02	8.20E+01	31.30%	4.6.E-01	
5月31日 ? 6月7日	2.57E+02	1.99E+02	5.80E+01	22.57%	2.9.E-01	
6月7日 ? 6月14日	1.81E+02	1.09E+02	7.20E+01	39.78%	6.6.E-01	
6月14日 ? 6月21日	1.88E+02	1.31E+02	5.70E+01	30.32%	4.4.E-01	
6月21日 ? 6月28日	1.19E+02	9.32E+01	2.58E+01	21.68%	2.8.E-01	
平均値 =				27.72%	0.41	
標準偏差				9.52%		

処理した燃料の原子炉名称	燃焼度 (MWD / t)	集合体数 (体)	燃料重量 (MTU)
関西美浜2号機 (P)	14.312? 33.670 (A v 25.693)	50	16.8
四国伊方1号機 (P)	26.711? 28.764 (A v 27.905)	14	5.6
九州玄海1号機 (P)	22.397? 29.304 (A v 27.379)	14	5.6
中部浜岡2号機 (P)	18.269? 29.304 (A v 23.377)	34	6.3
東京福島第一・3号機 (B)	25.240? 32.003 (A v 27.753)	26	4.5

表2 排気中トリチウムの化学形 (1995年度 951キャンペーン)

サブリング期間	放出量			割合 HT / HTO+HT	比 HT/HTO	備考
	酸化炉あり [] HTO+HT [GBq]	酸化炉なし [] HTO [GBq]	- HT [GBq]			
1月25日 ? 2月1日	3.98E+01	3.45E+01	5.30E+00	13.32%	1.54E-01	
2月1日 ? 2月8日	5.11E+01	3.15E+01	1.96E+01	38.36%	6.22E-01	
2月8日 ? 2月15日	9.82E+01	-	-			点検のため酸化炉なしのデータなし
2月15日 ? 2月22日	1.09E+02	1.14E+02	-5.00E+00			工学的判断により採用せず
2月22日 ? 3月1日	1.25E+02	1.24E+02	1.00E+00	0.80%	8.06E-03	
3月1日 ? 3月8日	1.06E+02	1.01E+02	5.00E+00	4.72%	4.95E-02	
3月8日 ? 3月15日	9.38E+01	9.41E+01	-3.00E-01			工学的判断により採用せず
3月15日 ? 3月22日	9.53E+01	9.49E+01	4.00E-01	0.42%	4.21E-03	*修正トンプソン- 法で確認した結果、
3月22日 ? 3月29日	9.06E+01	8.08E+01	9.80E+00	10.82%	1.21E-01	外れ値ではない。
3月29日 ? 4月5日	7.45E+01	6.96E+01	4.90E+00	6.58%	7.04E-02	
4月5日 ? 4月12日	6.32E+01	6.67E+01	-3.47E+00			工学的判断により採用せず
4月12日 ? 4月19日	1.02E+02	9.35E+01	8.50E+00	8.33%	9.09E-02	
4月19日 ? 4月26日	1.50E+02	8.68E+01	6.32E+01	42.13%	7.28E-01	*修正トンプソン- 法で確認した結果、
4月26日 ? 5月2日	2.89E+02	1.74E+02	1.15E+02	39.79%	6.61E-01	外れ値ではない。
5月2日 ? 5月10日	3.44E+02	2.36E+02	1.08E+02	31.40%	4.58E-01	
5月10日 ? 5月17日	2.14E+02	1.63E+02	5.10E+01	23.83%	3.13E-01	
5月17日 ? 5月24日	2.30E+02	1.89E+02	4.10E+01	17.83%	2.17E-01	
5月24日 ? 5月31日	2.54E+02	1.76E+02	7.80E+01	30.71%	4.43E-01	
5月31日 ? 6月7日	2.95E+02	1.91E+02	1.04E+02	35.25%	5.45E-01	
6月7日 ? 6月14日	1.79E+02	1.35E+02	4.40E+01	24.58%	3.26E-01	
6月14日 ? 6月21日	7.77E+01	7.35E+01	4.20E+00	5.41%	5.71E-02	
	平均値 =			19.66%	0.29	
	標準偏差			14.53%		

処理した燃料の原子炉名称	燃焼度 (MWD / t)	集合体数 (体)	燃料重量 (MTU)
中部浜岡1号機 (B)	19.747?32.945 (A v 25.632)	34	5.9
中国島根1号機 (B)	16.223?30.843 (A v 27.979)	18	3.1
東京福島第一・4号機 (B)	26.166?26.934 (A v 26.636)	26	4.5
動燃事業団ふげん発電所 (A)	5.502?18.914 (A v 10.872)	135	20.7
四国伊方1号機 (P)	23.199?29.898 (A v 27.989)	14	5.6
関西美浜2号機 (P)	10.862?32.426 (A v 25.302)	26	10.2
東京福島第一・4号機 (B)	26.178?26.935 (A v 26.685)	8	1.4
東北女川1号機 (B)	13.062?27.845 (A v 18.339)	53	9.6

表3 排気中トリチウムの化学形 (1996年度 961キャンペーン)

サンプリング期間	放出量			割合 HT / HTO+HT	比 HT/HTO	備考
	酸化炉あり[] HTO+HT [GBq]	酸化炉なし[] HTO [GBq]	- HT [GBq]			
3月27日 ? 4月3日	3.68E+01	3.38E+01	3.00E+00	8.15%	8.88E-02	
4月3日 ? 4月10日	1.12E+02	7.22E+01	3.98E+01	35.54%	5.51E-01	
4月10日 ? 4月17日	7.64E+01	1.02E+02	-2.56E+01			工学的判断により採用せず
4月17日 ? 4月24日	2.03E+02	1.37E+02	6.60E+01	32.51%	4.82E-01	
4月24日 ? 5月1日	2.14E+02	2.63E+02	-4.90E+01			工学的判断により採用せず
5月1日 ? 5月8日	2.51E+02	1.99E+02	5.20E+01	20.72%	2.61E-01	
5月8日 ? 5月15日	2.02E+02	1.64E+02	3.80E+01	18.81%	2.32E-01	
5月15日 ? 5月22日	1.75E+02	1.37E+02	3.80E+01	21.71%	2.77E-01	
5月22日 ? 5月29日	1.10E+02	1.02E+02	8.00E+00	7.27%	7.84E-02	
5月29日 ? 6月5日	8.36E+01	6.00E+01	2.36E+01	28.23%	3.93E-01	
6月5日 ? 6月12日	1.45E+02	9.05E+01	5.45E+01	37.59%	6.02E-01	
6月12日 ? 6月19日	1.36E+02	9.78E+01	3.82E+01	28.09%	3.91E-01	
6月19日 ? 6月26日	4.78E+01	4.80E+01	-2.00E-01			工学的判断により採用せず
平均値 =				23.86%	0.34	
標準偏差				10.53%		

処理した燃料の原子炉名称	燃焼度 (MWD / t)	集合体数 (体)	燃料重量 (MTU)
動燃事業団ふげん発電所 (A)	6.575?17.445 (A v 10.298)	34	5.2
中国島根 1号機 (B)	17.530?30.864 (A v 27.991)	44	7.7
原電東海第二 (B)	22.611?30.522 (A v 27.811)	54	9.7
関西美浜 2号機 (P)	13.701?17.705 (A v 15.080)	14	5.6

表4 排気中トリチウムの化学形 (1997年度 971キャンペーン)

サンプリング 期間	放出量			割合 HT / HT+HTO	比 HT/HTO	備考
	酸化炉あり[] HTO+HT [GBq]	酸化炉なし[] HTO [GBq]	- HT [GBq]			
1月29日 ? 2月5日	3.03E+01	3.01E+01	2.00E-01	0.66%	6.6.E-03	*修正トンプソン- 法により確認した結果、外れ値ではない。 工学的判断により採用せず
2月5日 ? 2月12日	4.94E+01	5.09E+01	-1.50E+00			
2月12日 ? 2月19日	1.09E+02	8.76E+01	2.14E+01	19.63%	2.4.E-01	
2月19日 ? 2月26日	1.27E+02	8.76E+01	3.94E+01	31.02%	4.5.E-01	
2月26日 ? 3月5日	8.39E+01	6.21E+01	2.18E+01	25.98%	3.5.E-01	
3月5日 ? 3月12日	1.45E+02	1.02E+02	4.30E+01	29.66%	4.2.E-01	
3月12日 ? 3月19日	1.16E+02	1.06E+02	1.00E+01	8.62%	9.4.E-02	
3月19日 ? 3月26日	1.25E+02	1.15E+02	1.00E+01	8.00%	8.7.E-02	
3月26日 ? 4月2日	7.54E+01	7.15E+01	3.90E+00	5.17%	5.5.E-02	
	平均値 =			16.09%	0.21	
	標準偏差			11.93%		

処理した燃料の原子炉名称	燃焼度 (MWD / t)	集合体数 (体)	燃料重量 (MTU)
東北女川1号機 (B)	13.041?27.829 (A v 18.784)	14	2.5
東京福島第一・4号機 (B)	23.713?29.169 (A v 25.726)	34	6.1
原電東海第二 (B)	22.861?29.397 (A v 27.951)	36	6.3
東京福島第一・1号機 (B)	20.301?29.649 (A v 26.622)	19	3.3

表5 排気中トリチウムの化学形 (2001年度 01 2キャンペーン)

	放出量					備考
	酸化炉あり[]	酸化炉なし[]	-	割合	比	
サプ・リソク 期間	HTO+HT [GBq]	HTO [GBq]	HT [GBq]	HT / HT+HTO	HT/HTO	
10月10日 ? 10月17日	9.94E+01	5.60E+01	4.34E+01	43.66%	7.8.E-01	
10月17日 ? 10月24日	1.33E+02	9.08E+01	4.22E+01	31.73%	4.6.E-01	
10月24日 ? 10月31日	1.51E+02	1.16E+02	3.50E+01	23.18%	3.0.E-01	
10月31日 ? 11月7日	1.47E+02	1.23E+02	2.40E+01	16.33%	2.0.E-01	
11月7日 ? 11月14日	7.55E+01	8.45E+01	-9.00E+00			工学的判断により採用せず
11月14日 ? 11月21日	9.36E+01	6.68E+01	2.68E+01	28.63%	4.0.E-01	
11月21日 ? 11月28日	1.06E+02	7.31E+01	3.29E+01	31.04%	4.5.E-01	
11月28日 ? 12月5日	5.46E+01	8.36E+01	-2.90E+01			工学的判断により採用せず
12月5日 ? 12月12日	3.34E+01	4.03E+01	-6.90E+00			工学的判断により採用せず
	平均値 =			29.09%	0.43	
	標準偏差			9.18%		

処理した燃料の原子炉名称	燃焼度 (MWD / t)	集合体数 (体)	燃料重量 (MTU)
関西美浜2号機 (P)	25,212?30,071 (AV28,018)	4	1.58
サイクル機構ふげん発電所 (A)	14,518?19.159 (AV16,958)	32	4.91
伊方1号機 (P)	22,837?29,930 (AV27,981)	14	5.6

表6 排気筒から放出されるトリチウムの化学形別割合

	サイクル機構東海	米国 NFS 社	米国 AGNS 社*	Hanford
燃焼度	10,000 28,000 MWD/ MTU	20,000MWD/MTU	40,000MWD/MTU	—
水分(HTO)	71 84%	74%	94.7%	75%
水素ガス(HT)	16 29%	26%	5.3%	25%

* : AGNS 社の場合は他と再処理工程が異なる。

表7 ORIGIN 計算値との比較 (00 - 1A キャンペーン)

キャンペーン期間 : H12.06.29 ~ H12.08.01

処理燃料				
原子炉名称	炉型	燃焼度 (MWD / MTU)	集合体数(体) (バッジNo.)	重量 (MTU)
原電東海第2	BWR	22597 ~ 30549 Ave. 28037	32 (443 ~ 458)	5.7

サンプリング期間	非気筒放出量 (GBq)	工程状況	毎洋放出量 (GBq)
06月28日 ~ #####	3.65E+01	TK2-443(1)せん断 ~ TK2-447溶解中	3.2E+01
07月05日 ~ #####	7.14E+01	TK2-447溶解中 ~ TK2-452溶解終了	4.0E+02
07月12日 ~ #####	8.43E+01	TK2-453(1)せん断 ~ TK2-458溶解終了	1.5E+03
07月19日 ~ #####	8.90E+01		3.4E+03
07月26日 ~ #####	4.83E+01		1.6E+03
08月2日 ~ #####	1.02E+02		5.3E+03

排気			廃水	
燃料中のトリウム (ORIGIN計算値) (GBq)	実測放出量 (GBq)	ORIGIN値 に対する (%)	実測海洋放出量 (GBq)	ORIGIN値 に対する (%)
5.22E+04	4.32E+02	0.8	1.2E+04	23.5

表8 ORIGEN 計算値との比較(00-2キャンペーン)

キャンペーン期間: H12.11.20~H12.12.18

処理燃料				
原子炉名称	炉型	燃焼度 (MWD / MTU)	集合体数(体) (バッジNo.)	重量 (MTU)
ふげん発電所	ATR	14107 ~ 19004 Ave. 16962	18 (171~179)	5.2

サンプリング期間	非気筒放出量 (GBq)	工程状況	毎洋放出量 (GBq)
11月15日 ~ #####	1.42E+01	JCO臨界事故に伴うウラン溶液の処理運搬	0.0E+00
11月22日 ~ #####	1.24E+01	ATR-171(1)せん断 ~ TR-173(2)せん断終了	1.5E+00
11月29日 ~ #####	2.82E+01	ATR-173溶解 ~ ATR-179溶解中	9.1E+01
12月06日 ~ #####	4.11E+01	ATR-179溶解中 ~ ATR-179溶解終了	3.2E+02
12月13日 ~ #####	2.56E+01		3.6E+03
12月20日 ~ #####	1.50E+01		7.7E+02

排気

燃料中のトリウム (ORIGEN計算値) (GBq)	実測放出量 (GBq)	ORIGEN値 に対する (%)
1.57E+04	1.37E+02	0.9

廃水

実測海洋放出量 (GBq)	ORIGEN値 に対する (%)
4.8E+03	30.7

表9 ORIGEN 計算値との比較 (01 - 1 キャンペーン)

期間 : H13.03.08 ~ H13.06.26

処理燃料				
原子炉名称	炉型	燃焼度 (MWD / MTU)	集合体数(体) (バッジNo.)	重量 (MTU)
東京福島第一・3号機	BWR	#### ~ 27361 Ave. 26131	34 (057 ~ 073)	5.9
関西美浜2号機	PWR	#### ~ 18670 Ave. 18314	6 (115 ~ 120)	2.4
九州玄海1号機	PWR	#### ~ 30543 Ave. 27821	11 (162 ~ 172)	4.4
九州玄海2号機	PWR	#### ~ 30403 Ave. 27986	14 (001 ~ 014)	5.6
四国伊方2号機	PWR	#### ~ 30587 Ave. 27818	14 (029 ~ 042)	5.6

サンプリング期間	排気筒放出量 (GBq)	工程状況	毎洋放出量 (GBq)
03月07日 ~ #####	2.23E+01	FU3-057(1)せん断 ~ FU3-060溶解中	5.2E+01
03月14日 ~ #####	5.46E+01	FU3-061(1)せん断 ~ FU3-066(2)せん断	6.5E+01
03月21日 ~ #####	7.61E+01	FU3-066溶解開始 ~ FU3-071溶解開始	7.1E+02
03月28日 ~ #####	7.31E+01	FU3-071溶解中 ~ FU3-073溶解終了	1.4E+03
04月04日 ~ #####	7.12E+01	M12-115せん断 ~ M12-117せん断	3.2E+03
04月11日 ~ #####	6.52E+01	M12-117溶解開始 ~ GE1-163溶解終了	7.1E+03
04月18日 ~ #####	9.52E+01	GE1-164せん断 ~ GE1-169溶解開始	7.6E+03
04月25日 ~ #####	1.33E+02	GE1-169溶解中 ~ GE1-172溶解終了	3.0E+03
05月02日 ~ #####	1.20E+02	GE2-001せん断 ~ GE2-003せん断	1.4E+03
05月09日 ~ #####	1.33E+02	GE2-003溶解 ~ GE2-008溶解	9.2E+02
05月16日 ~ #####	1.59E+02	GE2-009せん断 ~ IK2-029溶解開始	1.6E+04
05月23日 ~ #####	1.49E+02	IK2-029溶解中 ~ IK2-035溶解中	1.2E+04
05月30日 ~ #####	1.47E+02	IK2-035溶解中 ~ IK2-037溶解	6.3E+03
06月06日 ~ #####	1.14E+02	IK2-038せん断 ~ IK2-040溶解開始	3.2E+03
06月13日 ~ #####	1.29E+02	IK2-041せん断 ~ IK2-042溶解	1.1E+04
06月20日 ~ #####	6.05E+01	~	8.3E+03
06月27日 ~ #####	1.30E+02	~	4.2E+03
07月01日 ~ #####	~	~	3.1E+03

排気			廃水	
燃料中のトリウム (ORIGEN計算値) (GBq)	実測放出量 (GBq)	ORIGEN値 に対する (%)	実測海洋放出量 (GBq)	ORIGEN値 に対する (%)
2.07E+05	1.73E+03	0.8	8.9E+04	43.0

表 10 モニタリングデータと ORIGIN 計算値との比較

Camp.	処理燃料	平均燃焼度 [MWD/t]	ORIGIN 計算値 [GBq]	排気中 H-3 量 [GBq]	origin 計算 値に対する割 合(排気)	排水中 H-3 量 [GBq]	origin 計算 値に対する割 合(廃水)
00-1A	BWR	28,037	5.22E+04	4.32E+02	0.8%	1.2E+04	23.5%
00-2	ATR	16,962	1.57E+04	1.37E+02	0.9%	4.8E+03	30.7%
01-1	PWR(75w%)	25,485	2.07E+05	1.73E+03	0.8%	8.9E+04	43.0%
	BWR(25w%)	26,131					

(付 録)

外れ値の取扱いについて

(概 説)

「あらゆる計測システムは、疑わしいデータ点を生み出す可能性がある。このような測定値の発生は、一時的なあるいは間欠的な計測系の誤動作によって引き起こされ得る。この種の誤差を計測の不確かさの一部に含めてはならない。そのような測定値は、定常な試験のデータとしては無意味なものであり、排除すべきである。(中略)

すべての測定値は、それが疑わしいものかどうか計測過程を通じて継続的に検討する必要がある。判断基準として、計測機器、熱力学的法則、速度分布、過去の類似の計測結果などの工学的検討に基づいたものが用いられるべきである。膨大な数のデータを走査する負担を軽減するために、定常状態の測定値を走査し外れ値と疑われるものを知らせるコンピュータプログラムも使われている。これによって、指摘された測定値が外れ値かどうかさらに工学的判断にゆだねられることとなる。外れ値は計測系の偶然誤差を大きくする効果を持つ。あるデータ点が外れ値かどうかを決定する解析手法が知られている。」

(修正トンプソン- 法)

N 個の測定値 X_i からなる試料を考える。この N 個の測定値について精密度(標準偏差) S と平均値 \bar{X} を計算する。j 番目の測定値 X_j が外れ値と疑われるものとする。ここで、 X_j と平均値 \bar{X} の差の絶対値は

$$= |X_j - \bar{X}|$$

となる。

表-付 1 を用いて、試料の大きさ N に対する 5% 有意水準での t 値が求められる。これにより正常な測定値を排除する確率は 5% に制限される。(外れ値を排除しない確率は一定ではなく、試料の大きさに依存する。)

外れ値の判定は差 t と積 S を比較することによって行われる。

$t > S$ の場合：外れ値である。

$t < S$ の場合：外れ値ではない。

外れ値は 1 回に 1 つずつ排除され、外れ値が認められなくなるまで外れ値の判定が繰り返される。つまり、一つの外れ値が排除される度に、数が減った試料に対して新たに \bar{X} と S が計算される。

(以上 文献 4) より抜粋。ただし、文献 4) では用語として「異常値」が用いられているが、2.4 章で述べた通り、付録においても「異常値」を「外れ値」に置き換えて記載した。)

表-付1 修正トンプソン-法の値(5%有意水準)

試料の大きさ		試料の大きさ	
N		N	
3	1.150	22	1.893
4	1.393	23	1.896
5	1.572	24	1.899
6	1.656	25	1.902
7	1.711	26	1.904
8	1.749	27	1.906
9	1.777	28	1.908
10	1.798	29	1.910
11	1.815	30	1.911
12	1.829	31	1.913
13	1.840	32	1.914
14	1.849	33	1.916
15	1.858	34	1.917
16	1.865	35	1.919
17	1.871	36	1.920
18	1.876	37	1.921
19	1.881	38	1.922
20	1.885	39	1.923
21	1.889	40	1.924

以下，外れ値の判定結果

94-1 (表1) のデータ

疑わしい数値試料の大きさ	平均値	差	-ンブソン	精密度	積	判定	
N	\bar{X}			(標準偏差)	S		
59.26	13	30.14	29.12	1.840	12.63	23.24	外れ値
43.98	12	27.72	16.26	1.829	9.52	17.41	外れ値ではない
12.39	12	27.72	15.33	1.829	9.52	17.41	外れ値ではない

95-1 (表2) のデータ

疑わしい数値試料の大きさ	平均値	差	-ンブソン	精密度	積	判定	
N	\bar{X}			(標準偏差)	S		
0.42	17	19.66	19.24	1.871	14.53	27.19	外れ値ではない
42.13	17	19.66	22.47	1.871	14.53	27.19	外れ値ではない

96-1 (表3) のデータ

疑わしい数値試料の大きさ	平均値	差	-ンブソン	精密度	積	判定	
N	\bar{X}			(標準偏差)	S		
7.27	10	23.86	16.59	1.798	10.53	18.93	外れ値ではない

97-1 (表4) のデータ

疑わしい数値試料の大きさ	平均値	差	-ンブソン	精密度	積	判定	
N	\bar{X}			(標準偏差)	S		
0.66	8	16.09	15.43	1.749	11.93	20.87	外れ値ではない

01-2 (表5) のデータ

疑わしい数値試料の大きさ	平均値	差	-ンブソン	精密度	積	判定	
N	\bar{X}			(標準偏差)	S		
43.66	6	29.09	14.57	1.656	9.18	15.20	外れ値ではない
16.33	6	29.09	12.76	1.656	9.18	15.20	外れ値ではない