東海再処理施設における 排気中トリチウム,炭素14および 放射性ヨウ素の捕集方法と捕集効率 (技術報告)

2004年7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
 電話:029-282-1122 (代表)
 ファックス:029-282-7980
 電子メール:jserv@jnc.go.jp

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) 2004

東海再処理施設における排気中トリチウム,

炭素14および放射性ヨウ素の捕集方法と捕集効率

(技術報告)

小嵐 淳*, 小沢 友康**, 横田 友和**, 井坂 圭輔**, 秋山 聖光*, 浅野 智宏*

要 旨

東海再処理施設では、排気筒から排出する放射性気体廃棄物中のトリチウム、炭素 14 および放射性ヨウ素を各種捕集方法によって捕集し、その後の放射能測定によって 濃度および放出量を評価している。本報告では、気体廃棄物中に含まれるこれらの放 射性核種の(1)捕集方法、(2)放出評価法、および(3)各捕集方法の捕集効率を評価する ために行われた試験について記述する。試験の結果は、東海再処理施設で実施してい る捕集方法は、トリチウムおよび放射性ヨウ素については 90%以上、炭素 14 につい てはほぼ 100%の捕集効率を有していることを示した。さらに、放射性核種の捕集技 術に係わる各種検討を行い、より信頼性の高いモニタリング手法を開発・確立するた めに必要な技術的要件を提言する。

- * 放射線安全部 放射線管理第二課
- ** 検査開発株式会社

JNC TN8410 2004-003 July, 2004

Methods and their performances for collecting tritium, carbon-14 and radioiodine in airborne effluent from Tokai reprocessing plant

(Technical Document)

Jun KOARASHI*, Tomoyasu KOZAWA**, Tomokazu YOKOTA**, Keisuke ISAKA**, Kiyomitsu AKIYAMA* and Tomohiro ASANO*

ABSTRACT

Radioactive airborne effluent discharged from the stacks of Tokai reprocessing plant (TRP) contains tritium, carbon-14 and radioiodine. These radionuclides are collected with appropriate methods, respectively, in stacks to monitor their concentrations and discharged amounts. This report describes (1) the methods for collecting these radionuclides in TRP; (2) evaluations of the concentrations and discharged amounts; and (3) investigations on estimating performances of the collecting methods. The investigations showed that the collecting methods used in TRP have collecting efficiencies of more than 90% for tritium and radioiodine, and almost 100% for carbon-14. Considerations concerning collection of radionuclides in airborne effluent, made in this study, provided some technical aspects required for establishing more reliable monitoring systems.

** Inspection Development Co. Ltd

^{*} Reprocessing Radiation Control Section, Radiation Protection Division

目 次

1.	緒言1
2.	トリチウムの捕集方法と捕集効率2
	2.1. トリチウムの捕集方法
	2.2. 放射能測定および放出量評価法
	2.3. トリチウムサンプラーの水分捕集効率の評価
	2.3.1. はじめに
	2.3.2. 試験方法
	2.3.3. 試験結果
	2.3.4. 考察
	2.4. トリチウムの捕集に係わるその他の留意点
3.	炭素 14 の捕集方法と捕集効率
	3.1. 炭素 14 の捕集方法
	3.2. 放射能測定および放出量評価法
	3.3. カーボンサンプラーの炭素 14 捕集効率の評価
	3.3.1. はじめに
	3.3.2. 試験方法
	3.3.3. 試験結果と CO ₂ 捕集効率の評価
	3.3.4. カーボンサンプリングに必要な CO ₂ 捕集剤量の概算
	3.4. CO ₂ 吸収剤への水分の混入が炭素 14 放出評価に及ぼす影響12
	3.4.1. はじめに
	3.4.2. 実験方法
	3.4.3. 実験結果と考察
	3.5. 炭素 14 の捕集に係わるその他の留意点16
4.	放射性ヨウ素の捕集方法と捕集効率18
	4.1. 放射性ヨウ素の捕集方法
	4.2. 放射能測定および放出量評価法
	4.2.1. 放射能測定
	4.2.2. 捕集材における捕集放射能の見積もり
	4.2.3. 平均濃度および放出量評価

	4.3.	活性炭カートリッジに捕集されたヨウ素の放射能定量法2	1
		4.3.1. はじめに	
		4.3.2. 実験方法	
		4.3.3. 実験結果と考察	
	4.4.	ヨウ素捕集材のヨウ素捕集効率の評価	2
		4.4.1. はじめに	
		4.4.2. 試験方法	
		4.4.3. 試験結果と各捕集材における捕集効率の評価	
	4.5.	ヨウ素の捕集に係わるその他の留意点2	5
5.	結言	Ĵ2	6
謝辞	£		7
参考	文献	犬	8

1. 緒言

使用済燃料の再処理に伴って発生する放射性気体廃棄物には、クリプトン(⁸⁵Kr)、ト リチウム(³H)、炭素 14 (¹⁴C) およびヨウ素 129 (¹²⁹I) 等の放射性核種が含まれている。 これらの核種は、その長い半減期(それぞれ 10.8 年、12.3 年、5730 年および 1.57×10⁷ 年)と環境中における高い移動性のために、局地的・地域的のみならず全地球的な線量 の増加をもたらし得る重要な核種である⁽¹⁾。

東海再処理施設では、公衆および環境への影響を適切に評価して常に安全を確保する ために、さらには施設・設備の健全性を確認しその運転を管理するために、1977年9月 のホット試験開始以来、排気筒から大気中へ放出される気体廃棄物中の⁸⁵Kr、³H、¹⁴C および¹²⁹Iのモニタリングを実施してきている(ただし、¹⁴Cのモニタリングについては 1991年10月からである)⁽²⁻⁴⁾。気体廃棄物のモニタリングおいては、その放射能レベル および物理的・化学的特性が大きく異なるこれらの対象核種について、濃度・放出量を 個別に評価することが求められる。また、施設特有の空気組成や化学物質含有量をもつ 気体廃棄物に対して、長期間にわたって安全かつ的確にモニタリングを行っていく必要 がある。東海再処理施設では、これらのことを考慮して、気体廃棄物のモニタリングに 係わる各種検討および技術の開発・改良を継続的に行っている⁽⁵⁾。

上述した気体廃棄物中に存在する主要4核種のうち,⁸⁵Krを除く3核種(³H,¹⁴C,¹²⁹I) については、1週間のバッチサンプリングによる捕集およびその後の放射能測定に基づ いて濃度および放出量を評価している。本報告では、信頼性のある排気モニタリング手 法を確立するにあたって求められる各種技術的要件のうち、特に東海再処理施設で実施 している気体廃棄物中³H,¹⁴C,¹²⁹Iのバッチサンプリングにおける捕集方法とその捕集 効率に関する検討および調査結果についてまとめる。

2. トリチウムの捕集方法と捕集効率

2.1. トリチウムの捕集方法

空気中のトリチウム(³H)の放射能を測定する方法として,電離箱や比例計数管を用 いた測定法があり,これらの方法では気体試料に対して直接トリチウム放射能を連続的 に測定できるという利点がある。しかしながら,検出限界濃度が比較的高いために,検 出限界濃度と測定すべき濃度の関係を考慮に入れた上で適用の可否を判断する必要があ り,要求される濃度レベルを満足に測定することが困難である場合が多い。そこで東海 再処理施設では,トリチウムサンプラーを用いて気体廃棄物中に含まれるトリチウムを 水として捕集・回収し,1週間ごとに回収した水のトリチウム放射能を定量するという 間接的な測定法を採用している。空気中のトリチウムを水として捕集・回収する方法と しては,シリカゲルやモレキュラーシーブなどの固体の水分吸着剤を用いる方法やコー ルドトラップなどによって水分を凝縮する方法がある。前者は水分捕集能力が優れてお り,周辺環境の温度や湿度の影響を受けにくいという利点があるが,吸着した水分の脱 着・回収に手間と時間を要するという欠点がある。一方,後者はその原理上,凝縮した 水分の回収が容易であることから,定常的なモニタリングに適しており,東海再処理施 設における気体廃棄物中のトリチウムの捕集についても,冷却凝縮に基づいた方法を用 いている。

図 2.1 に東海再処理施設で用いているトリチウムサンプラーのサンプリングフローダ イアグラムを示す。排気筒内の空気の一部を一定流量(2.0 1 min⁻¹)で分取して水分捕 集部に導入し,サンプリングされた空気中に含まれる水蒸気状トリチウムをおおよそ 1.2 kg cm⁻²の加圧下(約 2.2 atm に相当)で-32 ℃に冷却凝縮することによって捕集してい る。バッチサンプリング期間である 1 週間ごとに,水分捕集部内で凝結した水分を過熱 溶解して水試料の回収を行っている。

2.2. 放射能測定および放出量評価法

冷却凝縮によって回収した水分の一部を液体シンチレータと混合することによって測 定用試料の調製を行い,液体シンチレーション測定によって回収水のトリチウム放射能 を定量している。液体シンチレーション測定法は環境試料水中のトリチウム濃度測定に も利用されており、この方法に基づく気体廃棄物中のトリチウムの放射能測定では、上 述した電離箱や比例計数管を用いた方法と異なり連続的な測定を行うことはできないも のの、十分に低い検出限界を得ることができる。気体廃棄物中のトリチウム濃度は、サ ンプリングおよび測定に係わる各種条件を用いて以下の式によって算出される。

$$C = A \cdot \rho \cdot \frac{H}{100}$$
(2-1)

ここで, C [Bq cm⁻³-air]は気体廃棄物中のトリチウム濃度, A [Bq ml⁻¹-water]は回収水のト リチウム濃度, ρ [ml-water/cm³-air]はサンプリング期間平均の気体廃棄物の飽和水蒸気密 度, H [%]は気体廃棄物のサンプリング期間平均の相対湿度である。

対象期間に排気筒から放出されるトリチウム量Q[Bq]は,

$$Q = C \cdot V \tag{2-2}$$

によって評価され, V [cm³]は対象期間中に排気筒から放出された気体廃棄物の総排気量である。

2.3. トリチウムサンプラーの水分捕集効率の評価

2.3.1. はじめに

上述したトリチウム放出評価法においては,式(2-1),(2-2)からわかるように,トリチ ウムサンプラーにおける水分捕集効率はトリチウムの放出評価には直接影響を及ぼさな い。しかしながら,トリチウムの放出管理は1週間のバッチサンプリングに基づいてお り,かつサンプリング期間中で排気筒から放出される気体廃棄物中のトリチウム濃度が 大きく変動する場合があることから,サンプリング試料の代表性を担保する意味で安定 して高い水分捕集効率を有することが望ましいと考えられる。そこで,以下に示すトリ チウムサンプラーの水分捕集効率を評価するための試験を実施した。

2.3.2. 試験方法

トリチウムサンプラーの後段に水分捕集カラム(モレキュラーシーブ 4A*を 400 g 充

^{*} 有効分子径が 0.4 nm 未満の分子を吸着することのできる多孔質吸着剤で、水に対しては重量比で約 20% まで吸着することができる。モレキュラーシーブ 4A を 400-500 ℃ に加熱し、窒素で追い出すか、あるい は真空吸引を数時間行うことにより、吸着された水を脱着することができる。脱着を行うことにより繰り 返し使用することが可能であるが、比放射能の高いトリチウムを扱う場合にはメモリー効果(残存水分の 影響)が問題となることがある。

填したカラム)を設置し,排気筒からサンプリングされた空気がトリチウムサンプラー を通過することによって水分が除去された後,トリチウムサンプラーで除去できなかっ た水分を水分捕集カラムで捕集する構成とした。試験におけるサンプリング流量および サンプリング期間はそれぞれ 2.0 1 min⁻¹, 1 週間とし,実際の定常的なモニタリング条 件と同一のものとした。本試験で用いた水分捕集カラムの水分捕集効率については,流 量 1.0 1 min⁻¹で 80 時間,約 80 g(カラムに使用したモレキュラーシーブ 4A の重量比 20% に相当)の水分を含む空気を流した場合でもほぼ 100%であることが事前に確認されて いる。今回実施した試験におけるサンプリング流量は 2.0 1 min⁻¹であるが,水分捕集カ ラムに流れ込む空気はトリチウムサンプラー通過後の湿度が十分低い空気であると考え られ,本試験のサンプリング条件に対してもほぼ 100%の捕集効率が得られるとみなし た。1 週間のサンプリング後,トリチウムサンプラーによって凝縮回収された水の量お よび水分捕集カラムによって捕集された水の量を定量し,以下の式によってトリチウム サンプラーの水分捕集効率η_w[%]を求めた。

$$\eta_{\rm W} = \frac{W_{\rm s}}{W_{\rm s} + W_{\rm c}} \times 100 \tag{2-3}$$

ここで、W_s[g]はトリチウムサンプラーで凝縮捕集された水分量、W_c[g]は水分捕集カラ ムで捕集された水分量である。

2.3.3. 試験結果

上記の方法により2回の試験を実施した。1回目の試験では、トリチウムサンプラー および水分捕集カラムで捕集された水分量はそれぞれ183.5g,10.6gであり、2回目の 試験ではそれぞれ155.0g,5.4gであった。これらの結果および式(2-3)から、トリチウ ムサンプラーの捕集効率はそれぞれ94.5%および96.6%と見積もられた。これらの水分 捕集効率は、サンプリング空気中の水分のほとんどすべてをトリチウムサンプラーで捕 集できていることを示しており、トリチウムサンプラーによって回収された水分はサン プリング空気中の水分の代表性を十分に反映している。それゆえに、本トリチウムサン プラーから回収された水試料を用いて気体廃棄物中の水蒸気状トリチウム濃度を評価す ることは妥当であるといえる。

2.3.4. 考察

トリチウムサンプラーの水分捕集効率について, 簡単な理論的考察を行う。一般に,

- 4 -

空気中の水蒸気の混合比*は

$$R = 0.622 \times \frac{e_s(T) \cdot H \times 10^{-2}}{P - e_s(T) \cdot H \times 10^{-2}}$$
(2-4)

によって表され, R [kg kg⁻¹]は気体中にある水蒸気と水蒸気以外の気体との質量の比, e_s (T) [Pa]は温度 T [℃]における水の飽和水蒸気圧, P [Pa]は気体の圧力, H [%]は相対湿度 である⁽⁶⁾。

トリチウムサンプラーでは、サンプリング空気を加圧・冷却することによって、それ に含まれる水分を凝縮捕集している。温度 T_{in} [°C],相対湿度 H_{in} [%]の空気が圧力 P_{in} [Pa] でトリチウムサンプラーへ流入し、トリチウムサンプラーの水分捕集部において圧力 P_{sam} [Pa],温度 T_{sam} [°C]での加圧・冷却条件の下でサンプリング空気中の水蒸気が凝縮捕 集される状況について考える。トリチウムサンプラーに流入する空気の水蒸気混合比 R_{in} [kg kg⁻¹]は、式(2-4)に基づいて、

$$R_{in} = 0.622 \times \frac{e_s(T_{in}) \cdot H_{in} \times 10^{-2}}{P_{in} - e_s(T_{in}) \cdot H_{in} \times 10^{-2}}$$
(2-5)

と表される。一方、トリチウムサンプラーの水分捕集部においては、加圧、冷却によってサンプリング空気中に存在しうる水蒸気量は変化し、その水蒸気混合比 R_{sam}は同様に式(2-4)より、

$$R_{sam} = 0.622 \times \frac{e_{s}(T_{sam}) \cdot H_{sam} \times 10^{-2}}{P_{sam} - e_{s}(T_{sam}) \cdot H_{sam} \times 10^{-2}}$$
(2-6)

と表される。ここで、トリチウムサンプラー内で生じている空気流の水分捕集効率への 影響を無視できる(サンプリング空気は水分捕集部において完全に冷却される)とすれ ば、トリチウムサンプラーの水分捕集効率 η_{ett} (%)は

$$\eta_{\rm cal} = \frac{R_{\rm in} - R_{\rm sam}}{R_{\rm in}} \times 100 \tag{2-7}$$

によって見積もられる。

(1) 流入空気の温度および相対湿度と水分捕集効率の関係

平成14年度に実際に再処理施設主排気筒で観測されたデータによれば、サンプリング

^{*} 空気中の水蒸気の質量を表す際に,気体の単位体積あたりに含まれる水蒸気の質量を表す絶対湿度[g m⁻³]がしばしば用いられる。しかしながら,絶対湿度は気体の温度や圧力に依存して変化してしまう。空気 中の乾燥空気と水蒸気の割合が気体の温度や圧力の変化に対して変わらない表示法として,水蒸気の混合 比[kg kg⁻¹]を用いることがある。

空気の1週間平均温度および相対湿度の変動範囲はそれぞれ21-41℃,17-41%であった。

例えば、トリチウムサンプラーに流入する空気の温度、相対湿度および気圧がそれぞ れ 20°C(飽和水蒸気圧 2338.1 Pa), 20%, 1.0 atm (101325 Pa に相当) であるとすれば、 その空気の水蒸気混合比 R_{in}は式(2-5)から 2.88×10⁻³ kg kg⁻¹と算出される。サンプリング 空気は、その後トリチウムサンプラーの水分捕集部において 2.2 atm, -32 ℃(飽和水蒸 気圧 41.96 Pa) に加圧・冷却される。トリチウムサンプラーの水分捕集部におけるサン プリング空気中の水蒸気混合比 R_{sam}は,式(2-6)より 1.17×10⁻⁴ kg kg⁻¹と概算される(た だし、トリチウムサンプラーの水分捕集部における空気の相対湿度を100%としている)。 以上より、このサンプリング条件下におけるトリチウムサンプラーの水分捕集効率は 95.9%と評価される。各種温度・相対湿度をもつサンプリング空気に対して同様に算出 した水分捕集効率を図 2.2 にまとめて示す。この結果から、東海再処理施設で使用して いるトリチウムサンプラーおいては、流入空気の温度および相対湿度が 20 ℃ 以上かつ 10%以上であれば、90%以上の水分捕集効率を得ることができることがおおよそ見積も られ、この温度および相対湿度の範囲は、平成14年度に観測された温度および相対湿度 の範囲を満足している。ただし、この計算において流入空気の温度や相対湿度が低いと きに水分捕集効率が低く見積もられているのは、トリチウムサンプラーの水分捕集部に おける空気の相対湿度を常に 100%と仮定しているためであると考えられ、実際にはよ り高い捕集効率が得られることを期待できる。

(2) 水分捕集部の冷却温度および圧力と水分捕集効率の関係

同様に、トリチウムサンプラーの水分捕集部におけるサンプリング空気の冷却温度と 圧力をパラメーターとして、温度および相対湿度がそれぞれ 20 ℃、20%のサンプリング 空気に対する水分捕集効率の算出を行った。その結果を図 2.3 に示す。冷却温度が-30 ℃ のとき、水分捕集部におけるサンプリング圧力が大気圧レベルでは捕集効率は 90%を下 回るが、圧力が少なくとも 1.5 atm 以上であれば 90%以上の捕集効率が得られる。一方、 サンプリング圧力が 2.0 atm 以上であれば、水分捕集部における空気の冷却温度が-25 ℃ でも十分な捕集効率が得られると予想される。 2.4. トリチウムの捕集に係わるその他の留意点

これまで述べてきたように、式(2-1)および(2-2)に示す方法によってトリチウムの放出 評価を行う場合には、水分捕集効率はトリチウムの放出評価において直接的に影響を及 ぼすパラメーターではない。それに対して、サンプリング空気の温度および相対湿度は、 その空気中に存在している水分量を求めるために必要となることから、サンプリング時 において空気の温度および相対湿度を正確に測定することが重要になる。そのため、ト リチウムサンプラーには、十分な測定精度をもった温度・湿度測定機器を備えておくべ きであり、定期的に点検・校正されるべきである。

また、サンプリングライン内で空気のリークが生じた場合には、設定流量に対してあ る割合で、排気筒内空気以外の空気(排気筒外空気)をサンプリングしてしまうことに なる。排気筒外空気は、例えばサンプラーが設置されている部屋の空気であり、それに 含まれる水のトリチウム濃度[Bq g⁻¹-water]は排気筒内空気と比較して極めて低い。その ため、リークによる排気筒外空気のトリチウムサンプラーへの流入は、その混入割合に 応じて、水分捕集部に捕集される水のトリチウム濃度[Bg g⁻¹-water]の希釈を引き起こす ことになり、結果としてトリチウムの放出評価に影響を及ぼすことになる。このような ことから、サンプリングラインにおけるリーク事象について細心の注意を払う必要があ り、トリチウムサンプラーにリークの有無を常時確認できる機構を設けておくことが望 ましい。例えば、流量計をサンプラーの空気流入口および流出口の両方に設置すること により、リークの有無を確認できるだけでなく、リークが生じた場合においてもリーク によるトリチウム放出評価への影響を計算により補正できるようになる。さらには、サ ンプリングラインにおける継手や接続部分を可能な限りなくし、サンプラーの構造をシ ンプルにすることも有効なリーク防止対策となりうる。既存のサンプリング装置の改良 や今後のサンプリング装置の開発に当たっては、これらのことを十分に考慮すべきであ る。

3. 炭素 14 の捕集方法と捕集効率

3.1. 炭素 14 の捕集方法

東海再処理施設では、排気筒からの炭素 14 (¹⁴C)の放出を監視・管理するために、 カーボンサンプラーを用いた気体廃棄物中¹⁴Cの捕集を行っている。図 3.1 にカーボン サンプラーのフローダイアグラムを示す。カーボンサンプラーでは、排気筒内の空気の 一部を流量 0.4 1 min⁻¹でサンプリングし, 500 ℃ に加熱した酸化炉(白金アルミナ触媒) を通すことによってすべての化学形の¹⁴Cを CO₂の化学形に酸化し,冷却トラップ装置 によって空気中の水分を除湿した後、CO,を吸収する有機溶剤であるモノエタノールア ミン^{*}(以下,「MEA」と記す)200 ml にバブリングすることによって¹⁴C を捕集してい る。カーボンサンプラーを用いた¹⁴C 捕集もトリチウムの捕集と同様に1週間のバッチ サンプリングによって実施しており、1週間ごとに MEA 試料の交換を行っている。空気 中の炭素を捕集する方法としては、モレキュラーシーブなどの固体状吸着材を使用する 方法、アルカリ溶液にバブリングすることによって捕集する方法などがある。前者につ いては, 例えばモレキュラーシーブ 4A を用いた場合, その CO, 捕集能力は極めて高く, 充填するカラムの形状次第ではサンプリング流量が 10 1 min⁻¹程度の比較的高流量でも ほとんどすべての CO₂を捕集できるが, 捕集した CO₂を回収する際に加熱脱着処理を行 い,その後発生した CO₂を使用して¹⁴C 測定用の試料調製を行う必要がある⁽⁷⁾。また後 者のアルカリ溶液によって CO₂を捕集する場合でも、例えば、サンプリング終了後に炭 素を吸収した水酸化ナトリウム(NaOH)溶液に塩化カルシウム(CaCl₂)溶液を加えて 炭酸カルシウム(CaCO₃)沈殿を生成し、ろ過後にリン酸(H₃PO₄)を加えて再度 CO₂ を発生させる必要がある⁽⁸⁾。このようにいずれの方法においても¹⁴Cの捕集から放射能 測定に至るまでの各種前処理に手間と時間を要する。

そこで、東海再処理施設では、MEA を用いて¹⁴C を捕集する方法を採用している。本 手法の大きな特徴は、バブリングによって CO₂を捕集した MEA を直接液体シンチレー タと混合する(ただし、メタノール等の溶解補助剤が必要である)ことによって、特別 な前処理を行うことなく¹⁴C 放射能測定用の試料を調製できるということである。この

^{*} 別名は 2-アミノエタノールであり, 化学式は H₂NCH₂CH₂OH である。水およびアルコールに完溶なやや アンモニア臭のある無色透明の液体であり, 沸点は 171 ℃, 融点は 10.5 ℃, 比重は 1.0174 (20 ℃/20 ℃) である。

ように MEA を用いた方法はサンプリング後の試料調製を容易かつ迅速に行うことがで き,かつ専門的な技術を必要としないことから,定常的なモニタリングに適した方法で あるといえる。また,炭素 14 の液体シンチレーション測定を容易に行うことを目的とし て,専用の CO₂捕集剤(Carbo-Sorb E)および液体シンチレータ(Perma-Fluor E⁺)が Packard 社から市販されているが, MEA を用いた方法がコスト的に有利である。

3.2. 放射能測定および放出量評価法

1週間の排気サンプリング後, CO₂の化学形で¹⁴Cを捕集した MEA を液体シンチレー タおよび溶解補助剤としてのメタノールと混合することによって測定用試料の調製を行 い, 調製試料の¹⁴C 放射能を液体シンチレーション測定によって定量している。サンプ リング期間中の気体廃棄物中の¹⁴C 平均濃度 C [Bq cm⁻³-air]は,

 $C = A \cdot M \cdot \frac{100}{E} \cdot \frac{1}{U} \cdot \frac{1}{F}$ (3-1)

によって求められる。ここで、A [Bq ml⁻¹-MEA]は ¹⁴C を捕集した 1 ml の MEA 中の ¹⁴C 放射能、M [ml]はサンプリング後に回収した MEA 量、E [%]は MEA の CO₂捕集効率、U [cm³-air]は期間中にサンプリングされた空気量であり、サンプリング流量 f [cm³ s⁻¹]とサ ンプリング期間 T_s [s]の積によって表される。また、F [-]は 1 週間のサンプリング期間中 における MEA の揮発損失を考慮した補正係数(捕集剤の揮発補正係数)であり、これ までの実績に基づいて 0.9 を用いている。

対象期間中に排気筒から放出される¹⁴C量Q[Bq]は,

$$Q = C \cdot V$$

(3-2)

によって評価され, V [cm³]は期間中に排気筒から放出された気体廃棄物の総排気量である。

3.3. カーボンサンプラーの炭素 14 捕集効率の評価

3.3.1. はじめに

式(3-1)からわかるように、気体廃棄物中の¹⁴C 平均濃度を評価するためには、サンプ リングに使用した CO₂捕集剤(MEA)の CO₂捕集効率に関する情報が必要となる。1991 年 10 月からの定常的な¹⁴C 放出管理の運用開始にあたり、排気中¹⁴C のサンプリング条 件および測定条件が検討されており、その中には 200 ml の MEA による CO₂の捕集効率 に関する試験も含まれている⁽⁹⁾。試験の概要は以下の通りである。図 **3.2** に示すような 系を用いて、容積 15 1 のチェンバーに封入された ¹⁴CO₂ (3.4×10^4 Bq 程度)を、外気を 入気するとともに 3 段に直列設置された MEA (200 ml) にバブリングさせることによっ て捕集している。総サンプリング空気量は 50 1 程度であり、約 1-2 時間にわたってサ ンプリングを実施している(つまり、サンプリング流量は 0.42-0.83 1 min⁻¹に相当して いることになる)。その結果、¹⁴C は 1 段目のバブラー内の MEA からのみ検出され、200 ml の MEA による ¹⁴CO₂の捕集効率は 100%であるとしている。

一方,東海再処理施設において運用している¹⁴C 放出管理では,CO₂の捕集に使用する MEA 量およびサンプリング流量はそれぞれ 200 ml, 0.4 l min⁻¹であるが,バッチサンプリング期間が 1 週間(総サンプリング空気量は約 4.0 m³)であり,上記の試験とはサンプリング条件が大きく異なっている。そこで,実際のサンプリング条件およびサンプリング環境における MEA の CO₂捕集効率を評価するために,再処理施設から放出される気体廃棄物を用いて以下の試験を実施した。

3.3.2. 試験方法

東海再処理施設の主排気筒を対象として、図 3.3 に示すように試験装置を配置し、捕 集効率評価試験を実施した。空気を排気筒から流量 0.4 1 min⁻¹でサンプリングし、空気 中の¹⁴Cを酸化炉(酸化銅触媒: 700 °C)によって CO₂の化学形に酸化し、U字管冷却ト ラップ(-20 °C)で水分を除去した後、CO₂捕集部へ導入した。CO₂捕集部には 200 ml の MEA を入れたバブラー(図 3.4: 定常モニタリングに使用しているものと同形状のも のである)を直列に 3 段設置した。さらに 3 段目のバブラーから揮発した MEA を捕集 するために、最後に活性炭カラムを設置した。この状態で定常モニタリングにおける MEA 交換期間である 1 週間のサンプリングを実施し、サンプリング後、各段における MEA を用いて測定用試料を調製(それぞれ 2 ml、10 ml、4 ml の MEA、液体シンチレー タ、溶解補助剤を容量 20 ml のガラスバイアル内で混合)し、液体シンチレーション測 定(180 分)によって ¹⁴C 放射能を定量した。液体シンチレータおよび溶解補助剤とし て、それぞれ Aquasol-2 (Packard BioScience Company)、メタノールを使用した。

3.3.3. 試験結果と CO₂ 捕集効率の評価

上記の方法によって CO2 捕集効率に関する試験を 4 回実施した。試験結果を表 3.1 に

示す。すべての試験において1段目のバブラー内 MEA に対してのみ有意な¹⁴C が検出 され,2段目,3段目の MEA の正味¹⁴C 放射能は検出限界放射能(0.02 Bq ml⁻¹-MEA) 未満であった。このことから,定常モニタリングのサンプリング条件における CO₂捕集 効率はほぼ 100%であることが確認された。

3.3.4. カーボンサンプリングに必要な CO, 捕集剤量の概算

排気中 CO₂のサンプリングに使用する CO₂捕集剤 (MEA)の必要量を見積もるために, 1週間のサンプリングにおいて MEA へ流れ込む CO₂量と MEA の CO₂吸収能力の関係に ついて検討する。

気体廃棄物の CO_2 濃度を C_{CO2} [ppmv] (すなわち, $C_{CO2 \times 10^{-6}}$ [cm³ cm⁻³-air]), カーボン サンプラーによる対象期間中のサンプリング空気量を U [cm³]とすると, 期間中にサンプ リングされた空気中に含まれる全 $CO_2 \equiv V_{CO2}$ [cm³]は,

$$V_{CO2} = C_{CO2} \cdot U \times 10^{-6}$$
(3-3)

となる。温度 20 ℃ の空気を仮定すると、捕集される全 CO2 量 M_{CO2} [g]は、

$$M_{CO2} = \frac{V_{CO2} \times 44}{24 \times 10^3}$$
(3-4)

となる。

カーボンサンプラーによるバッチサンプリング期間におけるサンプリング空気総量は、 現在実施しているサンプリング条件では約4.0 m³(流量 0.41 min⁻¹で1週間のサンプリン グ)である。このサンプリング条件において、式(3-3)および(3-4)から算出された排気中 CO2濃度とカーボンサンプラーに流入する CO2量の関係を図3.5 に示す。東海再処理施 設では、外気を給気して施設内の減圧状態を維持しており、最終的にはそれらの空気が 換気系へ移行して、排気筒から放出される。もし排気筒から放出される空気が大気の空 気組成と同等であるとし、CO2濃度が400 ppmv、一酸化炭素(CO)および炭化水素(CmHn) 濃度が無視できるレベルであると仮定すると、1週間のサンプリング期間中にカーボン サンプラーに流入する CO2は約 2.9 g-CO2程度であると見積もられる(ただし、気体廃 棄物が排気筒に到達する前に工程内のオフガス処理系等においてフィルタリングやスク ラビングが行われるので、気体廃棄物中の CO2は大気レベルよりも低いことも考えられ る)。これに対して、MEA への CO2最大吸収量は 0.35 g-CO2 ml⁻¹-MEA であることから、 CO2の捕集に使用している MEA 量 (200 ml) に対する CO2最大吸収量は 70 g-CO2とな る。これらのことは、通気やバブリングによって MEA に吸収されない CO2が存在する 可能性を無視するならば、200 mlの MEA によって十分な捕集効率(ほぼ 100%)を維持 して1週間の CO₂ サンプリングを行うことができることを示している。放射性廃棄物の 削減および測定における検出下限値の向上の観点から、CO₂ のサンプリングに使用する MEA 量を低減することも可能であると考えられるが、MEA は CO₂ 吸収量が増加すると 粘性を持ってしまうことを考慮して、ある程度余裕を持った MEA 量の設定が望ましい。

3.4. CO2 吸収剤への水分の混入が炭素 14 放出評価に及ぼす影響

3.4.1. はじめに

使用済燃料の再処理に伴って放出される気体廃棄物中には、¹⁴C に加えて ³H も含まれ ている。そのため、¹⁴C のサンプリングで使用する CO₂吸収剤に ³H を含む水分が混入し、 結果として ¹⁴C の液体シンチレーション測定のための試料調製や測定そのものに、さら には ¹⁴C 放出評価に影響を及ぼす可能性がある。そこで、¹⁴C と ³H が混在する空気中の ¹⁴C 濃度を正確かつ効率的に定量することを目的として、調製試料への水分や ³H の混入 が ¹⁴C 放射能測定に及ぼす影響、および ¹⁴C のサンプリングに要求される空気の水分除 湿性能を評価した⁽¹⁰⁾。

3.4.2. 実験方法

モノエタノールアミン(MEA)を用いて空気中¹⁴Cのサンプリングを行った後,¹⁴C を捕集したMEA,液体シンチレータ(Aquasol-2, Packard BioScience Company),溶解補 助剤としてのメタノールをそれぞれ 2 ml, 10 ml, 4 ml 用いて試料を調製する場合につい て検討する。仮にMEA バブラーに到達する前にサンプリング空気の除湿が行われなけ れば,サンプリング期間中にMEA に水分(トリチウムを含む水分であることから,以 下「HTO」と記す)が混入することになる。その後の¹⁴C 測定用試料の調製においては, このMEA-HTO 混合物を"MEA"として用いることになる。その結果,サンプリング時 にMEA に混入した水分の割合に応じて,調製試料にも水分が混入してしまうことにな る。そこで,調製試料への水分および³H の混入の¹⁴C 測定への影響を調査するために, 以下の 2 つの実験を行った。

(1)¹⁴C 放射能がバックグランドレベルの試料へのトリチウム水の混入 試料調製に使用する MEA-HTO 混合物の容量は2 ml であり、水の混入量を0,0.025、 0.05, 0.075, 0.1, 0.2, 0.3, 0.35, 0.4 および 0.5 ml とした。使用した MEA 試料は ¹⁴C の捕集を行っていないものであり, その ¹⁴C 放射能はバックグラウンドレベル (< 0.15 Bq ml⁻¹-MEA) である。また, HTO の放射能は 240 Bq ml⁻¹-water である。調製された 10 種 類の試料についてそれぞれ 180 分間の液体シンチレーション測定 (Tri-Carb Model 2250CA, Packard) を行った。

(2) 有意な¹⁴C 放射能を有する試料へのトリチウム水の混入

上記の調製条件と同様の MEA-HTO 混合割合で,10 種類の試料を調製した。使用した 水の³H 放射能は 240 Bq ml⁻¹-water であり,MEA の¹⁴C 放射能は 2.63 Bq ml⁻¹-MEA であ る。各試料の液体シンチレーション測定時間は 180 分である。

3.4.3. 実験結果と考察

(1) 調製試料への水分混入の限界量

実験(1)において, 調製試料への水分混入量が 0.35 ml 以下のときには調製試料は常に 透明な溶液状であった。それに対して,水分混入量が 0.4 ml 以上のときには調製試料が 2 層に分離した。このような試料の分離(不均質)は放射能測定において大きなエラー を引き起こす要因となる。このことから,ここで検討している試料調製の条件に関して は,制度の高い放射能測定が可能となる調製試料への水分混入の限界量は 0.35 ml であ るといえる。

(2) 調製試料へのトリチウムの混入の炭素 14 放射能測定への影響

調製試料中で発生したβ線は試料自身のクエンチング(消光作用)による影響を受け て、検出器上では実際よりも低エネルギー側へシフトした状態で観測される。最大エネ ルギーが156 keV である¹⁴C のβ線は、ピークチャネルが約56.0 であり、安定した(2 層 分離が生じていない)試料調製が行われていればほぼ一定である。一方、実験(1)の結果 から、最大エネルギーが18.6 keV である³H のβ線は図3.6 のようなスペクトルを示し、 混入している HTO の量にかかわらず最大チャネルは約8.5 であった。これらのことから、 この試料調製条件においては、¹⁴C の計数領域として 9-60 チャネルの範囲を設定する ことにより、調製試料に混入した³H からのβ線による¹⁴C 測定への影響を除去すること ができる。

実験(2)によって得られた調製試料への HTO 混入量と¹⁴C 放射能測定結果の関係を図

3.7に示す。図中の測定値に示されているエラーは計数誤差(3 σ)を表している。試料 に2層分離が生じていない混合割合の領域では、¹⁴C放射能測定結果は、2 mlのMEA-HTO 混合物における MEA の HTO による希釈割合から見積もられる¹⁴C放射能(図中の直線) と良く一致している。一方、2 層分離を起こしている調製試料に対しては、両者は一致 しておらず、希釈割合から¹⁴C放射能を予測することができない。これらの結果は、も し MEA に水分が混入したとしても、少なくとも調製状態が安定した試料(水分混入の 限界量を超えていない試料)については、MEA の HTO による希釈効果を考慮すること により、比較的精度良く¹⁴C放射能を定量することができることを示している。

(3) サンプリング空気の相対湿度限界の評価

上記のサンプリングおよび試料調製条件において、¹⁴C のサンプリングに使用する MEA の量を M [ml], バブリングによって M [ml]の MEA に混入した HTO の量を W [ml] とする。サンプリング後に, この MEA-HTO 混合試料(M+W) [ml]から, m [ml]を分取し て測定用試料の調製を行うとする。当然,分取した m [ml]の MEA-HTO にも HTO が混 入していることになる。分取した MEA-HTO 試料中に含まれる HTO 量を x [ml]とすると, 温度 T [°C]のサンプリング空気の相対湿度 r(T) [%]は,

$$r(T) = \frac{M \cdot x}{m \cdot x} \cdot \frac{1}{\varepsilon \cdot Q \cdot S(T)} \times 10^4$$
(3-5)

によって求めることができる⁽¹⁰⁾。ここで、 ε [%]は MEA の水分捕集効率、Q [m³]はカー ボンサンプラーによってサンプリング期間中に捕集される総サンプリング空気量、S(T) [g m⁻³]は温度 T [°C]におけるサンプリング空気の飽和水蒸気密度である。式(3-5)より、 試料調製が可能となるサンプリング空気(温度 T [°C])の相対湿度限界 r_{im} (T) [%]は、

$$r_{\rm lim}(T) = \frac{M \cdot x_{\rm lim}}{m \cdot x_{\rm lim}} \cdot \frac{1}{\varepsilon \cdot Q \cdot S(T)} \times 10^4$$
(3-6)

によって評価することができる。ここで, x_{lim} [ml]は試料調製に用いる m [ml]の MEA-HTO 試料中に含まれる HTO の限界混入量であり,この限界混入量を超えた水分が測定用調 製試料に混入した場合には調製試料が分離してしまう量である。

ここで,式(3-6)を用いて,サンプリングに使用する MEA 量を 200 ml, MEA の水分捕 集効率を 100%とし,流量 0.41 min⁻¹で一週間のサンプリングを行った場合について,サ ンプリング空気の温度と相対湿度の関係を評価した(図 3.8)。実験(2)の結果から,調製 試料への HTO 限界混入量は 0.35 ml である。図 3.8 において実線で示される曲線(0.35 ml の HTO 混入量に対する曲線であり、相対湿度限界を表している)および上述した検討 結果から、温度 40 ℃ 以下のサンプリング空気(東海再処理施設における排気筒内空気 の温度は通常 20-40 ℃ の範囲である、2.3.4 項参照)に対しては、試料調製および¹⁴C 放射能の定量が可能となる相対湿度は 20.6 %であると評価される。

(4) 炭素 14 の放出評価への影響

カーボンサンプラーによる¹⁴Cのサンプリングにおいて, CO₂吸収剤である MEA に水分(HTO を含む)が混入し、その結果として調製試料へも水分が混入した際に、排気筒からの¹⁴C 放出量の評価にどのような影響を及ぼすかについて、以下の 2 つのケース:

(ケース1)

水分の混入がなく、試料調製に使用する m [ml]すべてが MEA である。

(ケース 2)

水分が混入し, 調製試料に使用する m [ml]の MEA-HTO 混合物のうち, (m-x) [ml] が MEA, x [ml]が水分である。

について考察する。

ケース1において,カーボンサンプラーによって捕集された全空気(Q[m³])中の¹⁴C 放射能 A₀ [Bq]は,

$$A_0 = C_0 \cdot \frac{M}{m}$$
(3-7)

によって評価される。ここで、 C_0 [Bq/sample]は m [ml]の MEA を用いて調製された試料 の ¹⁴C 放射能である。一方、ケース 2 において、捕集された全空気中の ¹⁴C 放射能 A_x [Bq] は、

$$A_x = C_x \cdot \frac{M}{m - x} \tag{3-8}$$

によって評価される。ここで、 C_x [Bq/sample]は x [ml]の水分を含む m [ml]の MEA-HTO 混合物を用いて調製された試料の¹⁴C 放射能である。ここで、調製試料に含まれる水分 量が限界量以下である(2 層分離していない)場合には、図 3.7 に示されるように、調 製試料の¹⁴C 放射能と試料中に含まれる水分量の間には、

$$C_x = C_0 \cdot \frac{m - x}{m} \tag{3-9}$$

で表される明確な関係が成り立つ。

これらの式(3-7)-(3-9)は、サンプリング対象である空気の相対湿度が相対湿度限界を 超えていなければ、サンプリングおよび調製試料に水分が混入したとしても¹⁴Cの放出 評価に影響を及ぼさないことを示している。

以上のことから,(1) サンプリングおよび試料調製条件を考慮したサンプリング空気の相対湿度限界を評価し,(2) カーボンサンプラーにおいて,サンプリング空気が CO₂ 捕集部に到達する前に,その相対湿度が相対湿度限界を超えない程度に除湿でき,(3) サ ンプリング空気の温度および相対湿度を正確に測定できる機構を設けておけば,的確な 放出評価を行うことが可能であるといえる。これらの結果は,今後,空気中¹⁴C サンプ リング装置を設計・改良していく上で,また¹⁴C 放出評価法について更なる検討を行っ ていく上で重要な知見となる。

3.5. 炭素 14 の捕集に係わるその他の留意点

炭素 14 の放出評価においては、トリチウムの場合とは異なり、¹⁴C の捕集効率がひと つの重要なファクターとなるために、実際に使用する条件下での捕集剤の CO₂捕集効率 を評価しておく必要がある。捕集効率を上げる、もしくは確実に 100%を維持しようと するならば単純に捕集剤の量を増やすことがひとつの手段ではあるが、捕集剤の単位容 積あたりの¹⁴C 放射能が低下してしまうために、求められる検出下限濃度を満足するこ とができなくなる可能性があることに注意しなければならない。

炭素 14 の液体シンチレーション測定用試料の調製においては,サンプリングで使用した MEA のうちのごく一部を用いることになる。そのため、捕集された¹⁴C が MEA 中で不均一に分布していれば、調製試料およびその測定結果の代表性が損なわれてしまう。 我々は、MEA 中において捕集された¹⁴C の分布に関する調査も行っており、捕集された¹⁴C は少なくとも2週間にわたって MEA 内でほぼ均一に分布していることを明らかにしている。

トリチウムのサンプリングと同様に、サンプリングライン内で空気のリークが生じた 場合には、設定流量に対してある割合で、排気筒内空気以外の空気(排気筒外空気)を サンプリングしてしまうことになる。排気筒外空気中¹⁴Cの捕集剤(MEA)へ混入によ る総放射能増加は相対的に無視できることから,全体のサンプリング空気量に対する排 気筒外空気の引き込み量の割合が直接的に捕集剤中の¹⁴C 放射能濃度[Bq ml⁻¹]の希釈を 引き起こすことになる。その結果,式(3-1)および(3-2)によって評価される¹⁴C 平均濃度 および放出量は過小評価されてしまうので,炭素 14 の捕集に関してもトリチウムの捕集 に係わる留意点で述べた事項を考慮しておくことが,リークによる過小評価の防止に有 効な対策となりうる。

4. 放射性ヨウ素の捕集方法と捕集効率

4.1. 放射性ヨウ素の捕集方法

空気中の放射性ヨウ素を捕集する方法としては、活性炭捕集材を用いる方法(固体捕 集法)や、アルカリ溶液(たとえば、NaOH等)のスクラバを用いる方法(液体捕集法) がある。活性炭の吸着現象を利用する固体捕集法については、実験室における各種条件 下での実験において高い捕集効率が得られることが示されている(11)。日本規格協会では, 活性炭ヨウ素捕集材の捕集効率は、温度25±5℃、相対湿度80±10%の試験用気体(ヨ ウ化メチル: CH₄Iを混合した空気)を通気速度 0.4 m s⁻¹以上で 30 分間通気する試験に おいて,90%以上であることを規定している⁽¹²⁾。一方,化学反応を利用する液体捕集法 は、活性炭による固体捕集法と比較して、捕集効率が悪いだけでなく、取り扱いおよび 放射能測定が煩雑であり、日常および緊急時のモニタリングには適さない^(13,14)。このよ うに、放射性ヨウ素を効率よく捕集できること、捕集した放射性ヨウ素を定量するため の測定が容易であることなどから、空気中の放射性ヨウ素のモニタリングには、活性炭 捕集材を用いた固体捕集法が広く適用されている。しかしながら、活性炭を用いて放射 性ヨウ素を捕集する場合でも、その捕集効率は(1)ヨウ素の物理的・化学的な性状、(2) サンプリング対象気体の組成や雰囲気条件(例えば、ヨウ素の質量濃度、活性炭に対し て活性な水蒸気や不純ガスの存在量など),(3)サンプリング時間や表面速度(サンプリ ング流量と捕集材の開口部面積との関係),などに依存し,実フィールドにおける捕集効 率は一般的には実験室における捕集実験の結果と比較して著しく低下し、同時に再現性 も悪くなる(14-16)。そのため、固体捕集材を用いた放射性ヨウ素の捕集においては、これ らの各種条件や環境を考慮して捕集材を選定し、捕集効率を評価し、さらにはサンプリ ング条件を決定する必要がある。

再処理施設から大気中へ放出される放射性ヨウ素は、元素状ヨウ素(I₂)やヨウ化メ チル(CH₃I)をはじめとして、化学的に多種多様な形態(無機形・有機形)をとる⁽¹⁷⁾。 このような多様な化学形態の放射性ヨウ素を効率よく捕集することを目的として、東海 再処理施設では、(1)活性炭含浸ろ紙と(2)活性炭カートリッジを併用することにより、気 体廃棄物中の放射性ヨウ素を捕集している。図 4.1 に東海再処理施設で用いているヨウ 素サンプラーの概略図を示す。活性炭含浸ろ紙(CP-20,図 4.2)は、セルローズ・アス ベストの基材ろ紙(開口部径 40 mm、厚さ 2 mm)に粉末のヤシガラ活性炭(活性炭平 均粒径 75-100 µm)を重量割合 45%で含浸させたものであり,活性炭カートリッジ (CHC-50,図4.3)は、円筒状カートリッジ(外径 60 mm,開口部径 48 mm,高さ 20 mm) に活性炭の粉末(平均粒径 300 µm)を充填したものである。有機ヨウ素成分に対する捕 集効率を向上させるために、両捕集材中の活性炭には重量割合で 10%のトリエチレンジ アミン(TEDA)が添着されている^(11,14)。また、両捕集材間、およびヨウ素サンプラー 内の捕集材設置部と各捕集材間においてサンプリング空気のリークが生じないように、 各捕集材には図に示すようなゴムパッキンが取り付けられている。気体廃棄物中のヨウ 素捕集における流量およびバッチサンプリング期間は、それぞれ 701 min⁻¹、1 週間であ る。

活性炭以外のヨウ素の固体捕集材として、銀ゼオライトや銀アルミナがある。これらの捕集材は、放射性希ガスであるキセノン(Xe)の吸着が極めて少ないために、事故時における放射性希ガスとヨウ素の混合気体中からヨウ素を選択的に捕集するために有用であるが、活性炭と比較して高価であるために定常のモニタリングには適さない⁽¹⁸⁾。

4.2. 放射能測定および放出量評価法

4.2.1. 放射能測定

1 週間にわたる気体廃棄物のバッチサンプリング後に,活性炭含浸ろ紙および活性炭 カートリッジを回収し,それぞれ Ge 半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによ る放射性ヨウ素の放射能測定を行っている。なお,ヨウ素サンプラーでは,サンプリン グ期間中においても,定量性には欠けるものの,捕集材に捕集された放射性ヨウ素から の放射線を NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて連続的に測定しており,ヨウ素の異 常放出等を迅速に捉えることができるようになっている(図 4.1)。

4.2.2. 捕集材における捕集放射能の見積もり

厚みのある活性炭カートリッジ (CHC-50) に捕集された放射性ヨウ素の放射能を定量 する際には、放射性ヨウ素から放出されるγ線のエネルギーが低く (¹²⁹I:39.6 keV)、捕 集材による自己遮蔽効果が問題となることや、活性炭カートリッジ内で放射性ヨウ素が 分布を持って捕集されていることを考慮する必要がある。東海再処理施設では、CHC-50 の表側(サンプリング空気の流入口側)および裏側(サンプリング空気の流出口側)で それぞれ Ge 半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによる ¹²⁹I 放射能の測定を行 い,それらの放射能測定値の平均値を用いて CHC-50 に捕集された¹²⁹I 放射能を見積も っている(本手法の妥当性に関する実験的検討を 4.3 節に示す)。一方,活性炭含浸ろ紙 (CP-20) については,厚さが 2 mm と薄いために,自己遮蔽効果や捕集材中での対象核 種の深さ方向における分布は無視できるので,表側での測定のみによって捕集された放 射能を定量している。

サンプリング期間中に捕集材によって捕集された¹²⁹Iの総放射能は,基本的にはCP-20 および CHC-50 に捕集された放射能の和であると考えられ,¹²⁹I 放射能の各測定値を用 いて次の式によって評価している。

$$A = A_{F} + \frac{A_{front} + A_{back}}{2}$$
(4-1)

ここで, A [Bq]は捕集された¹²⁹I の総放射能, A_F [Bq]は CP-20 の放射能測定値, A_{front} [Bq] および A_{back} [Bq]はそれぞれ CHC-50 の表側, 裏側における放射能測定値である。

4.2.3. 平均濃度および放出量評価法

サンプリング期間中の空気中の¹²⁹Iの平均濃度 C [Bq cm⁻³-air]は,式(4-1)によって見積 もられた捕集材中の¹²⁹I 放射能 A [Bq]を用いて,

$$C = A \cdot \frac{100}{E} \cdot \frac{1}{U}$$
(4-2)

によって算出される。ここで、E[%]は捕集材(CP-20 と CHC-50 の両捕集材)によるヨ ウ素の実効的な捕集効率である。また、U [cm³-air]は対象期間中にサンプリングされた 総空気量であり、サンプリング流量 f [cm³ s⁻¹]とサンプリング期間 T_s [s]の積によって表 される。ただし、評価対象核種がヨウ素 131 (¹³¹I)である場合には、その半減期が短い (8.02 日)ことを考慮して、サンプリング開始から測定終了までの期間における放射性 崩壊による放射能の減衰を補正する必要がある。

対象期間中に排気筒から放出される放射性ヨウ素の放射能量Q[Bq]は,

$$Q = C \cdot V$$

(4-3)

によって評価され,式中のV[cm³]は期間中に排気筒から放出された気体廃棄物の総排気 量である。 4.3. 活性炭カートリッジに捕集されたヨウ素の放射能定量法

4.3.1. はじめに

厚みのある活性炭カートリッジ中に捕集された¹²⁹I 放射能を定量する方法を検討する ために,以下の実験を行った。

4.3.2. 実験方法

ヨウ素 129 を含む空気を、サンプリング流量 701 min⁻¹で1週間にわたって、活性炭カ ートリッジ (CHC-50, 図 4.3) に通気させた。ヨウ素 129 を捕集した CHC-50 の表側お よび裏側でそれぞれγ線スペクトロメトリーによる放射能の測定 (2000 秒) を行った。 その後、カートリッジを開封し、充填されている活性炭を取り出して良く攪拌した。均 質化された活性炭を新しいカートリッジに移し替えて、カートリッジに再封入した。こ のようにして作成した CHC-50 について、再度、その表側および裏側においてγ線スペク トロメトリーによる放射能測定 (2000 秒) を行った。

4.3.3. 実験結果と考察

表 4.1 にカートリッジに充填されている活性炭を均質化する前後において CHC-50 の 表側および裏側で測定された¹²⁹I 放射能を示す。サンプリング後の放射能測定(均質化 前)では、すべての CHC-50 において表側で裏側よりも高い測定結果が得られ、表側と 裏側の放射能比は 1.57-1.71 であった。このことから、本実験におけるサンプリング条 件では、ヨウ素は CHC-50 中で厚さ方向に分布を持って捕集されており、サンプリング 上流側において下流側よりも多くの量が捕集されていることがわかる。一方で、攪拌に より均質化操作後の測定では、すべての CHC-50 において表側と裏側の放射能比がほぼ 1 となり、CHC-50 内で¹²⁹I の分布が均質化された。均質化された 3 つの CHC-50 試料の 表側および裏側における放射能測定値の平均値は、それぞれ 46.5、44.4、13.0 Bq であっ た。これに対して、均質化操作前の表側および裏側の放射能測定値の平均値は、それぞ れ 47.8、43.3、12.1 Bq であった。均質化操作前後の放射能平均値の比(均質化前の放射 能平均値/均質化後の放射能平均値)は、0.93-1.03 の範囲であった。捕集された放射能量が比較的大きい他の 2 試料については、平均値の差は約 3%程度で あった。これらのことから、CHC-50 の表側と裏側での放射能測定値の平均値は、均質 化された CHC-50 の放射能と良く一致しており, CHC-50 中に分布をもって捕集されたヨ ウ素の放射能を定量する際には、表側と裏側での放射能の測定を行い、それらの値の算 術平均を用いて捕集放射能を評価する方法は有効であるといえる。

厚みのあるカートリッジフィルターにおけるヨウ素の捕集および測定に関しては、銀 含浸シリカゲル(AgS)を用いた実験が行われており、表側および裏側の放射能平均値 の差は均質化前後で約 8.4%以下であると報告されている⁽¹⁹⁾。

4.4. ヨウ素捕集材のヨウ素捕集効率の評価

4.4.1. はじめに

先にも述べたように,活性炭を用いたヨウ素捕集における捕集効率は,ヨウ素の物理 的・化学的性状,雰囲気条件およびサンプリング条件などによって大きく変化する。ま た,捕集効率は,式(4-1)-(4-3)に示されるように,気体廃棄物中の放射性ヨウ素の濃度 および放出量を評価するために欠くことのできないパラメーターのひとつである。その ため,実際にモニタリングを行おうとする環境・条件における捕集効率を評価しておく 必要がある。そこで,実際に再処理施設から放出される気体廃棄物を対象に,定常的な モニタリングと同様のサンプリング条件によって,以下に示す捕集効率評価試験を実施 した。

4.4.2. 試験方法

東海再処理施設の主排気筒から空気をサンプリングし,表 4.2 に示すような活性炭含 浸ろ紙(CP-20)および活性炭カートリッジ(CHC-50)の各種組み合わせで構成された 試験用捕集部のいずれかに空気を通過させた。試験用捕集部は,基本的には,CP-20 と CHC-50 を併用した評価対象のヨウ素捕集部の後段に,バックアップ用の CP-20 や CHC-50 を配置した構造になっている。試験に用いた CP-20 および CHC-50 には,それ ぞれ重量割合で 10%の TEDA が添着されており,定常的なモニタリングで使用している ものと同様のものである(図 4.2, 4.3)。サンプリング期間は1週間とし、サンプリング 流量を 40.6-75.01 min⁻¹の範囲で設定し,合計 31 回の試験を実施した。

サンプリング後に各捕集材を回収し, CP-20 に対しては表側のみ, CHC-50 に対しては 表側と裏側の両面について, Ge 半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによる¹²⁹I 放射能の測定を行った。各測定時間は 1000 秒であり,検出限界放射能は CP-20 および CHC-50 に対してそれぞれ約 0.2 Bq, 0.5 Bq である。

CP-20, CHC-50 および評価対象のヨウ素捕集部(CP-20 と CHC-50 の併用)の捕集効率は,以下の式により評価した。

$$\eta_{\rm F} = \frac{A_{\rm F,1}}{\sum A_{\rm F,i} + \sum (A_{\rm front,i} + A_{\rm back,i})/2} \times 100$$
(4-4)

$$\eta_{\rm C} = \frac{\left(A_{\rm front,1} + A_{\rm back,1}\right)/2}{\sum A_{\rm F,i} + \sum \left(A_{\rm front,i} + A_{\rm back,i}\right)/2} \times 100$$
(4-5)

$$\eta_{\rm T} = \eta_{\rm F} + \eta_{\rm C} \tag{4-6}$$

ここで、 $\eta_{\rm F}$ [%], $\eta_{\rm C}$ [%]および $\eta_{\rm T}$ [%]は、それぞれ CP-20、CHC-50、CP-20 と CHC-50 を組み合わせたヨウ素捕集部におけるヨウ素の捕集効率である。また式中の $A_{\rm F, 1}$ [Bq], $A_{\rm front, 1}$ [Bq]および $A_{\rm back, 1}$ [Bq]はそれぞれ評価対象(1 段目)の CP-20、CHC-50 表側および 裏側における放射能測定値であり、 $A_{\rm F, i}$ [Bq], $A_{\rm front, i}$ [Bq]および $A_{\rm back, i}$ [Bq]はそれぞれ i 段目の CP-20、CHC-50 表側および裏側における放射能測定値である。

4.4.3. 試験結果と各捕集材における捕集効率の評価

(1) ヨウ素捕集部(CP-20 と CHC-50 の併用)によるヨウ素の捕集効率

試験用捕集部1を用いた試験(2回)より,2段目のCP-20にはヨウ素が捕集されない(厳密に言えば、捕集されたヨウ素の放射能が測定の検出限界値未満である)ことがわかった。試験用捕集部2を用いた試験(6回)においても当然ながら3段目のCP-20にはヨウ素が捕集されなかった。また、3段目のCHC-50に捕集される¹²⁹Iはほとんどなく、検出されたとしても測定における検出限界放射能をわずかに超える程度であった。本試験においては、試験用捕集部2全体で捕集された¹²⁹Iを100%とすれば、3段目のCHC-50に捕集された¹²⁹Iは0.0-3.2%(平均1.1%)であった。3段目のCHC-50で捕集されずにさらに後段へ流出する¹²⁹Iは、3段目のCHC-50で捕集される量よりも少ないと考えられる。これらのことから、評価対象である1段目(CP-20とCHC-50の組み合わせ)の捕集部を通過して、かつ2段目に設置したCHC-50で捕集部の後段にCHC-50のみを設置した試験用捕集部3を使用した試験によっても十分な精度でヨウ素捕集効率を評価す

ることが可能であると考えられる。以上のことから,残りの試験(23回)においては, 試験用捕集部3を用いている。

図 4.4 にヨウ素捕集効率試験の結果を示す。CP-20 と CHC-50 を併用したヨウ素捕集部 のヨウ素捕集効率は、90.0-100%の範囲であり、平均 94.8±2.9 (1std)%であった(ただ し、各測定における検出限界放射能未満の値は 0 Bq とした)。なお、試験中における 1 週間の平均温度および平均相対湿度の変動範囲はそれぞれ 22-35 °C、16-40 %であっ た。

これまで、東海再処理施設において、試験対象とする捕集材の後段に 5 つの CHC-50 をバックアップとして設置し,対象捕集部(CP-20と CHC-50の組み合わせであり,今 回我々が用いた捕集材と同じものであるが、ヨウ素捕集材ホルダーは異なる)のヨウ素 捕集効率を評価した結果が報告されている⁽²⁰⁾。その結果によれば、対象捕集部のヨウ素 捕集効率はおおよそ 70-90%の範囲(試験回数は 15 回)であった。今回の試験では、 報告されている値と比較して相当高い捕集効率(90-100%)が得られた。しかしながら、 今回の試験実施前に行った予備試験では,2 つの捕集部を並列に設置して同じ空気をサ ンプリングした際に、片方の捕集部において 2 段目の CP-20 や CHC-50 で¹²⁹I が検出さ れる結果が得られている。そのときの並列に設置した捕集部の捕集効率はそれぞれ 72.8%,93.4%と見積もられ、低い方の捕集効率は過去に実施された試験の結果と良く一 致している。2 段目のヨウ素捕集材においてヨウ素が捕集された原因としては, ヨウ素 捕集材ホルダー内でリークが生じていたことに起因すると考えられる。ヨウ素捕集材ホ ルダー内において、サンプリング空気が評価対象の捕集部を通過せずに、後段のバック アップ捕集材へ流れ込むような事象が発生していれば、バックアップ捕集材へのヨウ素 捕集量が相対的に多くなり、評価対象である捕集部の捕集効率が低く見積もられること になるだろう。そこで、本試験では、使用するヨウ素捕集材ホルダー内でリークが生じ ないように、(1) アタッチメント(CP-20のろ紙部分を除いたもので、厚さ5mmのゴム パッキン,図4.2参照)を1個余分にサンプリングホルダーに封入し,(2)各捕集材間に シリコングリースを塗ることによって、ホルダー内での各捕集材間の密着性を高めるよ うな対策を施した。その結果、以後の試験において安定した高い捕集効率を得ることが できるようになった。

(2) ヨウ素捕集部(CP-20 と CHC-50 の併用)の各捕集材におけるヨウ素の捕集割合 サンプリングにおいて試験用捕集部で捕集された¹²⁹I 量を 100%としたとき,評価対象 である捕集部の CP-20 および CHC-50 で捕集された¹²⁹I の割合は,それぞれ 7.8-44.0% (平均 19.0±7.8%),51.8-84.6% (平均 75.8±7.1%)であった。ただし,CHC-50 のみの ヨウ素捕集効率を把握するためには,CHC-50 のみを個別に用いた試験を行う必要があ る。

(3) ヨウ素捕集部(CP-20とCHC-50の併用)の捕集効率のサンプリング流量依存性

図 4.5 にサンプリング流量と捕集効率の関係を示す。図 4.5 は、東海再処理施設から の気体廃棄物の1週間にわたるヨウ素サンプリングに対して、40-751min⁻¹のサンプリ ング流量範囲において、ヨウ素捕集効率の流量依存性はなく、高い捕集効率(90%以上) が得られることを示している。これは、最終的な濃度および放出評価に求められる検出 下限値を考慮すれば、このサンプリング流量範囲でヨウ素のサンプリングを行うことが 可能であることを意味している。高流量によるサンプリングは、ヨウ素捕集材による圧 力損失のためにサンプリングポンプやブロワに負担をかけることになるので、この結果 を踏まえてさらに適切かつ効率的なサンプリング条件を検討していく。

4.5. ヨウ素の捕集に係わるその他の留意点

他のサンプリングと同様に,サンプリングライン内で空気のリークが生じた場合には, 排気筒外空気の混入により平均濃度および放出量を過小評価してしまう。そのため,ヨ ウ素のサンプリング装置についても,トリチウムや炭素 14 の捕集に係わる留意点で述べ たような工夫を施しておいたほうが良いと考える。

ヨウ素捕集材は、気体廃棄物中の湿度のみならず窒素酸化物(NO_x)の影響によって、 特に有機形ヨウ素に対する捕集効率が低下する可能性がある。そのため、サンプリング 対象である気体廃棄物の空気組成を把握し、妨害要因となる不純ガスのヨウ素捕集効率 への影響を評価しておくことが望ましい。

-25-

5. 結言

東海再処理施設の気体廃棄物中トリチウム,炭素14およびヨウ素のバッチサンプリン グにおける捕集方法について述べるとともに、その捕集効率を評価した。東海再処理施 設の気体廃棄物モニタリングで実施している捕集方法においては、すべての核種に対し て90%以上の捕集効率(炭素14についてはほぼ100%)が得られることを示した。

気体廃棄物中のトリチウム,炭素14およびヨウ素のモニタリング手法を確立するためには,

- (1)各捕集方法の捕集効率は対象気体の雰囲気やサンプリング条件等によって大きく 異なることが考えられるので、実際に適用しようとするフィールドにおいて捕集 効率を評価しておく必要がある。
- (2) 最終的な濃度および放出量の評価に求められる検出下限値を考慮して、サンプリング条件を決定する必要がある。
- (3) サンプリング装置におけるリークの発生は、核種の濃度および放出量の過小評価 を導くことから、装置をリークが生じない構造とするだけでなく、リークの発生 有無を常時確認できてその影響を補正できるようにすべきである。

本報告で記述した気体廃棄物中の放射性核種の捕集に関する各種試験方法,検討・考 察および留意事項は,モニタリング手法の評価やより安全かつ確実な手法の開発・確立 に重要な知見を提供できる。

謝辞

各種試験の実施にあたり多大な協力をいただいた瑞豊産業株式会社 檜山佳典氏,検査 開発株式会社 安達康敬氏,ならびに核燃料サイクル開発機構 東海事業所 放射線安全部 放射線管理第二課および環境監視課の課員に深く感謝いたします。また,本試験の遂行 にあたり支援をいただいた同部 放射線管理第二課 江尻英夫課長代理,同部 環境監視課 水谷朋子氏,渡辺均チームリーダー,武石稔課長,ならびに同部 篠原邦彦部長に感謝の 意を表します。

参考文献

- (1) UNSCEAR: Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York, (2000).
- (2) 石田 順一郎, 宮部 賢次郎, 今熊 義一, 鈴木 信夫, 江尻 英夫, 秋山 聖光, 高崎 浩司, 小沢 友康, 倉知 保, 横田 友和: "再処理施設 放射線管理 20 年史 第 IV 編 放射性気体廃棄物の監視等-", JNC ZN8440 99-015, (1998).
- (3) Miyabe, K., Mikami, S. and Koarashi, J.: "Experience of radioactive effluent monitoring at Tokai reprocessing plant", The first Asian and Oceanic Congress for Radiation Protection, Seoul, Korea, October 20-24, (2002).
- (4) Shinohara, K.: "Assessment of radiological effects on the regional environment due to the operation of the Tokai Reprocessing Plant", Journal of Environmental Radioactivity, Vol. 72, p. 299-322, (2004).
- (5) 石田 順一郎, 宮部 賢次郎, 今熊 義一, 鈴木 信夫, 水庭 春美, 高崎 浩司, 西村 善行, 栗原 治, 仲里 和仁, 井坂 正己: "再処理施設 放射線管理 20 年史 第 VI 編 放射線管理に係る研究開発-", JNC ZN8440 99-017, (1998).
- (6) 日本規格協会:湿度測定方法,Z 8806, JIS ハンドブック クリーンルーム, 53, (1989).
- (7) Koarashi, J., Amano, H., Andoh, M., Iida, T. and Moriizumi, J.: "Estimation of ¹⁴CO₂ flux at soil-atmosphere interface and distribution of ¹⁴C in forest ecosystem", Journal of Environmental Radioactivity, Vol. 60, p. 249-261, (2002).
- (8) Momoshima, N., Kawamura, H. and Takashima, Y.: "Determination of ¹⁴C in environmental materials: Combination of CO₂ absorbent and a large-volume low-background liquid-scintillation counter", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 173, p. 323-329, (1993).
- (9) 堀内 信二, 稲葉 久美, 星 勉, 石松 信彦, 水庭 春美, 二之宮 和重, 石田 順一郎:
 "再処理施設排気中¹⁴C モニタリング技術の確立", PNC ZN8410 95-082, (1995).
- (10) Koarashi, J., Yokota, T., Akiyama, K. and Asano, T.: "Effect of incorporating tritiated water into ¹⁴C-sampling system on quantitative estimation of ¹⁴C activity in airborne effluent", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, in press.
- (11) Naritomi, M., Yoshida, Y. and Fukuda, S.: "Method for improving the collecting performance of iodine samplers under high relative humidity", Journal of Nuclear Science

and Technology, Vol. 10, p. 292-300, (1973).

- (12) 日本規格協会: 放射性よう素サンプラ,Z4336,JIS ハンドブック 放射線(能),39,
 (2004).
- (13) 放射性ヨウ素安全専門委員会: 放射性ヨウ素の環境安全, 財団法人 原子力安全委員会, (1972).
- (14) 成冨 満夫,福田 整司: "放射性浮遊ヨウ素サンプリングにおける各種添着活性炭カートリッジおよびろ紙の捕集性能",日本原子力学会誌, Vol. 14, p. 531-539, (1972).
- (15) 成冨 満夫,福田 整司: "放射性浮遊ヨウ素に対する活性炭含浸ろ紙の捕集特性",
 日本原子力学会誌, Vol. 13, p. 174-181, (1971).
- (16) 吉田 芳和, 成冨 満夫: "放射性ヨウ素のモニタリング", 保健物理, Vol. 9, p. 233-241, (1974).
- (17) Haller, W. A. and Perkins, R. W.: "Organic iodine-131 compounds released from a nuclear fuel chemical processing plant", Health Physics, Vol. 13, p. 733-738, (1967).
- (18) Cline, J. E.: "Retention of noble gases by silver zeolite iodine samples", Health Physics, Vol. 40, p. 71-73, (1981).
- (19) Sakurai, T., Takahashi, A., Ye, M., Kihara, T. and Fujine, S.: "Trapping and measuring radioiodine (Iodine-129) in cartridge filters", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 34, p. 211-216, (1997).
- (20) 高崎 浩司, 石松 信彦, 星 勉: "再処理施設における排気中放射性よう素(¹²⁹I) に
 関する調査研究 第 II 編 放射性よう素最適捕集材の検討", PNC ZN8410 95-062, (1995).

表 3.1.	モノエタノールアミン	による CO2 捕集試験		
試験		¹⁴ C	Bq ml ⁻¹ -MEA] ^a	
No.	B.G.	1 段目	2 段目	3 段目
1	$0.12\pm0.01^{ m b}$	1.15 ± 0.03	0.13 ± 0.01	0.13 ± 0.01
		$(1.03 \pm 0.04)^{\rm c}$	(0.00 ± 0.02)	(0.00 ± 0.02)
5	0.13 ± 0.01	1.79 ± 0.04	0.12 ± 0.01	0.12 ± 0.01
		(1.66 ± 0.04)	(0.00 ± 0.02)	(0.00 ± 0.02)
3	0.13 ± 0.01	0.70 ± 0.03	0.13 ± 0.01	0.12 ± 0.01
		(0.57 ± 0.03)	(0.00 ± 0.02)	(0.00 ± 0.02)
4	0.13 ± 0.01	0.57 ± 0.02	0.14 ± 0.01	0.12 ± 0.01
		(0.45 ± 0.03)	(0.01 ± 0.02)	(0.00 ± 0.02)
a測定にお	ける検出限界放射能は約0).02 Bq ml ⁻¹ -MEA である。		

b 誤差は計数誤差(3の)である。 。カッコ内は正味の¹⁴C 放射能の表し, 誤差は計数誤差の伝播より評価している。

	均質化前後の	半均値の比	1.03	0.98	0.93
	[Bq]	表裏の比	1.04	1.03	1.00
	の均質化後	平均	46.5	44.4	13.0
至値	域活性炭の	裏側	45.5	43.7	13.0
放射能測症	并	表側	47.4	45.1	13.0
·裏側における ¹²⁹ 1	ſſ [Bq]	表裏の比	1.58	1.57	1.71
長側および	の均質化前	平均	47.8	43.3	12.1
、リッジの夏	充填活性炭	裏側	37.0	33.7	8.9
性炭カート		表側	58.5	52.9	15.2
表 4.1.	武料	No.	1	7	3

No. 利山 東側 平均 表裏の比 1 58.5 37.0 47.8 1.58 2 52.9 33.7 43.3 1.57 2 52.9 33.7 43.3 1.57 3 15.2 8.9 12.1 1.71 素 4.2. 試験用 1 段目(評価対象) 2 段目 諸集部 1 段目(評価対象) 2 段目 捕集部1 0 0 0	<u> </u>	表裏の比 1.58 1.57 1.71	表側 47.4 45.1 13.0	裏側 45.5 43.7 13.0	平均 46.5 44.4 13.0	表裏の比 1.04 1.03 1.00
1 58.5 37.0 47.8 1.58 2 52.9 33.7 43.3 1.57 3 15.2 8.9 12.1 1.71 3 15.2 8.9 12.1 1.71 表 15.2 8.9 12.1 1.71 該 15.2 8.9 12.1 1.71 該 1.81 (評価対象) 2.81 諸集部 1.81 (評価対象) 2.81 捕集部1 0 0 0	37.0 47.8 33.7 43.3 8.9 12.1	1.58 1.57 1.71	47.4 45.1 13.0	45.5 43.7 13.0	46.5 44.4 13.0	1.04 1.03 1.00
2 52.9 33.7 43.3 1.57 3 15.2 8.9 12.1 1.71 表 15.2 8.9 12.1 1.71 表 15.2 8.9 12.1 1.71 武殿用 1 段目(評価対象) 2 段目 諸集部 CP-20 CHC-50 CP-20 捕集部1 0 0 0	33.7 43.38.9 12.1	1.57 1.71	45.1 13.0	43.7 13.0	44.4 13.0	1.03
3 15.2 8.9 12.1 1.71 表 4.2. 試験用 1 段目(評価対象) 2 段目 試験用 1 段目(評価対象) 2 段目 捕集部 CP-20 CHC-50 捕集部 0 0	8.9 12.1	1.71	13.0	13.0	13.0	1.00
表 4.2. 試験用ヨウ素捕集部の構成 説 4.2. 試験用 試験用 1 段目(評価対象) 2 段目 捕集部 CP-20 捕集部1 0 1						
 試験用 1 段目(評価対象) 2 段目 捕集部 CP-20 CHC-50 CP-20 THL THL	素捕集部の構成					
捕集部 CP-20 CHC-50 CP-20 捕集部1 0 0 0 0 0 0 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	没目(評価対象)	2 段目		3段目		
捕集部1 0 0 0 0 1 (単進部2) × × × × × × × × × × × × × × × × × ×	-20 CHC-50	CP-20	CHC-50	CP-20	CH	C-50
捕 (戦 つ) () × × × × × × × × × × × × × × × × ×	0	0	0	×	×	
	0	×	0	0	\bigcirc	
捕集部3 〇 〇 ×	0	×	0	×	×	



図 2.1. トリチウムサンプラーの概略図



図 2.2. サンプリング空気の温度・相対湿度と水分捕集効率の関係



図 2.3. 水分捕集部の冷却温度・圧力と水分捕集効率の関係









図 3.3. 再処理排気を用いた MEA の CO₂捕集試験



図 3.4. MEA(200ml)を入れたバブラー



図 3.5. 排気筒内空気の CO₂ 濃度とサンプラーに流入する CO₂ 量の関係



図 3.6. 各 HTO 混入量に対する³H の測定スペクトル



図 3.7. 調製試料中に含まれる HTO 量と¹⁴C 放射能の関係



図 3.8. サンプリング空気の温度と相対湿度の関係





図 4.2. 活性炭含浸ろ紙 (CP-20)



図 4.3. 活性炭カートリッジ (CHC-50)



CP-20とCHC-50の併用による日本精錬効率[%]



図 4.5. ヨウ素捕集効率の流量依存性 エラーは測定誤差(1 g) に基づく誤差の伝播より評価