

# ルテニウム除去システムに関する 信頼性確認試験

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1986年11月



日立造船株式会社

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical  
Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation)

PNC TJ4125 86-002

1986年11月

## ルテニウム除去システムに関する信頼性確認試験

小野瀬 研二<sup>\*</sup> 武川 哲也<sup>\*</sup>  
越智英治<sup>\*</sup>

### 要旨

現在、動力炉・核燃料開発事業団東海再処理工場で設計中の焼却施設で、揮発性ルテニウムの除去のために用いているシリカゲルフィルタおよびスクラバ、HEPAフィルタの信頼性確認試験を行なった。

シリカゲルフィルタでは、長期間の模擬オフガスへの曝気および高濃度NO<sub>x</sub>(1%)の模擬オフガスへの曝気を行ない、ルテニウムの除染性能を試験した。また、プラントシャットダウン時のエアページによる吸着ルテニウムの再飛散の可能性をみるため、エアページ後のルテニウムの分布を調べた。

スクラバとHEPAフィルタは、焼却施設の設計で用いているスクラバ+HEPA、HEPA+HEPAの2ケースでの除染性能を試験した。

結果は以下の通りであった。

---

本報告書は、日立造船株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

事業団担当者名：今哲郎、市坪浩二（技術開発部建設室）

\* 日立造船株式会社陸本部原子力事業部設計部

- シリカゲルフィルタ ( 模擬オフガスNO<sub>x</sub>100ppm、水分3.8vol% ) : D F = 10<sup>3</sup>  
50Hr～2,400Hr迄の通気
- " ( 模擬オフガスNO<sub>x</sub>1vol%、水分3.8vol% ) : D F = 10<sup>3</sup>  
1Hr～120Hr迄の通気
- スクラバ+HEPAフィルタ : スクラバのD F = 10<sup>3</sup>  
HEPAフィルタのD F = 2～3
- HEPAフィルタ+HEPAフィルタ : 1段目HEPAフィルタのD F = 10  
2段目 " のD F = 1
- 吸着ルテニウムの再飛散は生じなかった。

以上より、設計中の焼却施設のルテニウム吸着フィルタの性能は100日間安定であり、NO<sub>x</sub>に対してはさらに500日間悪影響のないことがわかった。また、スクラバやHEPAフィルタの除染性能も設計値を満足することがわかった。

これより、焼却施設ではRu吸着フィルタのシリカゲル交換は5年間必要がなく、エアページのルテニウム再飛散に対する特別な対策を行う必要はないという結論を得られた。

PNC TJ4125 86-002

NOV. , 1986

Studies on the Ruthenium Decontamination Factor across the newly designed off-gas treatment units for LLW Incineration Facilities

Kenji Onose \* , Tetsuya Takekawa \*

Eiji Ochi \*

### Abstract

Ruthenium decontamination factor (DFs) across a system consisting of silica gel filter, scrubber and HEPA filter are evaluated for incineration facilities to be installed (herein after called IF) in the Tokai Reprocessing Plant of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

After the silica gel filter has been exposed to a synthetic gas under the conditions specified below, Ru DFs is measured.

At the same time, a distribution of the absorbed ruthenium in the silica gel filter is examined after purging the filter with air in order to evaluate the possibility of desorption of trayyed ruthenium. The ruthenium DFs of the scrubber and HEPA filter are tested in two cases of a scrubber with one (1) HEPA filter and two (2) HEPA filters in series.

The test results obtained are as follows.

---

Worked performed under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison : Kouji Ichitubo

\* Design Department, Nuclear Division,

Plant & Machinery Headquarters, Hitachi Zosen Corp.

- o Silica gel filter (The synthetic gas constituted 100ppm NO<sub>x</sub> and 3.8vol%H<sub>2</sub>O )  
Exposure time 50Hr~2,400Hr  
: D F = 10<sup>3</sup>
- o Silica gel filter (The synthetic gas constituted 1vol% NO<sub>x</sub> and 3.8vol%H<sub>2</sub>O )  
Exposure time 1Hr~120Hr  
: D F = 10<sup>3</sup>
- o Scrubber with HEPA filter : Scrubber D F = 10<sup>3</sup>  
HEPA filter D F = 2~3
- o Two HEPA filters in series : First HEPA filter D F = 10  
Second HEPA filter D F = 1
- o A desorption of the absorbed ruthenium was not observed.

From the results of proving experiments, it is found that a performance of the silica gel filter is might be stable for 100 days, which is to be equivalent to annual operating days of IF, and a negative effect due to NO<sub>x</sub> constituted might not be expected for almost 500 days. It is also found that Ru DFs of the scrubber and HEPA filter exceeds the design value. In conclusion it might be said that the silica gel element in the Ru filter could be in service continually for 5 years without exchange operation, and also no special measure would be needed to protect the desorption of Ruthenium in the occassion of air purging of the filter.

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 目 的 .....	3
3. 試験内容と方法 .....	4
3.1 試験項目と内容 .....	4
3.1.1 シリカゲル吸着フィルタに関する確認試験 .....	4
3.1.2 多段HEPAフィルタのルテニウム除染性能確認試験 .....	7
3.1.3 各試験における模擬オフガス通気条件 .....	7
3.1.4 長期安定性試験と加速試験のサンプルナンバー .....	9
3.2 試験方法と装置 .....	10
3.2.1 概 要 .....	10
3.2.2 シリカゲルカラムへのオフガス曝露 .....	11
3.2.3 DF測定試験 .....	12
3.2.4 脱 離 試 験 .....	17
3.2.5 試験に用いた器具 .....	19
3.2.6 試験に用いた薬品 .....	19
3.2.7 試験に用いたフィルタ .....	19
3.2.8 試 験 装 置 .....	19
3.3 測 定 方 法 .....	23
3.3.1 測定器の計数効率の確認 .....	23
3.3.2 ルテニウムの定量 .....	24

3.3.3 測定回数、測定時間	25
3.3.4 吸収液中の <sup>106</sup> Ru量の測定	25
4. 試験結果	26
4.1 測定データおよびその統計的取扱	26
4.2 Ru濃度について	28
5. 考察	61
5.1 シリカゲルの長期安定性について	61
5.2 ルテニウムの再飛散について	70
5.3 HEPAフィルタおよびスクラバについて	73
5.4 HEPAフィルタ捕集物質について	76
6. まとめ	77
7. 焼却施設調整設計への適用	78
8. 参考文献	92
9. 付録-1 <sup>106</sup> Ru成績表	93

## 1. 緒 言

核燃料サイクルの一環である使用済み核燃料の再処理工程から発生する廃棄物は様々な F.P (Fission Product : 核分裂生成物) に汚染されている。

この F.P のうち放射性ルテニウム ( $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  等) は生成量が多いことや半減期が比較的長いこと等により廃棄物中の放射性物質に占める割合が高い、そのため再処理工場の放射性廃棄物焼却処理施設においてはいかにルテニウムを除去するかが重要なポイントの一つとなる。

ところがルテニウムはその化学的挙動が非常に複雑かつ不明瞭であり、しかも高温下で生成する四酸化ルテニウムは高い蒸気圧を示す。そのため、廃棄物の焼却処理に伴って廃棄物中の放射性ルテニウムがどの様な挙動を示すかが明確でなく、また気体となってオフガス中に移行する可能性がかなり高いと考えられている。

一般に、放射性廃棄物焼却設備のオフガス処理系は物理的にダスト粒子を捕集するフィルタ類の組合せによって構成していることが多く、これらによって揮発性の放射性核種を捕集するとはできないと考えられている。

従って、再処理工場の放射性廃棄物焼却処理施設の設計に当っては廃棄物中のルテニウムが焼却に伴って揮発し、気体としてオフガス中に移行することを想定して、放射性ルテニウムに対する除染性能を確保できるようにする必要がある。

この様な状況から、先に行われた焼却施設詳細設計に於ては、工学試験 “オフガス処理系機器の Ru に対する D.F 確認試験” を実施し次の様な知見を得た。

### (1) ルテニウム除去用フィルタについて。

揮発したルテニウムを除去するためのフィルタとしてシリカゲルによる吸着フィルタを用いるのが有効である。

ただし、使用条件として温度 75~85°C、水分 3.8 vol% 以下にする必要がある。

(2) 機器のD Fについて。

各プロセス機器はその使用条件下においてルテニウムに対し次の様なD F（除染係数）を有する。（ただし安全側の評価である）

- 焼却炉 : ~1
- バグフィルタ : ~1
- H E P A フィルタ : 10
- スクラバ : 10
- Ru 吸着フィルタ :  $10^3$

これらの知見により動燃事業団東海再処理工場に設置する新規焼却施設に於てはスクラバ、Ru吸着フィルタ、HEPAフィルタによりルテニウムを除去するものとして設計が進められている。

しかし、実際のプラントにシリカゲルによるRu吸着フィルタを設置するにあたっては、長期にわたる使用によってシリカゲルのD Fがどの様に変化するかという事、つまり耐久性や長期安定性についての確認や、プラントシャットダウン時等の非常時における評価が必要である。

また、各機器単体で調べたD Fと機器を組合せた時のD Fが異なる可能性も考えられ、これらに関する評価も必要である。

今回の信頼性確認試験は以上の様な背景から実施したものであり、オフガス中のNO<sub>x</sub>によるシリカゲルの劣化、シリカゲルに吸着したルテニウムのエアページによる脱離、HEPAフィルタやスクラバの除染性能への組合せによる影響およびHEPAフィルタ捕集物質について調査したものである。

## 2. 目的

焼却施設で焼却処理する可燃性固体廃棄物中の主要な核種であるルテニウムに対して、除去システム全体の信頼性確保が極要である。

現在、調整設計中の焼却施設のルテニウム除去システムは、シリカゲル吸着フィルタ、HEPAフィルタ及びスクラバにより構成される。本試験は<sup>106</sup>Ruトレーサーを使用し、実機と同一条件下におけるシリカゲル吸着フィルタの長期安定性（寿命）とHEPAフィルタ（2段組合せ）のルテニウム除染性能の確認を行い、併せてHEPAフィルタ捕集物質の調査を行うことによってそのルテニウム除去システムの信頼性の評価と設計内容の妥当性を確認するとともに、安全審査用の参考データ及び安全運転のための基礎データを得ることを目的として実施した。

### 3. 試験内容と方法

#### 3.1 試験項目と内容

##### 3.1.1 シリカゲル吸着フィルタに関する確認試験

シリカゲルのルテニウムに対する吸着性能は、オフガス中のNO<sub>x</sub>への長期間曝露により低下する。また、プラントシャットダウン時のエアバージ等により吸着されていたルテニウムが脱離しないかという懸念がある。

このため、本試験では実機と同一条件のNO<sub>x</sub>濃度(100ppm)における除去性能の経時変化確認試験(長期安定性試験)と、エアバージに伴うルテニウム不脱離性確認試験(脱離試験)を行った。

また、実機より高いNO<sub>x</sub>濃度(10,000ppm)における除去性能の経時変化についても試験(加速試験)を行ない、シリカゲルの寿命(交換時期)について総合評価した。

###### (1) 長期安定性試験

実機のオフガスと同一の組成、温度(3.1.3項 表3.4①、② 参照)に調整したガスを最長2,400時間シリカゲルカラム(30φ×950Hシリカゲル充填量0.19l)に通じ、その後通気時間毎のDFを測定してDFの経時変化を評価した。オフガス中への曝露時間は7ステップとし、NO<sub>x</sub>濃度100ppmのオフガスを次表の時間通過させた。

表-3.1 長期安定性試験曝露時間

ステップ	1	2	3	4	5	6	7
オフガス中への曝露時間(Hr)	50	100	250	500	1,500	2,000	2,400

通気時のガスは水分適正値と過剰値の場合の長期安定性を見るため、3.1.3項 表-3.4①，②の2ケースとし、都合14ケースの試料について測定を行なった。また、ルテニウムはDF測定時のみ通過させるものとし、測定時のガスは通気時のものと同じ組成温度のものを用いた。

DFの測定については、データの信頼性を高めるため各ケース2回づつ測定することとした。

## (2) 加速試験

NO<sub>x</sub> 濃度10,000ppmに調整したオフガス（3.1.3 表-3.4①参照）を最長120時間（焼却施設の運転時間5年分に相当）シリカゲルカラムに通じ、その後、各通気時間毎のDFを測定してDFの経時変化を評価した。

オフガス中の曝露時間は10ステップとし、NO<sub>x</sub> 濃度10,000ppmのオフガスを次表の時間通過させた。

表-3.2 加速試験曝露時間及び相当運転時間

ステップ	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
オフガス中の曝露時間(Hr)	1	2.5	5	15	20	24	48	72	96	120
相当運転時間(Hr)	100	250	500	1,500	2,000	2,400	200	300	400	500

通気時のガスは3.1.3項表3.4①の条件とし、10ケースの試料について測定を行なった。また、ルテニウムはDFの測定時のみ通過させるものとし、測定時のオフガスは通気時のものと同じ組成、温度のものを用いた。

DFの測定については、データの信頼性を高めるため各ケース2回づつ測定することとした。

### (3) 脱離試験

竹状に10cm単位で10ブロックに分割し得るシリカゲルカラムに(図-3.1.0参照)ルテニウムを一定時間(約4時間)通過させ、吸着させたのち各ブロック毎にシリカゲルを一定量サンプリングし、そのルテニウム吸着量を測定した。

その後、35時間及び70時間エアページを行ない、各ブロック毎のルテニウム吸着量を測定してルテニウムの脱離を評価した。

なお、ルテニウム通過時のオフガス組成、温度は実機と同一条件(3.1.3項表3.4①参照)とした。また、ルテニウム吸着量の測定はデータの信頼性を高めるため2回づつ測定することとした。

表-3.3 脱離試験ページ時間

ケース	1	2	備考
ページ時間 (Hr)	35	70	ページ用空気は室内 から取り入れ、温度 は室温とした。
試験回数 (回)	2	2	

### 3.1.2 多段HEPAフィルタのルテニウム除染性能確認試験

HEPAフィルタ2段構成時およびスクラバとHEPAフィルタ（1段）構成時の各DFを測定した。

HEPAフィルタを2段にしたのは、“オフガス処理系機器のRuに対するDF確認試験（以降「確認試験」という）”で2枚重ねのものを試験したが実際のHEPAフィルタでは1枚のものが2段になっているため、より実機に近い条件でDFを測定するためである。また、HEPAフィルタ（1段）としたのは、現在調整設計中のものはスクラバからHEPAフィルタへシリーズにつながっているためである。

また、DFの測定と共にHEPAフィルタに捕集された物質をX線解析により確認した。

なお、試験回数については2回、DFの測定についても2回づつ行った。

#### (1) HEPAフィルタ+HEPAフィルタ

HEPAフィルタを2段構成とし、実機と同一条件の排ガス組成、温度（3.1.3項表3.4③参照）に調整したガスを通じて各段のHEPAフィルタのDFと2段総合のDFを測定した。

#### (2) スクラバ+HEPAフィルタ（1段）

スクラバの後段にHEPAフィルタ（1段）を配置した機構とし、実機と同一条件のオフガス組成、温度（3.1.3項表3.4③参照）に調整したガスを通じ、各機器及び総合のDFを測定した。

#### (3) X線解析

(1) 及び(2)の試験後、HEPAフィルタに捕集された物質をX線解析により確認した。

### 3.1.3 各試験における模擬オフガス通気条件

#### (1) オフガス組成及び温度

各試験におけるオフガス組成及び温度は表-3.4の通りとした。

表-3.4 オフガス組成及び温度

項目 No.	温 度 (°C)	N <sub>2</sub> (%)	O <sub>2</sub> (%)	H <sub>2</sub> O (%)	C O <sub>2</sub> (%)	N O <sub>x</sub> (ppm)
①	80	77.7	13.1	3.8	5.4	10,000 100
②	80	74.4	12.4	8.0	5.2	100
③	78	77.5	14.4	3.7	4.4	100

①: Ru 吸着フィルタ長期安定性試験時 (N O<sub>x</sub>: 100 ppm)

Ru 吸着フィルタ加速試験時 (N O<sub>x</sub>: 10,000 ppm)

②: Ru 吸着フィルタ長期安定性試験時

③: HEPA フィルタ、スクラバ除染性能試験時

#### (2) シリカゲルカラム、HEPA フィルタの通気流量

プロセス機器の設計に合わせた線速とするため、シリカゲルカラム又はHEPA フィルタ 1 本当に 4 N l/minとした。

### 3.1.4 長期安定性試験と加速試験のサンプルナンバー

長期安定性試験と加速試験のサンプルナンバーと試験条件の関係を下表に示す。

表-3.5 サンプルナンバーと試験条件一覧表

サンプル No	ガス No	曝露時間 (Hr)	NOx 濃度 (%)	サンプル No	ガス No	曝露時間 (Hr)	NOx 濃度 (%)
A-1	①	1,500	0.01	B-1	①	1	1
"	②	"	"	B-2	"	2.5	"
A-2	①	100	"	B-3	"	5	"
"	②	"	"	B-4	"	15	"
A-3	①	250	"	B-5	"	20	"
"	②	"	"	B-6	"	24	"
A-4	①	500	"	B-7	"	48	"
"	②	"	"	B-8	"	72	"
A-5	①	1,500	"	B-9	"	96	"
"	②	"	"	B-10	"	120	"
A-6	①	2,000	"				
"	②	"	"				
A-7	①	2,400	"				
"	②	"	"				

### 3.2 試験方法と装置

#### 3.2.1 概 要

今回の試験における試験項目は前項で述べた通りであるが、長期安定性試験と加速試験がほとんど同じ内容の試験であることに着目し、次の様に分類整理した。

##### (i) シリカゲルへのオフガス曝露

(a) 長期安定性試験のためのシリカゲルカラム試料の作成

(b) 加速試験のためのシリカゲルカラム試料の作成

##### (ii) $^{106}\text{Ru}$ を用いた除染性能試験

(a) シリカゲルカラムのDF測定

(b) HEPA フィルタ及びスクラバのDF測定

##### (iii) そ の 他

(a) 脱離試験

(b) X線解析

これらのうち (ii) については、焼却施設詳細設計で実施した「確認試験」と同内容であるので試験方法もこれに準拠した。

また (i) はコールドであり (ii)、(iii) はホット試験となるため、(i) は当社技術研究所で実施し、(ii)、(iii) は大阪府立放射線中央研究所で実施した。

### 3.2.2 シリカゲルカラムへのオフガス曝露（模擬オフガス通気試験）

本試験は、長期安定性試験、加速試験に供する試料を作成するため、カラムに入れたシリカゲルに模擬オフガスを通気させたものである。

#### (1) 試験方法

$N_2$ ,  $O_2$ ,  $CO_2$  及び  $N_2 + NO_x$  の各標準ガスと乾き空気、水蒸気飽和空気を混合加熱して 3.1.3 で述べた模擬オフガス（表-3.4 中の①と②）を作成して、80 °C に保温しシリカゲルカラムに所定の時間（表-3.1 表-3.2 参照）通気してルテニウムに対する除染性能測定試験に供する試料を作成した。

#### (2) 試験装置

添付図-3.1 に模擬オフガス通気装置のフローを示した。以下に装置の説明をする。

(a) 各組成のガスを作成するために、 $N_2$ ,  $CO_2$ ,  $O_2$ ,  $N_2 + NO_x$  のボンベよりそれぞれのガスを混合ヘッダに導いて混合させ、さらに水蒸気発生器からの湿り空気をガス加熱混合器で混合させる。

その後、ガス分岐ヘッダにより各シリカゲルカラムへ導く。ガス量は全てニードル弁付流量計、又はニードル弁で調整する。

(b) 混合ガスはガス加熱混合器により所定の温度まで加熱する。

分岐ヘッダからカラム迄は十分保温し、シリカゲルカラムはヒータにより所定の温度に維持する。

(c) オフガスはオフガスヘッダに集め、そのまま大気へ放出する。

#### (3) 運転方法

模擬オフガス通気装置は以下の様に運転するものとした。

(i) 通気試験を行なうまえに、水蒸気発生装置からの水分量を測定し、各ガス流量を確定する。

(ii) 通気量は実機の  $R_u$  吸着フィルタの線速と、シリカゲルカラム中の線速がほぼ等しくなる様な流量として、 $4 Nl/min$  と定める。

(iii) 水蒸気発生装置は四ッ口フラスコ及びマントルヒータから成り、フラスコ内の水温は 50 °C とする。

- (iv) 四ッ口フラスコへの蒸留水の補給は適宜分液ロートにより行う。
- (v) 温度記録は水蒸気発生器、ガス加熱混合器、同出口、シリカゲルカラムの各点で行う。温度調整は水蒸気発生器、ガス加熱混合器、シリカゲルカラムの各点で自動的に行う。
- (vi) 長期安定性試験用ガスラインと加速試験用ガスラインは、ストレートユニオンにより切り替えるようにする。

### 3.2.3 D F測定試験

#### (1) 試験方法

模擬オフガスは3.2.2と同様各種標準ガスの加熱混合により作成するが、これに更に $^{106}\text{Ru}$ を混合して各フィルタ等に通気する。

このオフガスをフィルタの前後で一定時間づつ全量サンプリングし、インピングヤーでオフガス中の $^{106}\text{Ru}$ を捕集し、放射能測定によりフィルタ入口と出口におけるオフガス中の $^{106}\text{Ru}$ 量を定量する。

なお、模擬オフガスの組成等については3.1.3で述べた通りであるが、加速試験における試料の除染性能試験時においてもNO<sub>x</sub>濃度は100 ppmとした。

#### (2) 試験装置

下記の試験装置のフロー図を示す。

図-3.2 シリカゲルカラム D F測定装置フロー

図-3.3 2段HEPAフィルタ "

図-3.4 スクラバ+HEPA "

これらの試験装置は基本的に同一のものであり、各フィルタの前後におけるオフガスをサンプリングしてその中の $^{106}\text{Ru}$ を個々の独立した吸収ラインで捕集するというものである。装置の構成部分について以下に説明する。

#### (a) RuO<sub>4</sub>発生装置

本装置はRuCl<sub>3</sub>-HCl水溶液中のルテニウムを酸化して気体状のRuO<sub>4</sub>にしてガス混合器に供給するものであり、水蒸気発生装置も兼ねている。

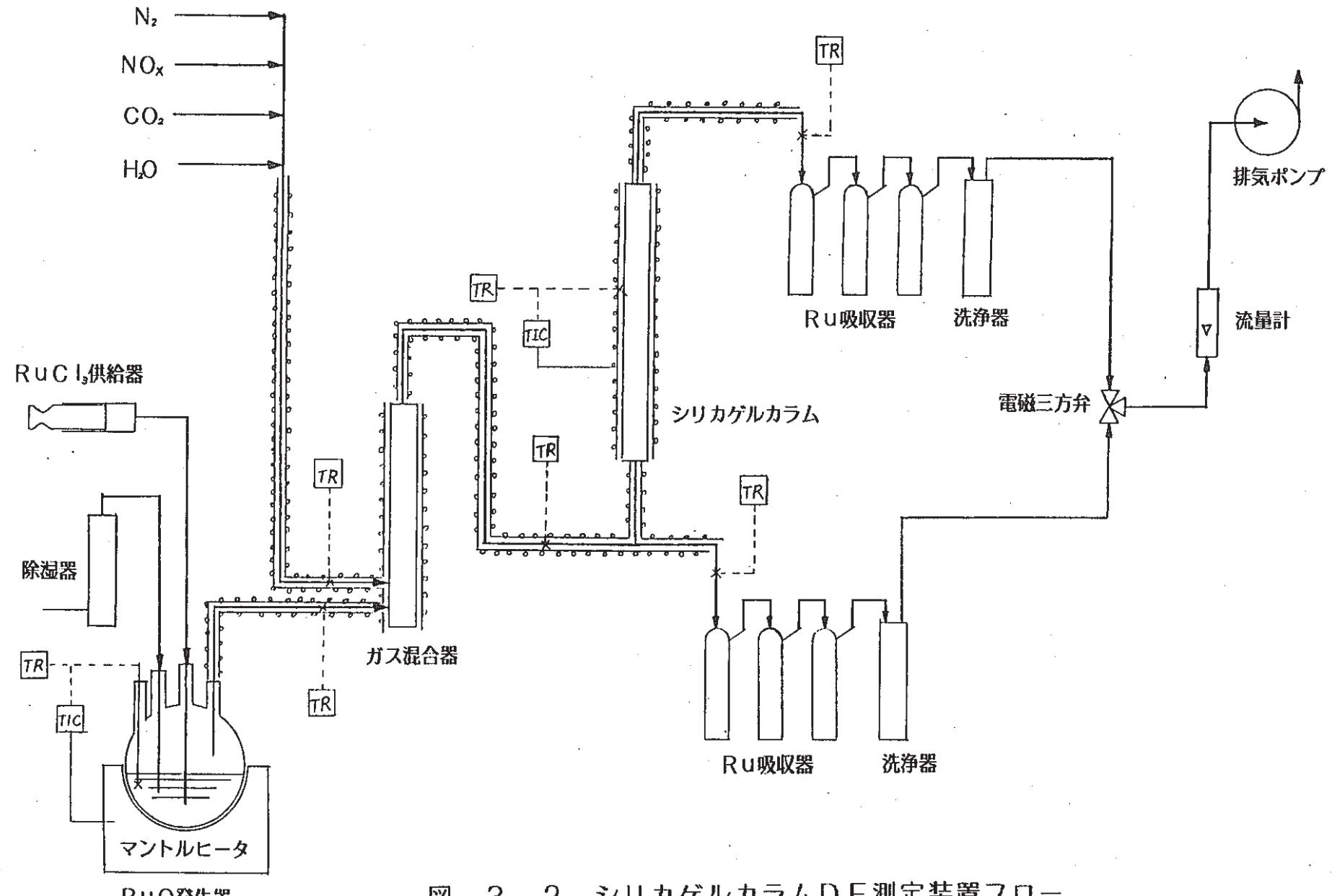


図-3.2 シリカゲルカラムDF測定装置フロー

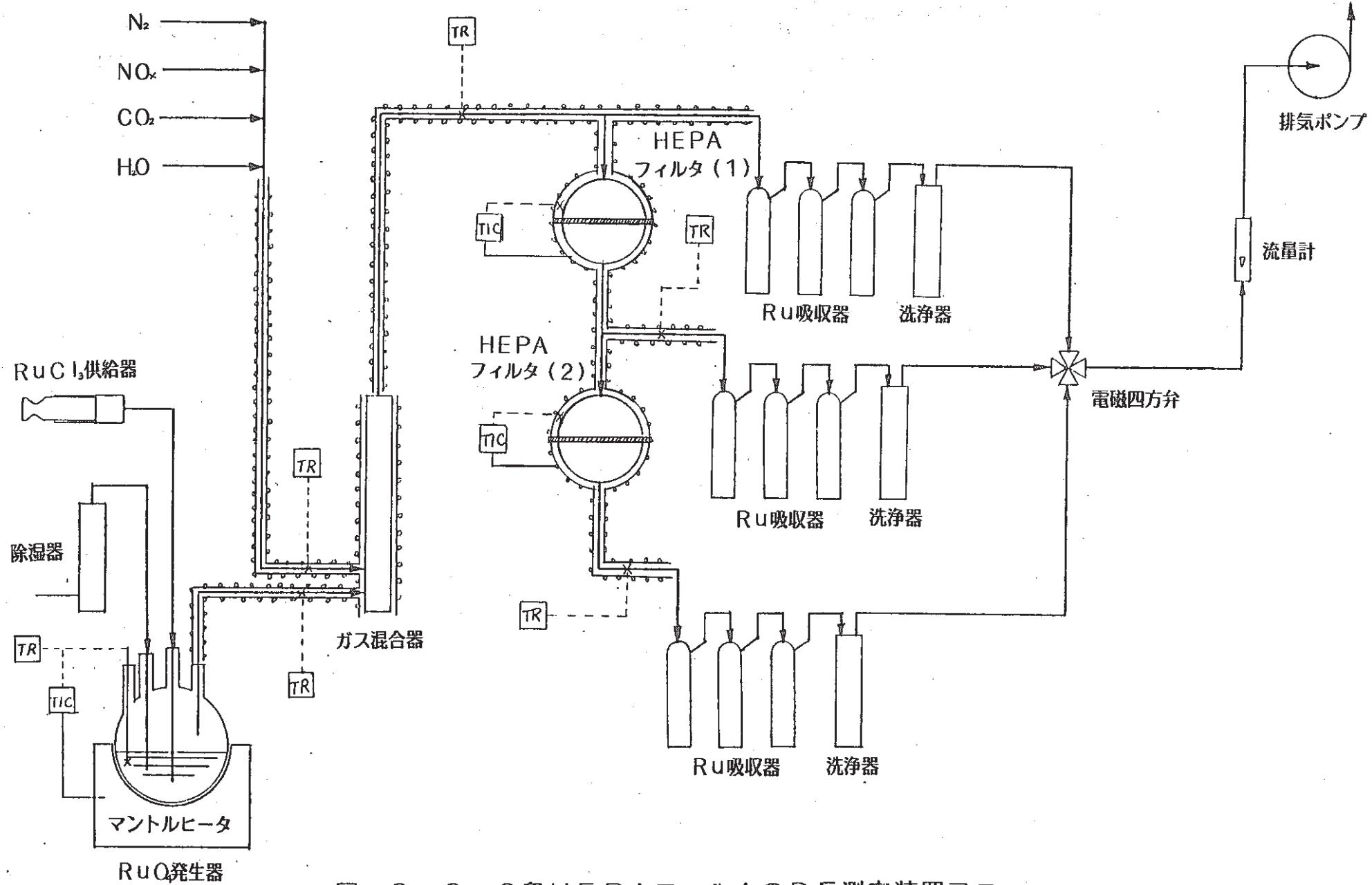


図-3.3 2段HEPAフィルタのDF測定装置フロー

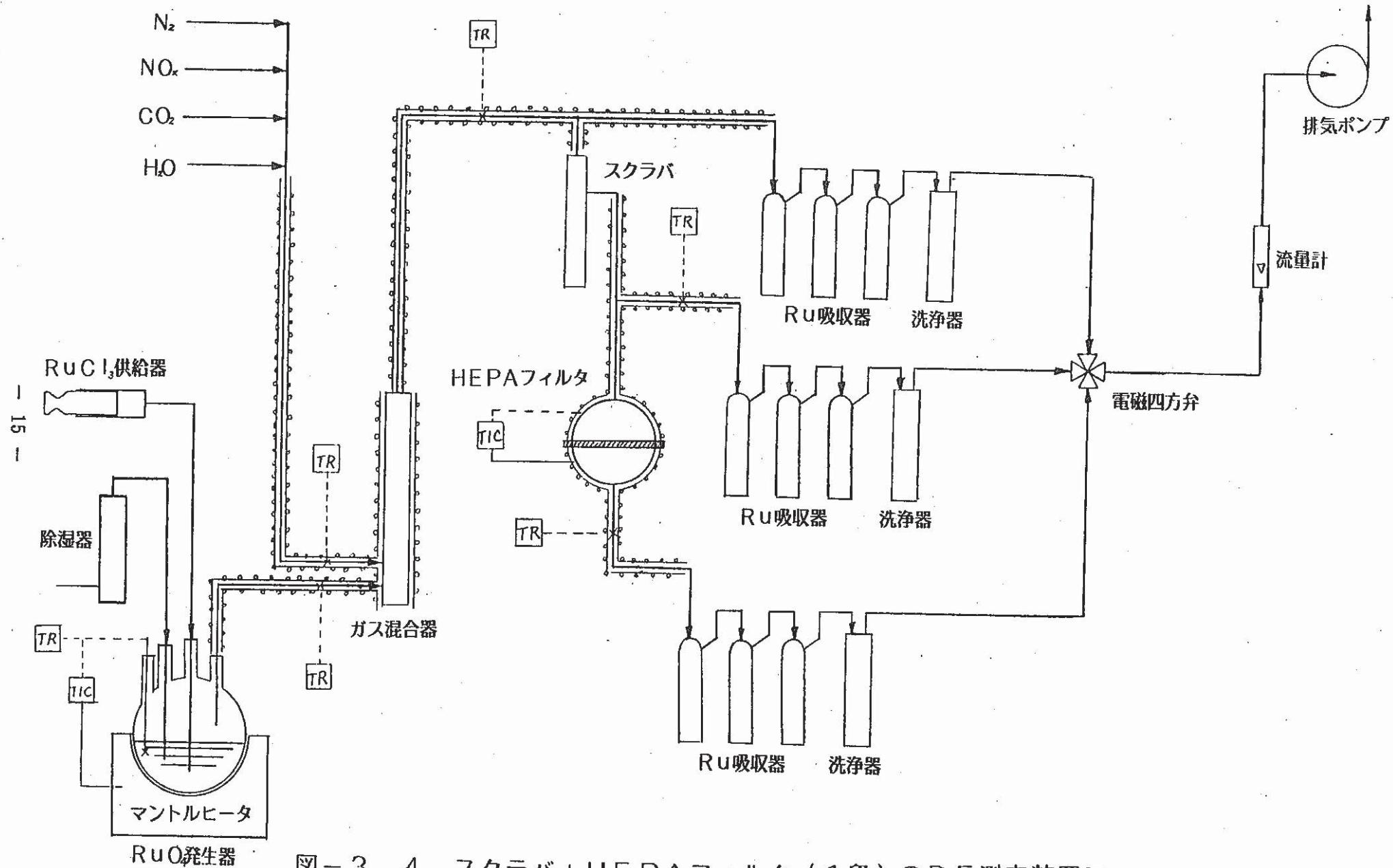


図-3.4 スクラバ+HEPAフィルタ(1段)のDF測定装置フロー

(i) RuCl<sub>3</sub>溶液供給器

注射筒内にRuCl<sub>3</sub>-HCl水溶液を入れ、マイクロフィーダ式でRuO<sub>4</sub>発生器に定量注入を行う。

(ii) RuO<sub>4</sub>発生器

四ツ口フラスコ(500ml)とし、酸化剤水溶液を約200ml入れて所定温度に加熱し、定量注入されるRuCl<sub>3</sub>と酸化剤との反応により発生するRuO<sub>4</sub>と水蒸気と共にガス混合器へ送り出す。

(b) ガス混合器

本装置はガス組成をプロセス条件に合わせるため、次の三つの系統から供給されるガスを均一に混合、加熱するものである。

(i) 大気 → RuO<sub>4</sub>発生器 (Air + H<sub>2</sub>O + RuO<sub>4</sub>)

(ii) N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>ガスピポンベ (N<sub>2</sub> + O<sub>2</sub> + CO<sub>2</sub>)

(iii) NO<sub>x</sub>ガスピポンベ (NO<sub>x</sub> + N<sub>2</sub>)

(c) 供試体

シリカゲル、HEPAフィルタメディア、スクラバ液のそれぞれに対し、できるだけ実際のプロセスに近い条件で模擬オフガスが通気される様になっている。

ただし、脱離試験に用いるシリカゲルカラムはカラムの各部分からシリカゲルを直接サンプリングするため10段分割構造とした(竹状シリカゲルカラム)。

また、スクラバをラボスケールで再現するのは非常に困難であるためスクラバの代用品として多孔質ガラスフィルタ付ガス洗浄瓶を使用することとした。

(d) Ru吸収器

フィルタ入口、出口のRu濃度を測定するためのRuO<sub>4</sub>吸収液を満たしたインピングジャー式吸収瓶である。(3段)

吸引ガスが高温であるために氷で冷却を行う。

(e) タイマー制御電磁弁

模擬オフガスの流路を一定のインターバルで自動的に切り換えるもので、これにより、各フィルタの入口側オフガスと出口側オフガスの全量サンプリングが可能になる。

(f) 吸湿器

RuO<sub>4</sub>発生器前の空気及びRu吸収後のガス（吸収瓶出口）に含まれる水分を除去するためのものである。

(g) 排気ポンプ

フィルタ供試体導入ガス及び、Ru吸収器出口ガスを吸引、排出するとともにRuO<sub>4</sub>発生器以後の系内を負圧にするためのものである。

(h) ガスマータ・流量計

オフガス量を測定するためのものである。

### 3.2.4 脱離試験

(1) 試験方法

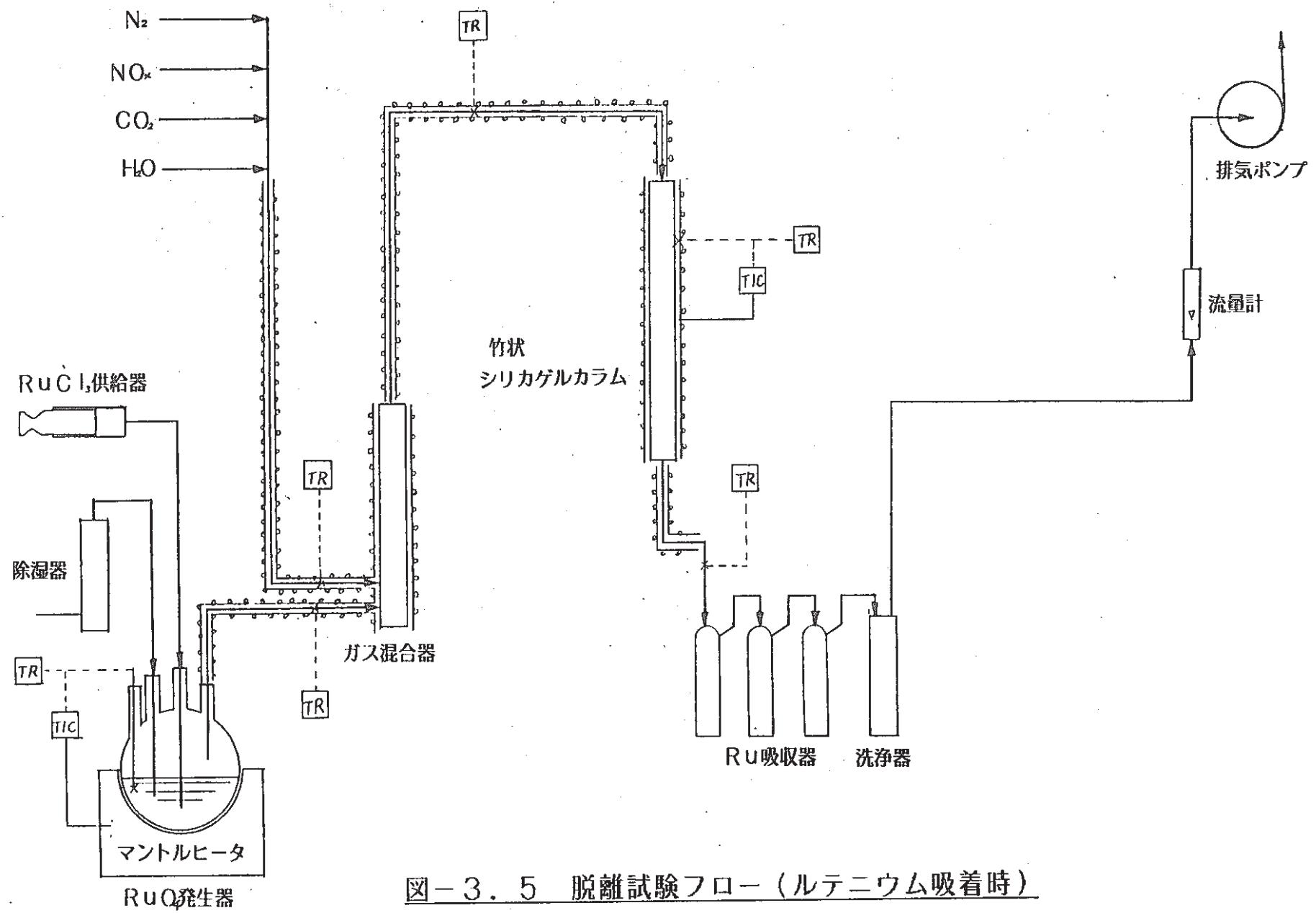
竹状カラムに入れたシリカゲルに<sup>106</sup>Ruを含む模擬オフガスを通気してルテニウムを吸着させ、各段から一定量のシリカゲルを採取してシリカゲルカラム内の<sup>106</sup>Ru分布を把握しておく。

その後同カラムにエアバージを35Hr, 70Hr行ない、同様の手法により<sup>106</sup>Ru分布の変化を調べ、エアバージによるルテニウムの脱離・再吸着の有無を調べる。

(2) 試験装置

試験装置のフローを図-3.5（ルテニウム吸着時）に示す。

具体的にはルテニウムの吸着はDF測定試験装置を流用して行なうものであり、また、図-3.5のRu吸収器はカラムを通過、若しくは、カラムから脱離して来るルテニウムの捕集用である。



### 3.2.5 試験に用いた器具

本試験に使用した器具を表-3.6に示す。

### 3.2.6 試験に用いた薬品

本試験に使用した薬品を表-3.7に示す。

### 3.2.7 試験に用いたフィルタ

本試験に使用したフィルタを表-3.8に示す。

### 3.2.8 試験装置

本試験に使用した装置の全体写真を添付写真-3.1~3.11に示す。

表-3.6 試験に使用した器具 (DF測定) 1/2

器 具	仕 様	備 考
RuO <sub>4</sub> 発生器	500ml 四ッ口フラスコ (相互理科学硝子社 B-33, H-S相当品)	添付図-3.6 写真-3.12
RuCl <sub>3</sub> 供給器	古江サイエンス㈱ 型式JP-G 0.11ml/Hr 50ml/Hr	写真-3.13
ガス混合器	円 管 型 ID 30 × 540 L	添付図-3.7 写真-3.14
吸 収 瓶	インピングジャー式吸収瓶 (柴田科学機器8003-2相当品)	写真-3.15
電 磁 弁 (3コを並用)	C.D.K 型式AD41-03-5	三方電磁弁、四方電磁弁の 代りに使用 写真-3.16
吸引ポンプ	㈱イワキポンプ型式DR-26 3.2l/min	写真-3.17
流 量 計	草野科学器械製作所 KG-1	写真-3.18
NaIシンチレータ スケーラー	アロカ㈱ TDC-501	写真-3.19
ディテクタ	アロカ㈱ NDW-351	写真-3.20
大面積型GM管	アロカ㈱ TDC-2	写真-3.21
フィルタホルダ	球型(二ッ割) ID 65 × 160 H	添付図-3.8
シリカゲルカラム	円 筒 型 ID 30 × 1080 H	添付図-3.9 写真-3.22
竹状シリカゲル カラム	円筒(10段) ID 30 × 1640 H	添付図-3.10 写真-3.23, 3.24
スクラバ	円 筒 型 ID 12 × 380 H	
吸 湿 器	充 填 式	
ガス加熱器	石英製円筒型 ID 30 × 450 L	
ガスマーター	乾式(0~50l/min)	

表-3.6 試験に使用した器具(通 気) 2/2

器 具	仕 様	備 考
ガス混合ヘッダ	φ15 Cu管	
流 量 計	小島製作所 RK-1200, RK-1400	
水蒸気発生機	四ツ口フラスコ 300ml	
マントルヒータ	300ml 四ツ口	
送 気 ポ ン プ	65GJ-H 65ℓ/min	
ガス加熱混合機	40W×30D×700L ジャマ板7枚付	
ガス分配ヘッダ	40W×30D×700L	
排気コールド トラップ	U字型ガラス管	

表-3.7 試験に使用した試薬

試薬	仕様	備考
テルニウム ( $^{106}$ Ru)	RuCl <sub>3</sub> Solution №3288/36016	付録-1
NCl	試薬特級 和光純薬 備	RuCl <sub>3</sub> 希釈用
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	試薬特級 ㈱松野園製作所	6 N 溶液
KIO <sub>4</sub>	試薬特級 キシダ化学 備	
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	試薬特級 甘糖化学産業 備	1 : 1 溶液
HCl	試薬特級 和光純薬 備	吸収液用 1 N 溶液
NaOH	試薬特級 キシダ化学 備	スクラバ用 1 N 溶液

表-3.8 本試験に使用したフィルタ

試験対象	仕様	備考
HEPAフィルタ	ニッタ 備 製造ロット番号 HB5296	
シリカゲル	富士デヴィソン化学 備 フジゲル FD-40	
スクラバ	NaOH溶液 PH9.0	

### 3.3 測定方法

$^{106}$ Ru測定法には、 $^{106}$ Ruの娘核種である $^{106}$ Rhの512KeVを使用した。

$^{106}$ Ruの崩壊図および主要エネルギーを図-3.11および表-3.10に示す。

#### 3.3.1 測定器の計数効率の確認

NaI(Tl)シンチレータの計数効率を表-3.9に示す。

表-3.9 測定機の計数効率

項目 測定機	標準線源	計数効率	備考
NaI(Tl) シンチレータ	JRK-601	$1.9536 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cpm}$	実測値

### 3.3.2 ルテニウムの定量

試験の実施によって得られた試料中の $^{106}\text{Ru}$ 量の定量は、 $^{106}\text{Ru}$ の娘核種である $^{106}\text{Rh}$ から放出される0.512 MeVの $\gamma$ 線をWell型NaIシンチレーションカウンタとシングルチャンネル波高分析器の組合せにより測定することによって行った。

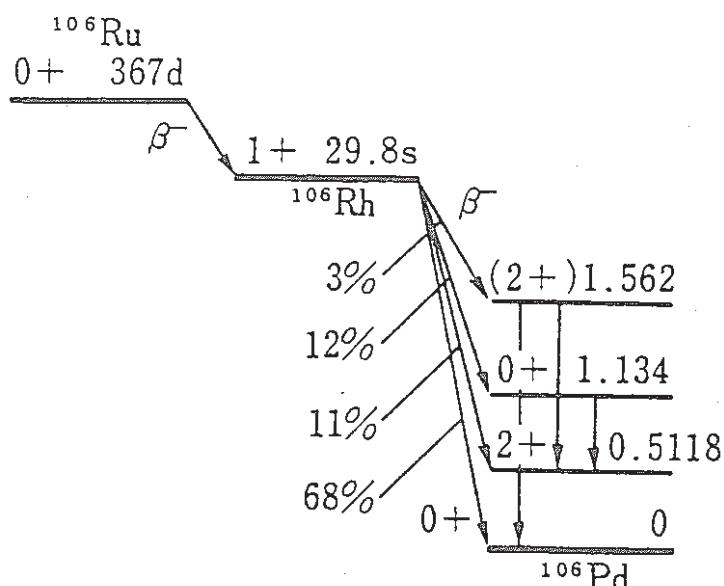


図-3.11  $^{106}\text{Ru}$  の崩壊図

表-3.10  $^{106}\text{Ru}$  の崩壊表

核種	半減期	崩壊形式	おもな $\beta$ 線(または $\alpha$ 線)のエネルギーと放出の割合	おもな $\gamma$ 線のエネルギーと放出の割合	内部転換電子の割合	照射線量率定数 $\text{R} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{h}^{-1}$ $\text{Ci}^{-1}$	おもな生成反応
$^{106}\text{Ru}$	367 d	$\beta^-$	0.039–100%				$\text{U}(n,f)^{106}\text{Ru}$
$^{106}\text{Rh}$	29.8 s	$\beta^-$	2.0 – 3% 2.44 – 12% 3.1 – 11% 3.53 – 68% 他	0.512–19% 0.622–9.8% 1.050–1.6% 他		0.11	$\beta^-$ $\downarrow$ $^{106}\text{Rh}$

### 3.3.3 測定回数、測定時間

測定にあたっては、データに有意性をもたせるため1つのサンプルについて少なくとも2回以上測定し、それぞれの計数率の差の絶対値が次に示すように $3\sigma$ 以上になるように測定時間をかけた。表-3.11に計数率の差の絶対値が $k\sigma$ 以上になる確率を示す。通常は、観測された偏差の起こる確率が0.05以下ならばその偏差は原子核崩壊現象の統計的性質以外の原因によると考えられるが、ここではさらに厳しく0.001とした。

$$\sigma = \left( \frac{r_1 + r_2}{t_1 + t_2} \right)^{1/2}$$

$\sigma$  : 標準偏差

$t_1, t_2$  : 測定時間

$r_1, r_2$  :  $t_1, t_2$ により測定された計数率

表-3.11  $|r_1 - r_2| \geq k\sigma$ となる確率P

$k$	1.0	1.2	1.4	1.6
P	0.159	0.115	0.081	0.055
$k$	2.0	2.5	3.0	4.0
P	0.023	0.006	0.001	0.00003

### 3.3.4 吸収液中の $^{106}\text{Ru}$ 量の測定

サンプリング終了後の吸収液中の $^{106}\text{Ru}$ 量は次の方法により測定した。

- ① サンプリング終了後の吸収液を各吸収液によって正確に225mlにメスアップした。
- ② 搅拌後、メスピペットにより吸収液を正確に5ml試料管に採取した。
- ③ NaI(Tl)シンチレータにより試料中の $^{106}\text{Ru}$ 量を所定時間測定した。
- ④ サンプルの計測開始前、計測終了後および計測中（サンプルの交換時）に吸収液の入っていない試料管のみによりバックグラウンドを測定した。

## 4. 試験結果

### 4.1 測定データおよびその統計的取扱

各試験の試験結果及びDFの計算結果を以下の通り表-4.1～表-4.29に、DFのみをまとめたものを表-4.30～表-4.33に示す。

試験項目	試験結果	DFをまとめたもの
長期安定性試験	表-4.1～4.14	表-4.30～4.31
加速試験	表-4.15～4.24	表-4.32
脱離試験	表-4.25～4.26	
多段フィルタ性能試験	表-4.27～4.29	表-4.33

各表に示すDFは次式によって求めた。

$$DF = \frac{(r_1 - rb) + (r_2 - rb) + (r_3 - rb)}{(R_1 - rb) + (R_2 - rb) + (R_3 - rb)}$$

r : 入口側吸収液の全計数率 (cpm)

R : 出口側吸収液の全計数率 (cpm)

rb : バックグラウンド (cpm)

添字1, 2, 3 : 吸収液の1段目、2段目、3段目を示す。

X線解析結果は図-4.1に示す。

DFの計算にあたっては、吸収液中の $^{106}\text{Ru}$ による線源計数率においてバックグラウンドの計数率に対して次に示す有意さが見られないものについては、バックグラウンドの計数率の統計上のゆらぎとみなし計算に加えなかった。

なお、吸収瓶は出入口とも3段設置し、真の計数率はこの3段の吸収液の合計からバックグラウンドを差し引いたものである。

[データの有意さについて]

バックグラウンドの計数率と同じ程度の線源計数率を示すデータについては、  
バックグラウンドの計数率との差（ここでは増加）に有意さがあるかどうか以下  
の方法により確認した。

バックグラウンドおよび線源の計数率の差が通常 95 % 誤差と呼ばれ、有意  
さの判断に用いられる 5 % 有意水準に相当する  $1.96\sigma$  以上（ここでは  
 $2.0\sigma$  とした）あればその差は有意であると判断した。

#### 4.2 R<sub>u</sub>濃度について

表-4.1～表-4.29の入口側吸収液計数率より、本試験で用いたオフガス中のR<sub>u</sub>濃度を求めた。

入口側吸収液計数率の最小は10329cpm(1段目10252cpm, 2段目77cpm)、最大は43382cpm(1段目43031cpm, 2段目351cpm)、平均は28768cpm(1段目28542cpm, 2段目226cpm)より、最小、最大、平均のR<sub>u</sub>濃度を求める。

<sup>106</sup>R<sub>u</sub>の測定では、225mlにメスアップした吸収液から正確に5ml採取したものを測定し、計数効率は $1.9536 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cpm}$ であることより最小値は；

$$10392 \text{ cpm} \times \frac{255}{5} \times 1.9536 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cpm} = 1.03 \mu\text{Ci}$$

(総放射能量)

1試料に要するオフガス通気量は、

$$4 \text{ l}/\text{min} \times 75 \text{ min} = 300 \text{ l}$$

<sup>106</sup>R<sub>u</sub>の比放射能は  $3.32 \times 10^3 \text{ Ci/g}$  であるから

$$1.03 \times 10^{-6} \text{ Ci} \times \frac{1000}{300} \times \frac{1}{3.32 \times 10^3 \text{ Ci/g}} = 1.03 \times 10^{-9} \text{ g/m}^3$$

より  $1.03 \times 10^{-6} \text{ mg/m}^3$  となる。同様にして最大値は  $4.35 \times 10^{-6} \text{ mg/m}^3$ 、平均値は  $2.88 \times 10^{-6} \text{ mg/m}^3$  となった。

以上は混合器で混合後のオフガス中のR<sub>u</sub>濃度であるが、R<sub>u</sub>ジェネレータでの発生濃度はそれぞれ次のようになる。

最小値  $8.86 \times 10^{-6} \text{ mg/m}^3$

最大値  $3.74 \times 10^{-5} \text{ mg/m}^3$

平均値  $2.48 \times 10^{-5} \text{ mg/m}^3$

表-4.1 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : A-1	オフガス タイプ : ①			オフガス通気時間 : 50 Hr
オフガス温度 : 80 °C				
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NOx = 77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01				
計測回数	1	2	3	平均
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	305	299	307	304
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	10672	12126	22044
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	80	92	163
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	10752	12218	22207
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	7	10	15
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	7	10	15
DF (A/B)	$1.54 \times 10^3$	$1.22 \times 10^3$	$1.48 \times 10^3$	$1.41 \times 10^3$
備 考			<sup>106</sup> Ru原液供給 時間を2倍にした。	

表-4.2 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-2	オフガス タイプ :	①	オフガス通気時間 :	100 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	321	321		321	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	23808	26811		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	25	173		
	$^{10^6} R_u$ の真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	23833	26984		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	11	9		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	9	ND		
	$^{10^6} R_u$ の真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	20	9		
DF (A/B)	$1.19 \times 10^3$	$3.00 \times 10^3$		$2.10 \times 10^3$	
備 考					

表-4.3 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : A-3		オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 250 Hr	
オフガス温度 : 80 °C					
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01					
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	310	310		310	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	26587	21235		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	185	117		
	<sup>106</sup> R <sub>u</sub> の真の計数率 (平均値 A c.p.m)	26772	21352		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	13		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15	6		
	<sup>106</sup> R <sub>u</sub> の真の計数率 (平均値 B c.p.m)	15	19		
DF (A/B)	$1.78 \times 10^3$	$1.12 \times 10^3$		$1.45 \times 10^3$	
備 考					

表-4.4 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-4	オフガス タイプ :	①	オフガス通気時間 :	500 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	309	310		310	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	28051	28762		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	242	189		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	28293	28951		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	15		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	12	9		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	12	24		
DF (A/B)	$2.36 \times 10^3$	$1.21 \times 10^3$		$1.79 \times 10^3$	
備 考					

表-4.5 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : A-5		オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 1500 Hr	
オフガス温度 : 80 °C					
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01					
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	318	318		318	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	31986	33953		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	344	325		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	38330	34278		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	13	30		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	18	8		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	31	38		
DF (A/B)	$1.24 \times 10^3$	902		$1.07 \times 10^3$	
備 考	入口側2段目計数率は3段目も含む	入口側、出口側 2段目計数率は 3段目も含む			

表-4.6 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-6	オフガス タイプ :	①	オフガス通気時間 :	2000 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	320	320		320	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	37924	34491		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	278	321		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	38202	34812		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	8	15		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	14	15		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	22	30		
DF (A/B)	$1.74 \times 10^3$	$1.16 \times 10^3$		$1.45 \times 10^3$	
備 考	出口側2段目計数率は3段目も含む	入口側、出口側2段目計数率は3段目も含む			

表-4.7 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : A-7		オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 2400 Hr	
オフガス温度 : 80 °C					
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 77.7 : 13.1 : 5.4 : 3.8 : 0.01					
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	317	317		317	
入口側 1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	22798	21227			
入口側 2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	237	174			
入口側 $^{10^6} R_u$ の真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	23035	21401			
出口側 1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	7	10			
出口側 2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	9	8			
出口側 $^{10^6} R_u$ の真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	16	14			
DF (A/B)	$1.44 \times 10^3$	$1.53 \times 10^3$		$1.49 \times 10^3$	
備考	入口側、出口側 二段目計数率は 三段目も含む	出口側二段目計数 率は三段目も含む			

表-4.8 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : A-1		オフガス タイプ : ②		オフガス通気時間 : 50 Hr			
オフガス温度 : 80 °C							
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01							
計測回数	1	2	3	平均	備考		
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	307	307	301	305			
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	10252	10544	27134			
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	77	80	186			
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	10329	10624	27322			
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15	11	22			
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND			
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	15	11	22			
DF (A/B)		689	966	$1.24 \times 10^3$	966		
備 考				<sup>106</sup> Ru原液供給 時間を2倍にした			

表-4.9 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-2	オフガス タイプ :	②	オフガス通気時間 :	100 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	308	307		308	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	29251	32941		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	121	310		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m)	29372	33251		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	103	43		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	9	29		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	112	62		
DF (A/B)	262	536		399	
備考					

表-4.10 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-3	オフガス タイプ :	②	オフガス通気時間 :	250 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	308	310		309	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	23509	31016		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	188	350		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	23697	31366		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	227	63		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	11		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	227	74		
DF (A/B)	104	424		264	
備 考					

表-4.11 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-4	オフガス タイプ :	②	オフガス通気時間 :	Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> =	74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01				
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	321	320		321	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	31319	30825		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	204	278		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	31523	31103		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	77	24		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	32		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	77	56		
DF (A/B)	409	555		482	
備 考					

表-4.12 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : A-5	オフガス タイプ : ②	オフガス通気時間 : 1500 Hr		
オフガス温度 : 80 °C				
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01				
計測回数				
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	1 304	2 304	3 平 均 304	備 考
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	22669	24339	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	156	148	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m)	22825	24487	
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15	49	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	20	13	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	35	62	
	DF (A/B)	652	395	524
備 考				

表-4.13 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-6	オフガス タイプ :	②	オフガス通気時間 :	2000 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	309	309		309	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	33353	27366		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	266	239		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m)	33619	27605		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	74	66		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	61	52		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	135	118		
DF (A/B)	249	234		242	
備考	入口側、出口側 二段目計数率は 三段目も含む	入口側、出口側 二段目計数率は 三段目も含む			

表-4.14 SILICAGEL FILTER 長期安定性試験 試験結果

SAMPLE NUMBER :	A-7	オフガス タイプ :	②	オフガス通気時間 :	2400 Hr
オフガス温度 :	80 °C				
オフガス組成 ***	N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub>	=	74.4 : 12.4 : 5.2 : 8.0 : 0.01		
計測回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	312	312		312	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	43031	32305		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	351	312		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	43382	32617		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	29	47		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	23	54		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	52	101		
DF (A/B)	834	323		579	
備考					

表-4.15 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-1					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 1.0 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	306	302		304	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15129	29602		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	101	176		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	15230	29778		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	8	12		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	4	7		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	12	19		
DF (A/B)	$1.27 \times 10^3$	$1.57 \times 10^3$		$1.45 \times 10^3$	
備考					

表-4.16 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-2					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 2.5 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	304	304		304	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	21202	23514		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	136	176		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	21336	23692		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	9	8		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	5	9		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	14	17		
DF (A/B)	$1.52 \times 10^3$	$1.39 \times 10^3$		$1.41 \times 10^3$	
備考					

表-4.17 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-3					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 5 Hr		オフガス温度 : 8.0 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	318	318	307	314	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	37888	37576	32190	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	319	324	212	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m)	38207	37900	32402	
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	20	ND	10	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	ND	8	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	20	ND	18	
DF (A/B)	$1.91 \times 10^3$	—	$1.80 \times 10^3$	$1.86 \times 10^3$	
備考					

表-4.18 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-4					
オフガス タイプ : ① オフガス通気時間 : 15 Hr オフガス温度 : 80 °C					
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	310	310		310	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	39679	37659		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	315	305		
	$^{10^6} R_u$ の真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	39994	37964		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	25	14		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15	14		
	$^{10^6} R_u$ の真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	40	28		
DF (A/B)	$1.00 \times 10^3$	$1.36 \times 10^3$		$1.18 \times 10^3$	
備考	入口側2段目計数率は3段目も含む	入口側、出口側2段目計数率は3段目も含む			

表-4.19 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-5					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 20 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	318	318		318	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	39966	37759		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	330	311		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m)	40296	38070		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	17		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	11	ND		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	11	17		
DF (A/B)	$3.66 \times 10^3$	$2.24 \times 10^3$		$2.95 \times 10^3$	
備考	入口側、出口側2段目計数率は3段目も含む				

表 4-20 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-6					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 24 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試 験 回 数	1	2	3	平 均	備 考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	304	304		304	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	13319	24352		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	125	237		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m)	13444	24589		
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	18		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	11	11		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m)	11	19		
DF (A/B)	$1.22 \times 10^3$	$1.29 \times 10^3$		$1.26 \times 10^3$	
備 考					

表-4.21 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-7					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 48 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	314	314		314	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	28563	27472		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	238	193		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	28801	27665		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	8	ND		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	10		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	8	10		
DF (A/B)	$3.60 \times 10^3$	$2.77 \times 10^3$		$3.19 \times 10^3$	
備考					

表-4.22 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-8					
オフガス タイプ : ① オフガス通気時間 : 72 Hr オフガス温度 : 80 °C オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数		1	2	3	平均
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)		310	310	309	310
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	27425	27350	33872	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	277	254	295	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	27702	27604	34167	
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15	ND	13	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	17	11	ND	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	32	11	13	
DF (A/B)		866	$2.51 \times 10^3$	$2.63 \times 10^3$	$2.00 \times 10^3$
備考		入口側、出口側2 段目計数率は3段 目も含む	同左		

表-4.23 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-9					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 96 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	308	308	314	310	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	39704	38585	35127	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	304	318	330	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	40008	38903	35457	
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	41	13	8	
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	23	ND	10	
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	64	13	18	
DF (A/B)	625	$2.99 \times 10^3$	$1.97 \times 10^3$	$1.86 \times 10^3$	
備考			出口側2段目計数率は3段目も含む		

表-4.24 SILICAGEL FILTER 加速試験 試験結果

SAMPLE NUMBER : B-10					
オフガス タイプ : ①		オフガス通気時間 : 120 Hr		オフガス温度 : 80 °C	
オフガス組成 *** N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 76.9 : 13.0 : 5.3 : 3.8 : 1.0					
試験回数	1	2	3	平均	備考
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	311	314		313	
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	26267	40185		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	240	271		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	26507	40456		
出口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	ND		
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	9	11		
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	9	11		
DF (A/B)	$2.95 \times 10^3$	$3.68 \times 10^3$		$3.32 \times 10^3$	
備考					

表-4.25

## シリカゲルフィルタ 脱離試験 (case 1) 試験結果

オフガastype: ① オフガス温度: 80°C $^{106}\text{Ru}$ 供給量: 2.75cc/Hr × 3.5Hr FLOW: 1段 → 10段 オフガス組成 (vol%) $\text{N}_2 : \text{O}_2 : \text{CO}_2 : \text{H}_2\text{O} : \text{NO}_x = 77.7 : 13.1 : 3.8 : 5.4 : 0.01$				
エアページ時間	Ru 吸着直後(A)	35Hr後	70Hr後(B)	
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	312	314	314	増減比 (B/A)
1段目シリカゲル計数率 (平均値 c.p.m.)	906580	749269	771698	0.85
2段目 " (平均値 c.p.m.)	67	65	66	0.99
3段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
4段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
5段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
6段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
7段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
8段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
9段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
10段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
備考	試料採取の際はカラム間のシリカゲルを混合したものを探取した。			

表-4.26

## シリカゲルフィルタ 脱離試験 (case 2) 試験結果

オフガスタイプ: ① オフガス温度: 80°C $^{106}\text{Ru}$ 供給量: 2.75cc/Hr × 3.5Hr FLOW: 1段 → 10段 オフガス組成 (vol%) $\text{N}_2 : \text{O}_2 : \text{CO}_2 : \text{H}_2\text{O} : \text{NO}_x = 77.7 : 13.1 : 3.8 : 5.4 : 0.01$				
エアページ時間	Ru 吸着直後(A)	35Hr後	70Hr後(B)	
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	306	309	311	増減比 (B/A)
1段目シリカゲル計数率 (平均値 c.p.m.)	816086	320701	365267	0.45
2段目 " (平均値 c.p.m.)	6785	1168	769	0.11
3段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
4段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
5段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
6段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
7段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
8段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
9段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
10段目 " (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND	—
備 考	試料採取の際は各カラムの底のシリカゲルを採取した。			

表-4.27 多段HEPAのDF試験 試験結果

フィルター : スクラバ+HEPA オフガス温度条件: Ru発生器液温: 80°C、ガス加熱混合器出口ガス: 84°C " 出口ガス: 82°C、スクラバ出口ガス: 76°C ガス加熱混合器: 84°C、HEPA出口ガス: 72°C、 HEPAホルダ: 65°C オフガス組成 (vol%) $N_2 : O_2 : CO : H_2O : NO_x = 77.5 : 14.4 : 3.7 : 4.4 : 0.01$				
計測回数	1	2	3	平均
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	320	306	311	312
入口側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	14338	25892	26853
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	74	175	241
	$^{106}\text{Ru}$ の真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	14412	26067	27094
途	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	11	18	14
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	14	ND
中	$^{106}\text{Ru}$ の真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	11	32	14
出	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	20	ND	21
口	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	16	12	ND
側	$^{106}\text{Ru}$ の真の計数率 (平均値 C c.p.m.)	36	12	21
	1段目のDF(A/B)	$1.31 \times 10^3$	815	$1.94 \times 10^3$
	2段目のDF(B/C)	—	3	—
	Total のDF(A/C)	—	$2.17 \times 10^3$	$1.36 \times 10^3$
備考	スクラバ液の 計数率 $27525\text{cpm}$	スクラバ液の 計数率 $32920\text{cpm}$	スクラバ液の 計数率 $35992\text{cpm}$	

表-4.28 多段HEPAのDF試験 試験結果

フィルター : HEPA+HEPA				
オフガス温度条件: 78°C				
オフガス組成 (vol%) N <sub>2</sub> :O <sub>2</sub> :CO <sub>2</sub> :H <sub>2</sub> O:NOx=77.5:14.4:4.4:3.7:0				
計測回数	1	2	3	平均
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	301	303	297	300
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	3207	6413	10034
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	26	77	102
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	3233	6490	10136
				6620
途 中	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	15	ND	11
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	7	ND	ND
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	22	ND	11
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	8	6	11
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	9	ND	ND
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 C c.p.m.)	17	6	11
	1段目のDF(A/B)	147	—	921
	2段目のDF(B/C)	1	—	1
	Total のDF(A/C)	190	1082	921
	備 考	試験にトラブル 発生のため、参考データとする		

表-4.29 多段HEPAのDF試験 試験結果

フィルター : HEPA+HEPA				
オフガス温度条件: 78°C				
オフガス組成 (vol%) N <sub>2</sub> : O <sub>2</sub> : CO <sub>2</sub> : H <sub>2</sub> O : NO <sub>x</sub> = 77.5 : 14.4 : 4.4 : 3.7 : 0.01				
計測回数	1	2	3	平均
BACK GROUND (平均値 c.p.m.)	302	307	298	
入 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	6950	9723	7539
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	58	69	62
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 A c.p.m.)	7008	9792	7601
途 中	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	364	489	323
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	11	8	ND
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 B c.p.m.)	375	497	323
出 口 側	1段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	313	396	279
	2段目吸収液計数率 (平均値 c.p.m.)	ND	ND	ND
	<sup>106</sup> Ruの真の計数率 (平均値 C c.p.m.)	313	396	279
	1段目のDF(A/B)	19	20	24
	2段目のDF(B/C)	1	1	1
	Total のDF(A/C)	22	25	27
	備 考			25

表-4.30 長期安定性試験（オフガスタイル①）のD F

試験分類	D F	備 考
A-1	1540, 1220, 1450	50Hr NO <sub>x</sub> 100ppm
A-2	1190, 3000	100Hr "
A-3	1790, 1120	250Hr "
A-4	2360, 1210	500Hr "
A-5	1240, 902	1000Hr "
A-6	1740, 1160	2000Hr "
A-7	1440, 1190	2400Hr "

表-4.31 長期安定性試験（オフガスタイル②）のD F

試験分類	D F	備 考
A-1	689, 966, 1242	50Hr NO <sub>x</sub> 100ppm
A-2	262, 536	100Hr "
A-3	104, 424	250Hr "
A-4	409, 555	500Hr "
A-5	652, 395	1000Hr "
A-6	249, 234	2000Hr "
A-7	834, 323	2400Hr "

表-4.32 加速試験のDF

試験分類	D F	備考
B-1	1270, 1570	1Hr NO <sub>x</sub> 10,000ppm
B-2	1520, 1390	2.5Hr "
B-3	1910, 1800	5Hr "
B-4	1000, 1360	15Hr "
B-5	3660, 2240	20Hr "
B-6	1220, 1280	24Hr "
B-7	3600, 2770	48Hr "
B-8	(866), 2510, 2630	72Hr "
B-9	(625), 2990, 1970	96Hr "
B-10	2950, 3680	120Hr "

表-4.33 多段HEPAフィルタ試験のDF

試験分類	スクラバDF	トータルDF	備考
スクラバ+HEPA1回目	1310	—	NO <sub>x</sub> 100ppm
" 2回目	815	2170	"
" 3回目	1940	—	"
試験分類	1段目HEPADF	トータルDF	備考
HEPA+HEPA1回目	147	190	NO <sub>x</sub> 0%
" 2回目	—	1080	"
" 3回目	921	921	"
" 4回目	19	22	NO <sub>x</sub> 100ppm
" 5回目	20	25	"
" 6回目	24	27	"

Experimental Data No.

Specimen  $\text{RuO}_2$  (HEPAE)  
 Target, Filter Cu, Ni  
 Voltage 40 kV  
 Current 30 mA  
 Full Scale Count 10000 cps  
 Time Constant 1 sec  
 Scanning Speed  $\geq 2^\circ/\text{min}$   
 Chart Speed 1 cm/min  
 Angle Mark  $1^\circ/\text{cyc}$   
 Divergence Slit / deg  
 Receiving Slit 0.3 mm  
 Scatter Slit / deg  
 Crystal LiF, EDDT, ADP  
 Detector GM, SC, PC  
 Atmosphere Air, He, Vac.  
 Date 1986.8.5

Remarks

Operator ROUA

Radiation Center of Osaka Prefecture

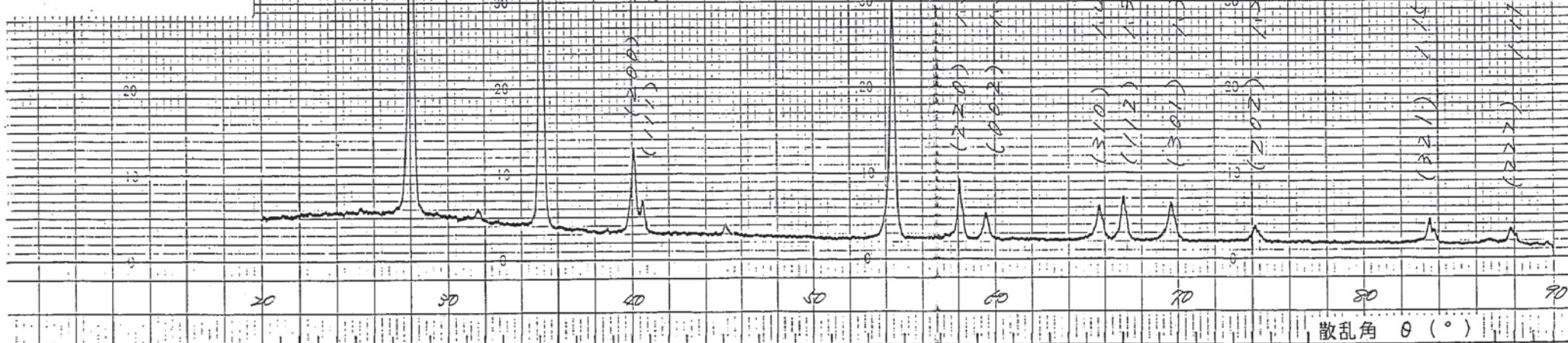


図-4.1 X線回折グラフ

PROGRAM NO.	51
MODE	71
RECYCLE	1
AXIS	1
START ANGLE	90.00
STOP ANGLE	20.00
SCROLL SPEED	(+/-)
FULL SCALE	100
TIME CONST	4.0
CHART SPEED	3.0
SMOOTHING	1.0
PEAK WIDTH	1.0
PEAK STEEP	1.0
TARGET	5

## 5. 考 察

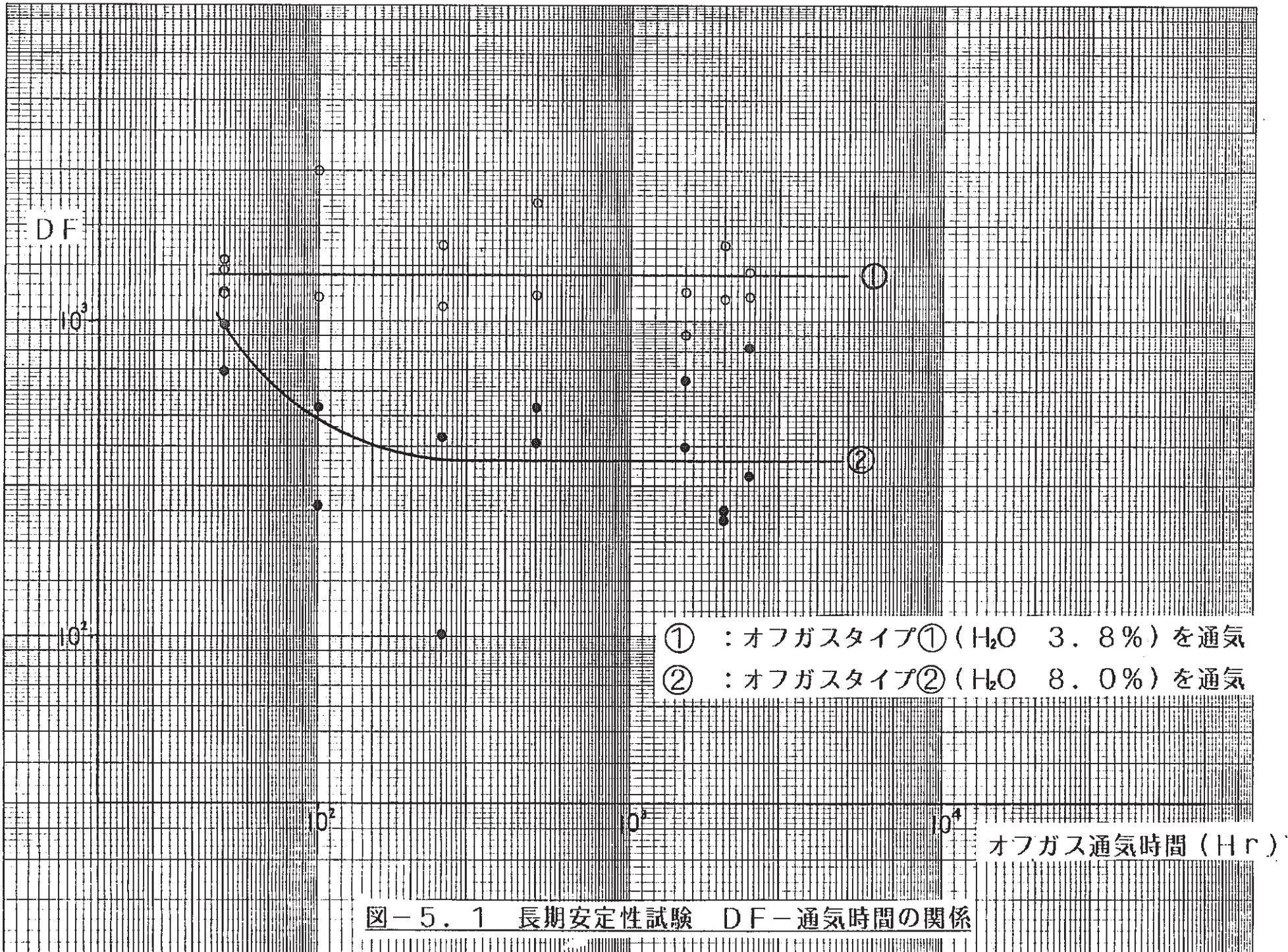
### 5.1 シリカゲルの長期安定性について

(1) ルテニウム吸着フィルタとして採用を予定しているシリカゲルの、実機と同じ組成、温度のオフガスを用いた長期間（最長2400時間）の安定性の確認を行うことを目的として実施した本試験の結果（表-4.30, 4.31及び図-5.1）より、オフガスタイプ①（組成：N<sub>2</sub>77.7%，O<sub>2</sub>13.1%，H<sub>2</sub>O3.8%，CO<sub>2</sub>5.4%，NO<sub>x</sub>100ppm）に於てはDFはオフガスの通気時間とともに変化することなく常に10<sup>3</sup>以上であった。このことより、シリカゲルはNO<sub>x</sub>により劣化せずルテニウムに対するDFが低下しないことが明らかになった。

NO<sub>x</sub>濃度は100ppmと同じであるが、水分がオフガスタイプ①に比べ8%と過剰な条件であるオフガスタイプ②（組成：N<sub>2</sub>74.4%，O<sub>2</sub>12.4%，H<sub>2</sub>O8%，CO<sub>2</sub>5.4%，NO<sub>x</sub>100ppm）の試験結果では、試験直後のDFは約10<sup>2</sup>であったが、約100時間の通気によりDFは2×10<sup>2</sup>程度まで急激に低下しそれ以後の通気時間によるDFの大きな変化は無く、2,400時間内でシリカゲルのRuの吸着に対する破壊は観察されなかった。

ここで得られた水分の増加によるDFの急激な低下は、「確認試験」に於ても確認された事項であり、ルテニウムに対するシリカゲルのDFを論ずる場合の重要なポイントと考えることができる。以上の試験結果は以下のことを示していると考えることができる。

- ① 水分によりシリカゲルのルテニウムに対するDFは支配されるが、NO<sub>x</sub>濃度100ppm程度では2400時間の通気によりNO<sub>x</sub>によるシリカゲルの劣化（又は破壊）は起こらない。
- ② 水分がシリカゲルのルテニウムに対するDF劣化の重要なファクターである。



また、オフガスタイル<sup>②</sup>に於て 100 時間通氣以降は時間の経過による D F の低下（2,400 時間以内での破過）が見られなかったが、これは、水分過剰の条件によってシリカゲルが劣化してルテニウムが破過するのではなく、シリカゲルのルテニウムに対する吸着力そのものが水分により支配されていると考えることができる。すなわち、 $\text{RuO}_4$  と  $\text{H}_2\text{O}$  との間にシリカゲルの吸着座に対する競合が生ずるため、水分の増加によりシリカゲルの吸着力が低下するものと考えられる。

$\text{H}_2\text{O}$  のシリカゲルへの吸着は物理吸着と化学吸着の 2 通りがあり、一般に相対湿度 10 % 以下の領域においては Bartel ら<sup>1)</sup> に報告されているように、シリカゲル表面のシラノール基 ( $-\text{Si}-\text{OH}$ ) と  $\text{H}_2\text{O}$  の末端基 ( $-\text{OH}$ ) の水素結合による化学吸着が主体であり、10 % 以上の領域においては Vander Waals 力による物理吸着と考えられている。

ここで、オフガスタイル<sup>①</sup>、<sup>②</sup>の水分量は相対湿度として、

オフガスタイル<sup>①</sup> 約 8 %

オフガスタイル<sup>②</sup> 約 17 %

であり、オフガスタイル<sup>①</sup>については主として化学吸着のみが生じるがオフガスタイル<sup>②</sup>については化学吸着の他物理吸着も生じるものと考えられる。

一方、ルテニウムのシリカゲルへの吸着は、その挙動が複雑であるため定説ではなく「固着」と呼ばれているが、P.W.Cains ら<sup>2)</sup> は Hans らの行った試験結果に基いて、シリカゲルに吸着したルテニウムが温水により簡単に脱離することより、ルテニウムのシリカゲルへの吸着は物理吸着であると類推している。

先のオフガスタイル<sup>①</sup>、<sup>②</sup>の水分量（相対湿度）の違いによる D F の相違、つまりオフガスタイル<sup>①</sup>の化学吸着機構領域よりもオフガスタイル<sup>②</sup>の物理吸着機構領域に於て D F の方が低下するという傾向は、P.W.Cains らの理論の傍証となろう。

また、図-5.2 にシリカゲルの水分吸着曲線を示す。

これより、オフガスタイル<sup>①</sup>、<sup>②</sup>のシリカゲルの飽和吸着水分量は、オフガス

タイプ①、②の水蒸気分圧がそれぞれ  $28.9 \text{ mmHg}$ ,  $60.8 \text{ mmHg}$  よりそれぞれ重量に対し  $3.3\%$ ,  $8.0\%$  となる。

これは、水の重量に換算するとそれぞれ  $14.5 \text{ g}$ ,  $35.1 \text{ g}$  となり、オフガスタイル①、②とも使用後数時間で飽和吸着水分量に達するため、水についてのみ着目すれば破過していることになる。

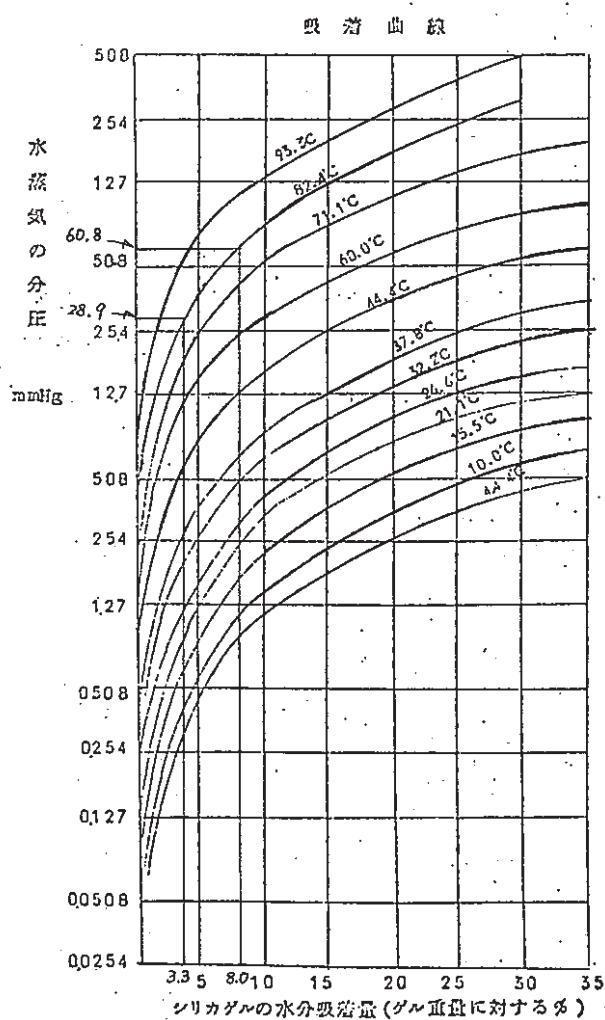


図-5.2 シリカゲルの水分吸着曲線

本試験結果によれば、 $\text{RuO}_4$ と $\text{H}_2\text{O}$ との間に競合反応が生じ水分の方が吸着速度が速く数時間で飽和に達するので、シリカゲルへの $\text{H}_2\text{O}$ と $\text{RuO}_4$ の吸着メカニズムは異なるものと考えられる。

実機のシリカゲル吸着塔への適用に於ては、オフガス中の水分4%以下となる様水分の調整を確実に行う必要がある。

また、2400時間までの使用においては、NO<sub>x</sub>濃度100ppm程度でシリカゲルのRuO<sub>4</sub>の吸着に対する劣化又は破壊がNO<sub>x</sub>により生じることはないことが明らかになった。

## (2) 加速試験について

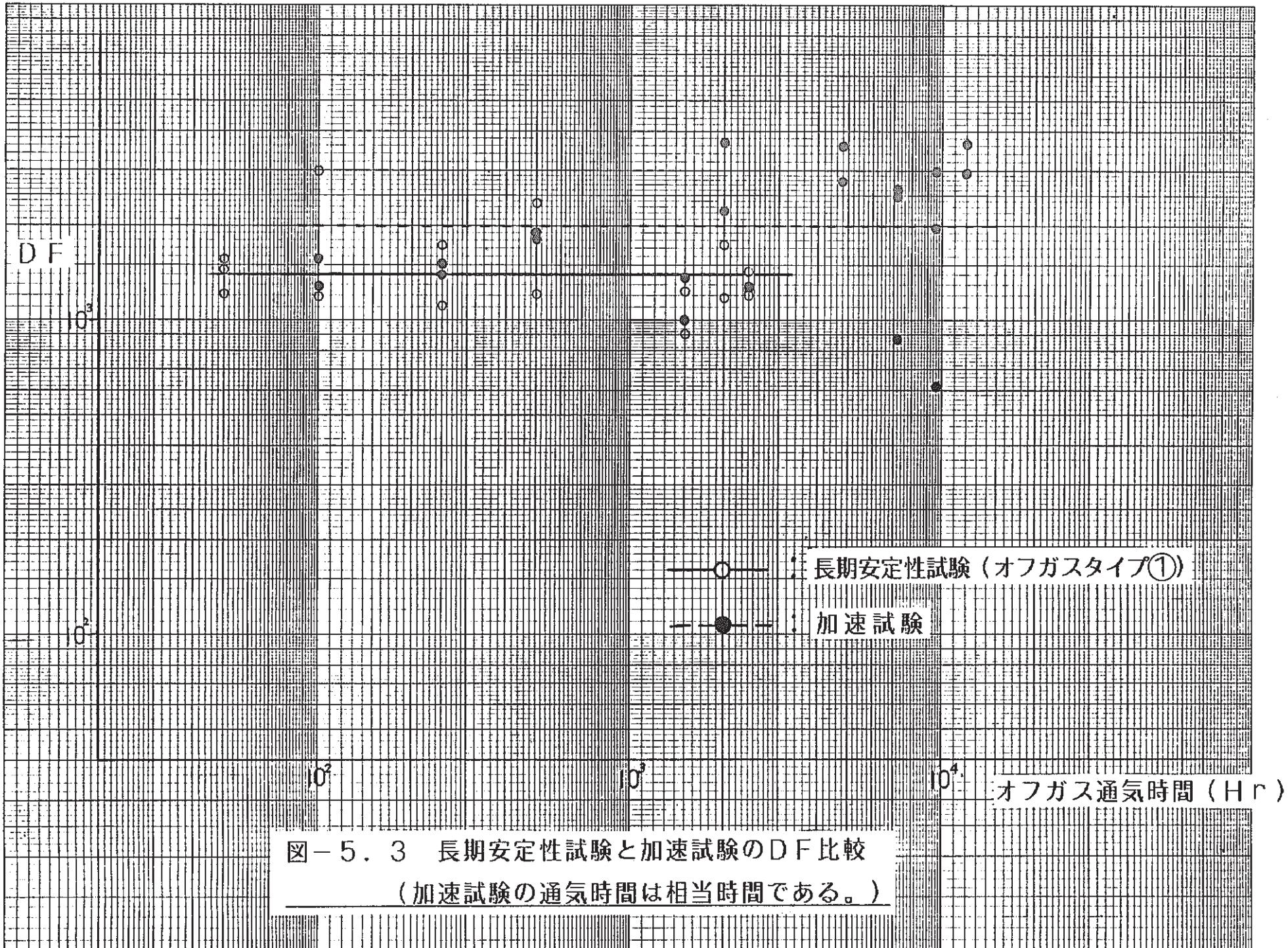
シリカゲルの長期間の使用において、シリカゲルがオフガス中のNO<sub>x</sub>により劣化又は破壊する可能性があるが、先の長期安定性試験でNO<sub>x</sub>濃度100ppm程度では2400時間内でDFが低下しないことが明らかになった。

そのため長期安定性試験よりもさらに長期間のシリカゲルの使用におけるNO<sub>x</sub>による影響を評価するために、通気ガスのNO<sub>x</sub>濃度を10,000ppmと100倍まで高くした加速試験を実施した。

試験結果（表-4.3.2及び図-5.3）より、加速試験に於てはオフガスタイル①の長期安定性試験に比べ全般的にみて通気時間と共にDFが向上しているようにみえるが中にはDFが下がるものも一部あり、これは実験精度、装置そのもののコンタミ等による誤差と考える方が妥当であろう。

以上のことより図-5.3に於て長期安定性試験と加速試験を比較すると、全通気時間範囲でほぼ同じDFが得られており、NO<sub>x</sub>による劣化のみから判断すれば約12,000時間相当までにおいてNO<sub>x</sub>濃度100ppmであればシリカゲルのNO<sub>x</sub>による劣化又は破壊はないと考えられる。

梅田ら<sup>3)</sup>によりシリカゲルのNO<sub>x</sub>による劣化長さを求める式が次の通り示されており、本試験と比較する。



$$V = 1.24 \times 10^{-2} \cdot T - 7.53 \times 10^{-8} \cdot T^2 - 6.67 \times 10^{-10} \cdot T^3$$

V : シリカゲル入口からの劣化長さ (cm)

T : 試験時間 (3 ~ 2500 Hr)

カラム直径	30 mm ,	Ru 濃度	$2.3 \times 10^{-8}$ mol/Nm <sup>3</sup>
高さ	800 mm ,	水分含有量	4 %
温度	70 °C ,	NOx 濃度	10,000 ppm
空塔速度	12 cm/sec (at 70 °C) , 吸着剤	RD ゲル	

梅田らの試験条件の詳細は不明であるが、示されている条件のみで判断すれば Ru 濃度を除きほぼ本試験と一致するために、上記の式を用いて 120 時間での劣化長さを求めると約 1.5 cm と極めて短い。

120 時間の通気時間は、100 ppm に換算して 12,000 時間に相当し、ここで、 NOx によるシリカゲルの劣化が通気された NOx 量に相関すると仮定すれば、シリカゲルの充填高さが本試験で用いたように約 85 cm あれば、本試験の結果より 12,000 時間は破過しないと考えられる。

実機でのシリカゲルの充填高さは 120 cm を計画しており、さらに長時間の使用に耐えると考えることができる。

一般に NOx 濃度の増加はシリカゲルの劣化をはやめるものであり、同量の NOx 量を濃度を変えて通気する場合には濃度が高い方が反応または吸着速度、つまり劣化ははやく進行するものと考えられ、通気した総 NOx 量を同じとし濃度と通気時間により調整した場合には、濃度を高くし時間を短くした方が劣化ははやく進行するものと考えられる。

本試験に於ては NOx 濃度を長期安定性試験の 100 倍とし、通気の時間をこの値にスライドさせた時間も 100 倍と見なして試験したが、これは実際の試験環境に対しかなりの安全サイドの仮定となっており、実際にはもう少し劣化の進行は遅くなると思われる。

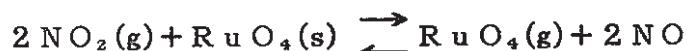
以上より、オフガス中のNO<sub>x</sub>濃度が100ppmと低ければ曝露時間が1,200時間までは、シリカゲルのNO<sub>x</sub>による劣化またはルテニウムの破壊も認められず十分使用可能であることが確認された。

### (3) Ru濃度について

P.W.Cainsら<sup>2)</sup>によれば、シリカゲルのルテニウムに対するDFはHNO<sub>3</sub>を添加した溶液によりルテニウムを揮発させた場合には、Ru濃度が10<sup>-2</sup>～10<sup>3</sup>mg/m<sup>3</sup>の範囲において、Ru濃度が減少するにつれDFが増加する傾向が認められ(1mg/m<sup>3</sup>でDF～10<sup>3</sup>)、逆にHNO<sub>3</sub>を添加しない溶液の場合はRu濃度7×10<sup>-1</sup>～1mg/m<sup>3</sup>の範囲に於て、Ru濃度が減少するとともにDFも10<sup>3</sup>から30まで著しく減少すると報告されている。

P.W.Cainsらの試験に於てHNO<sub>3</sub>の有無は、オフガス中のNO<sub>x</sub>の有無に係わるものと考えることができ、本試験ではNO<sub>x</sub> 100～10,000ppmの含有オフガスで試験したので、HNO<sub>3</sub>を添加した場合のデータと対比する必要がある。本試験でのRu濃度は約1×10<sup>-6</sup>～4×10<sup>-6</sup>mg/m<sup>3</sup>であり、P.W.Cainsらの試験条件に対し10<sup>-3</sup>程度低かったにもかかわらず、DFとしては10<sup>3</sup>以上を確保することができ、かつRu低濃度領域におけるDFの減少傾向は認められなかった。実機のRu濃度(10<sup>-4</sup>～10<sup>-5</sup>mg/m<sup>3</sup>)は試験に使用したRu濃度に近いものであり、従って、実機に於てもDF 10<sup>3</sup>の確保が期待できる。

オフガス中のNO<sub>x</sub>の有無がシリカゲルのRuO<sub>4</sub>の吸着に対する影響は、先に実施した「確認試験」に於ても確認しているが、NO<sub>x</sub>濃度がある程度の所まではDFの向上する現象が認められるといわれる。これは次のように考えることができる。Christian<sup>4)</sup>はNO<sub>2</sub>とRuO<sub>4</sub>とその平衡定数より、



$$\ln K = -\frac{28.80}{T} + 17.54 + 0.627 \ln T$$

N O<sub>x</sub> が存在する方が RuO<sub>4</sub> が安定化し、この RuO<sub>4</sub> がシリカゲル吸着塔の D F が上昇すると報告している。

本試験では、このような D F 向上は確認できなかった。

しかしながら、P.W.Cains らによる前記の試験では Ru 濃度の如何にかかわらず、HNO<sub>3</sub> 添加、つまりオフガス中に N O<sub>x</sub> が含まれる場合の方が D F が良く、さらに Ru 濃度が 1 mg/m<sup>3</sup> から低くなる（実際のプロセス条件に近づく）につれその差は著しく開くと報告されている。

## 5.2 ルテニウムの再飛散について

図-5.4に示すようにP.W.Cains ら<sup>2)</sup>によりシリカゲルに付着されたルテニウムがアルゴンガスパージにより46時間で400mm以上移動すると報告されている。ルテニウムのシリカゲルへの吸着機構は未だ明確にはされていないが、実機に於る運転中又はプラントシャットダウン時（負圧維持運転）に於て、空気等により吸着層が移動（脱離、再飛散）する可能性がある。しかしながら、本試験では吸着したルテニウムが35時間及び70時間のエアパージによっても脱離（再飛散）しないことを表-4.25、表-4.26に示すように確認した。

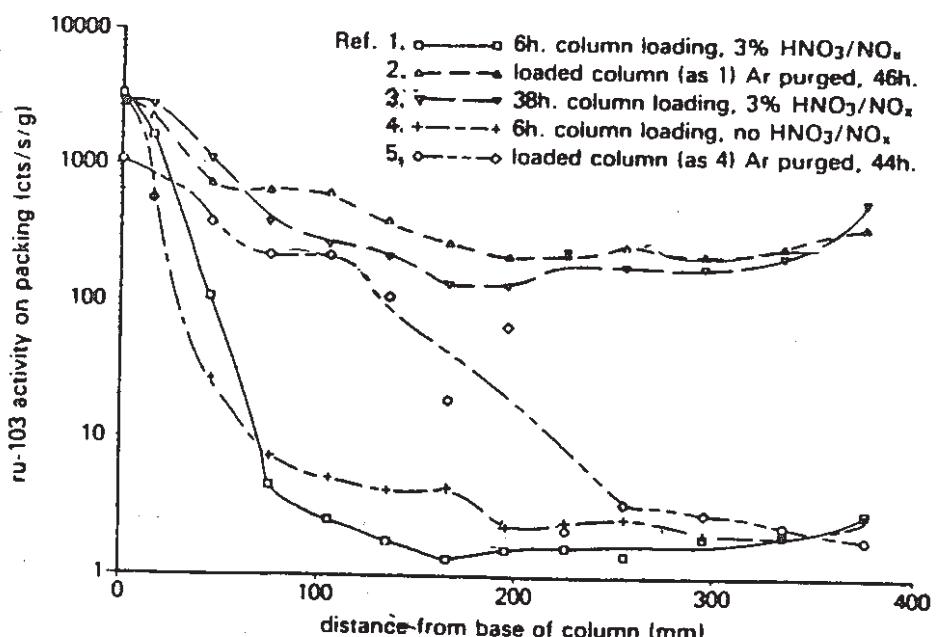


図-5.4 シリカゲルに吸着されたルテニウムの分布

本試験では、測定対象とする試料の採取場所を変えることにより次の2ケースを実施した。

Case 1 ; 各カラム内のシリカゲルをよく混合して採取。採取した試料の測定結果は各カラムの平均値となる。

Case 2 ; 各カラムの底部のシリカゲルを集中採取。採取した試料は各カラムの中で最もルテニウムが多量に吸着していると思われる部分である。

Case 1 の測定結果（表-4.25）に示されるように35時間、70時間ともエアパ

ージによる2段目のカラム以上へのルテニウムの脱離によるとと思われる吸着層の移動は見られなかった。

また、Case 2 のカラム底部の測定結果に於ても3段目以降のカラムでは有意な計測値を得られず、2段目のカラムを越えるルテニウム吸着層の移動はなかった。

ゆえに、本試験に於ては Cainsらによって報告されているようなガスパージによる吸着層の移動は確認されなかった。

Cains らは  $\text{RuO}_4$  のシリカゲルへの吸着メカニズムを次のように推察している。

- (1) シリカゲル表面への揮発性ルテニウム ( $\text{RuO}_4$ ) の物理吸着
- (2) 挥発性ルテニウムと  $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{HNO}_3$ とのシリカゲル表面での相互作用による吸着 (ニトロシルルテニウム)
- (3) 挥発性ルテニウム ( $\text{RuO}_4$ ) または(2)項で形成されたニトロシルルテニウムの安定な固体 ( $\text{RuO}_2$ ) への転換
- (4) 粒子間の相互作用による物質移動 ;  $\text{RuO}_4$  からの吸着物質への移動及びシリカゲル表面の活性部からニトロシルルテニウムへの移動

Cains らの報告によると、 $\text{NO}_x$  の有無により吸着層の移動量は異なるが、吸着層の移動そのものは  $\text{NO}_x$  の有無にかかわらず確認されていることにより、脱離に関しては Cainsらの推察している吸着機構の (2)項はあまり寄与していないと考えられる。(1)、(2)項によるものとすれば、ルテニウムのシリカゲルへの吸着は物理吸着が主体と考えることができる。

Cains らも吸着機構については前述のように推察しているが、脱離については言及しておらず、吸着についても将来の課題として提案している。

ルテニウムのシリカゲルへの吸着が物理吸着であり、アルゴンガスに於て44時間程度で簡単に脱離するものであれば、空気によっても脱離し、この傾向はページにしろガスの通気中にしろ観察されるはずである。このような脱離の報告は Cains ら以外には報告されておらず、現有シリカゲルがルテニウムの吸着剤として最も広範に推奨されていることを考えると Cainsらの試験では別のファクターが作用したのではないかと思われる。

本試験に於ては 70 時間のエアバージでも 10 cm 以上のルテニウムの移動は起らず、一度シリカゲルに吸着したルテニウムが脱離、再び飛散することはないことが確認された。

### 5.3 HEPA フィルタおよびスクラバについて

実機に於ては、ルテニウム吸着フィルタ以外でルテニウムに対する除染係数を有する機器としてスクラバとHEPA フィルタが計画されている。「確認試験」ではスクラバ及びHEPA フィルタのDF 試験を単体で実施したが、本試験ではよりプロセスに近い形で、スクラバとHEPA フィルタをシリーズに設置したものと、HEPA フィルタを2段に設置した場合のDF を確認した。

#### (1) スクラバ+HEPA

「確認試験」では表-5.1および表-5.2よりスクラバはDF 2以上（最大KOHを用いたもので97）、HEPA フィルタはほぼ $10 \sim 10^2$ であった。表-4.33に示す本試験結果では、スクラバのDF はほぼ $10^3$ を得ることができ、これは「確認試験」の $10 \sim 10^2$ 倍である。

前回の「確認試験」に於て、スクラバのDF が悪かった理由は液-ガス接触効率が悪かったためと思われ、今回は十分な接触効率を得るためにスクラバ液中のバーリングを行わせたため良好なDF を得ることができた。

これに対し、スクラバの後段に設置したHEPA フィルタはDF ~3でしかなかった。この理由は、スクラバでほとんどルテニウムが捕集され、HEPA フィルタのDF を評価するHEPA フィルタ上流側の吸收液中にルテニウムがほとんど検出されなかつたためと考えられる。

#### (2) HEPA+HEPA

「確認試験」ではHEPA フィルタは $10 \sim 300$ のDF を得た。

本試験に於ても、表-4.33に示すようにNO<sub>x</sub>を含まないオフガスでの試験のデータもNO<sub>x</sub>100 ppmを含有するオフガスでの試験のデータも「確認試験」とほぼ同じ値、あるいは若干良い値を得ることができた。

NO<sub>x</sub>100 ppm含有のDF とHEPA フィルタのDF は含有しない場合よりも約1桁悪くなるものの、HEPA フィルタは1段で少なくともDF 10を有することが分った。これに対し後段のHEPA フィルタのDF はほとんど期待できず、2段構成のHEPA フィルタによりトータルのDF がさらに向上するという結果

は得られなかった。

これは、前項のスクラバ+HEPAフィルタと同様の理由によるものと思われる。

表-5.1 H E P A フィルタの D F

試験条件	D F
1枚標準状態 <sup>*1</sup> <sup>*2</sup>	(314), 380, 360, 381
1枚温度履歴 <sup>*3</sup>	440, 444
1枚 NOx 1000 ppm <sup>*4</sup>	23, 116
1枚 NOx 100 ppm <sup>*5</sup>	15
2重標準状態 <sup>*6</sup>	(430), 354
2重温度履歴	(1822)
1枚焼却灰 <sup>*7</sup>	72, 190
1枚温度履歴 NOx 1000 ppm	26, 19
2重温度履歴 NOx 1000 ppm	834, 366
1枚 NOx 1000 ppm → 0 ppm <sup>*8</sup>	11 → 45

\* ( ) 内の数字は疑わしい値である。

- \* 1 1 枚 : H E P A フィルタを1枚で使用
- \* 2 標準状態 : 発生したRuO<sub>4</sub>を含むガスをそのままプロセスと同じ温度、組成(NOxを除く)に調整したものを試験対象に供給
- \* 3 温度履歴 : RuO<sub>4</sub>を含むガスを一度850°Cまで加熱冷却して試験対象に供給
- \* 4 NOx 1000 ppm : NOx 1000 ppmを含んだガス組成を使用
- \* 5 NOx 100 ppm : 参考のために実施
- \* 6 2 重 : H E P A フィルタを接触させて2枚を重ね合わせたもの
- \* 7 焼却灰 : RuO<sub>4</sub>を含むガスを850°Cに加熱した焼却灰を通過させたもの
- \* 8 NOx 1000 ppm → 0 ppm : 参考のために実施、NOxを1000 ppm含むガスを通したH E P A フィルタに再度NOxを含まないガスを供給、両者でD Fを測定

表-5.2 スクラバのD F値

試験条件	D F 値
NaOH ラシヒリング無	1.7, 1.4
NaOH	2.3
NaOH NOx 1000 ppm	18, 20
KOH	97
NaOH 温度履歴	25

## 5.4 HEPA フィルタ捕集物質について

図-4.1のX線解析グラフと、下に示した The A.S.T.M.CARD No 21-1172とを比較し、グラフにより示される物質は RuO<sub>2</sub> の結晶であると同定した。これより、HEPA フィルタに捕集されたものは RuO<sub>2</sub> 粒子であり、HEPA フィルタのDF値は RuO<sub>2</sub> 粒子を捕集することによって得られたものであることが分る。

21-1172

d	3.17	2.55	1.69	3.18	(RuO <sub>2</sub> ) <sub>6T</sub>	d Å	I/I <sub>1</sub>	hkl	d Å	I/I <sub>1</sub>	hkl
I/I <sub>1</sub>	100	50	30	100	Ruthenium Oxide						
Rad. CuKα λ 1.5418 Filter Ni Dia.						3.17	100	110	0.9202	2	213
Cut off I/I <sub>1</sub> Diffractometer						2.550	50	101	.9096	<1	402
Ref. Li, Polytechnic Institute of Brooklyn (1970)						2.243	10	200	.8807	<1	510
Sys. Tetragonal* S.G. P4 <sub>2</sub> /mm (136)						2.217	4	111	.8748	2	332
$a_0$ 4.4902 $b_0$ $c_0$ 3.1059 Å $\alpha$ 0.6917						2.005	1	210			
$\alpha$ $\beta$ $\gamma$ $Z$ 2 $D_x$ 7.06						1.685	30	211			
Ref. Ibid.						1.586	9	220			
$\epsilon\alpha$ n $\omega\beta$ $\epsilon\gamma$ Sign						1.552	4	002			
2V D 6.97 mp Color Dark Blue						1.4200	5	310			
Ref. Hand Book of Chem. & Phys. (45 Ed.)						1.3943	5	112			
Chemical Rubber Co., p. B215.						1.3491	5	301			
*Böman, Acta Chem. Scand., 24 116 (1970) reported values of $a_0=4.4909$ , $c_0=3.1064$ .						1.2770	2	202			
I/I <sub>cor</sub> =5.5						1.1559	4	321			
						1.1230	<1	400			
						1.1097	3	222			
						1.0585	2	330			
						1.0481	3	312			
						1.0277	3	411			
						1.0093	2	103			
						1.0040	2	420			

The A.S.T.M. CARD

## 6. ま と め

本試験に於て、実機の摸擬ガス ( $\text{NO}_x 100 \text{ ppm}$ ) によるシリカゲルの  $R_u$  吸着性能は 100 日間 (2,400 時間) は、 $DF 10^3$  を担保することがわかった。また  $\text{NO}_x 10,000 \text{ ppm}$  による加速試験に於ても、最大 120 時間 (500 日相当)  $DF 10^3$  を担保することがわかった。ゆえに、 $\text{NO}_x$  の影響のみを考えれば、シリカゲルの  $R_u$  吸着性能に対し、500 日間は悪影響がないと思われる。

脱離試験では、35 時間及び 70 時間のエアバージによる  $R_u$  の脱離は検出されず、たとえ  $R_u$  吸着層の移動が起っていたとしても、10 cm 以内の移動であると考えられる。

スクラバ及び H E P A フィルタの組合せ試験では、スクラバは  $DF 10^2 \sim 10^3$  を得た。H E P A フィルタは「確認試験」とほぼ同じ値で、 $DF 10$  を得た。但し、どちらの  $DF$  も前段の値で、後段の  $DF$  は測定評価に足るデータは得られなかった。

## 7. 焼却施設調整設計への適用

焼却施設調整設計（以降「IF」という）で設定しているDFと、本試験で得られたDFとを下記に示す。

「IF」に於ける設定値	条 件
・焼却炉 : ~1	—
・バグフィルタ : ~1	—
・スクラバ : 10	パックドカラム式、水分6.7%・ NOx 11.4 ppm、温度200°C
・Ru吸着フィルタ : 10 <sup>3</sup>	線速0.12 m/s、水分3.8%・NOx 12 ppm 充填高さ1.2 m、温度80°C
・HEPAフィルタ : 10	水分3.6%、NOx 9 ppm、温度80°C

本試験による結果	条 件
・スクラバ : 10 <sup>3</sup>	サブマージドベッド式、水分3.8%・ NOx 100 ppm、温度80°C
・Ru吸着フィルタ : 10 <sup>3</sup>	線速0.12 m/s、水分3.8%・NOx 100 ppm 充填高さ0.85 m、温度80°C
・HEPAフィルタ : 10	水分3.8%・NOx 100 ppm、温度80°C

以上より、本試験のDFは「IF」での設定値を上回っており、「IF」での各機器のDFは充分安全サイドの値であるということができる。

但し、本試験でのスクラバはサブマージドベッド式であるのに対し、実機のスクラバはパックドカラム式であるため本試験と同様のDFを得られるかどうかについては今後のR&Dを要する。

Ru吸着フィルタの長期安定性については、長期安定性試験では、Ru吸着フィルタの性能は100日迄安定であり、加速試験ではさらに500日迄安定であった。

「IF」での年間稼動日数は100日であり、ゆえに「IF」においてRu吸着フィルタのシリカゲル交換は最高5年間必要ないということになる。

また、エアページ時におけるRuの再飛散の恐れについては、70時間のエアページにおいてもRu吸着層の移動は10cm以内であり、ページエアに伴う他段へのRuの分布は見られなかったことから、エアページによるRuの再飛散は生じないと考えられる。

ゆえに、「IF」でもエアページ時のRu再飛散に対する特別な対策を必要とすることはないが、運転停止時はバイパスを設けて、極力エアページが生じない様にする方が良いと思われる。

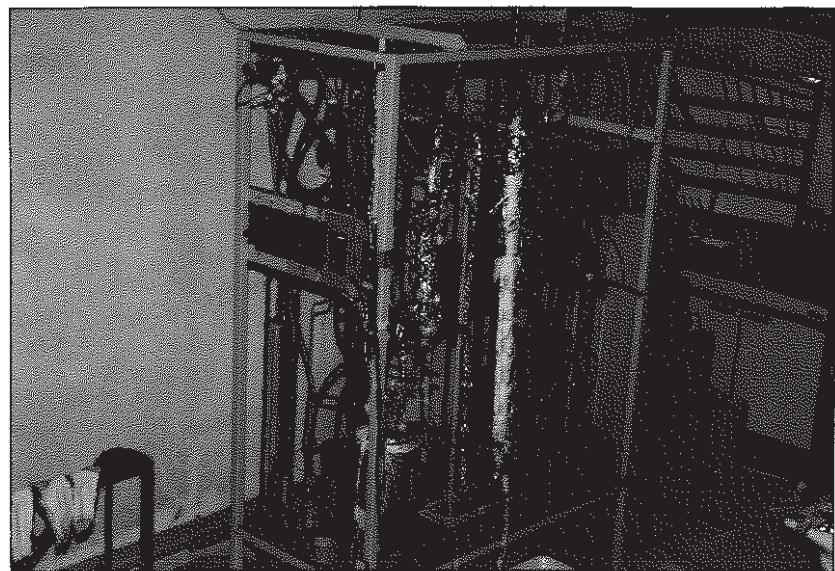


写真-3.1 D F 測定試験装置全体写真

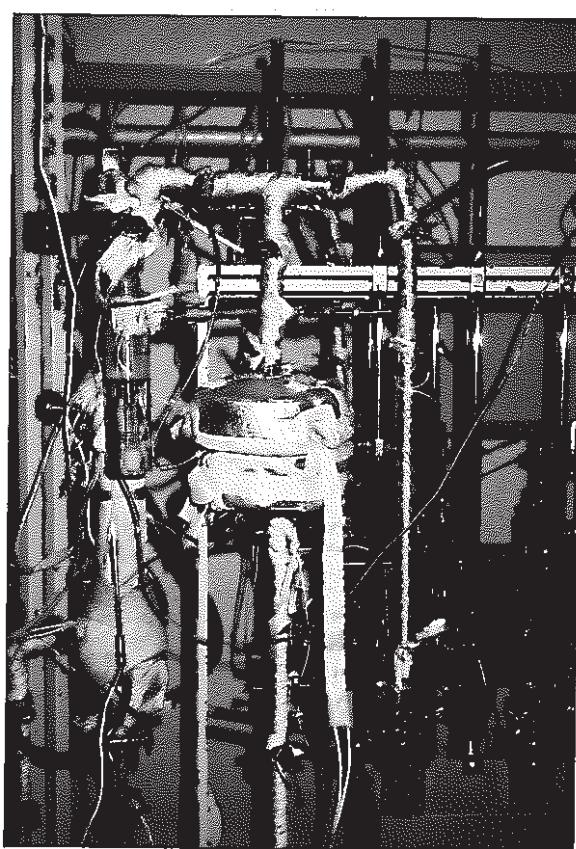


写真-3.2 スクラバ+HEPA組立

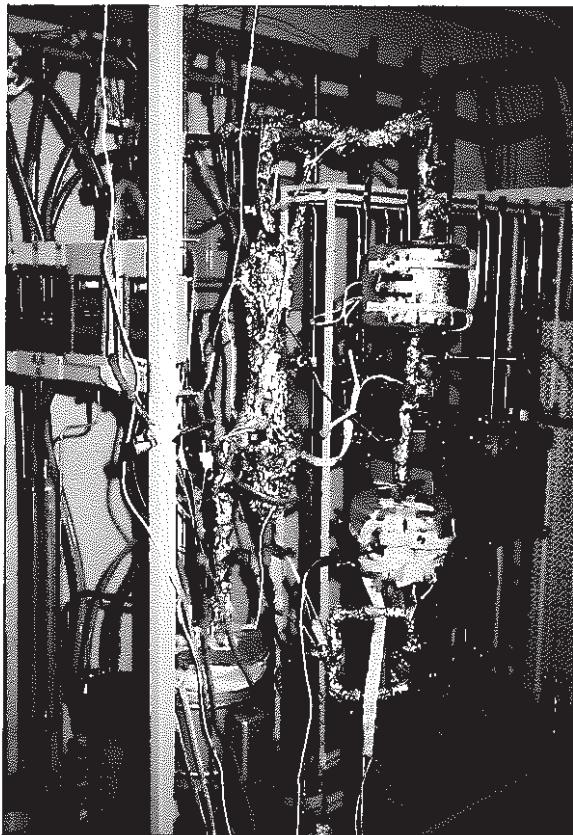


写真-3.3 HEPA+HEPA組立

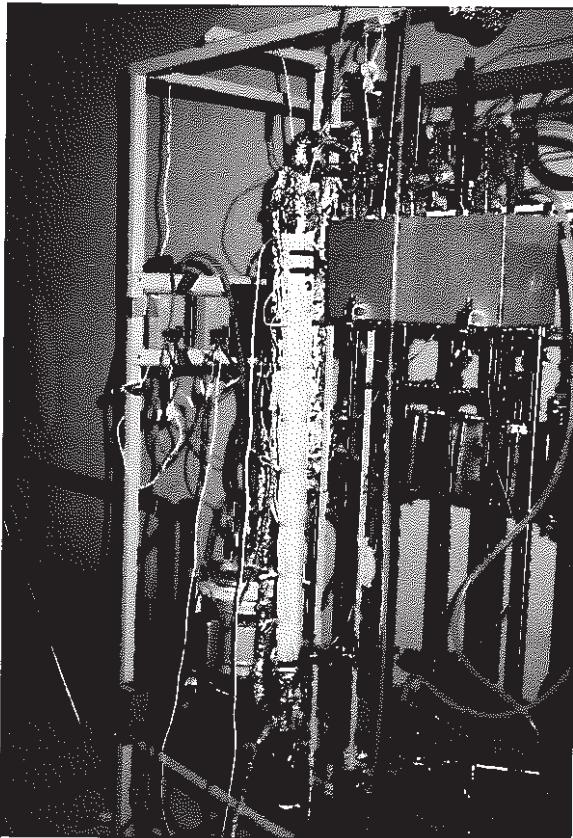


写真-3.4 シリカゲルカラム組立

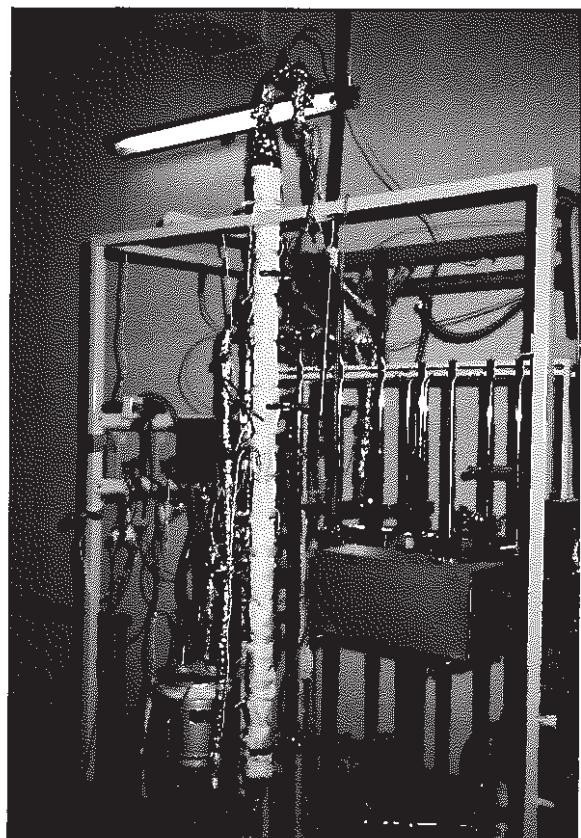


写真-3.5 竹状シリカゲルカラム組立

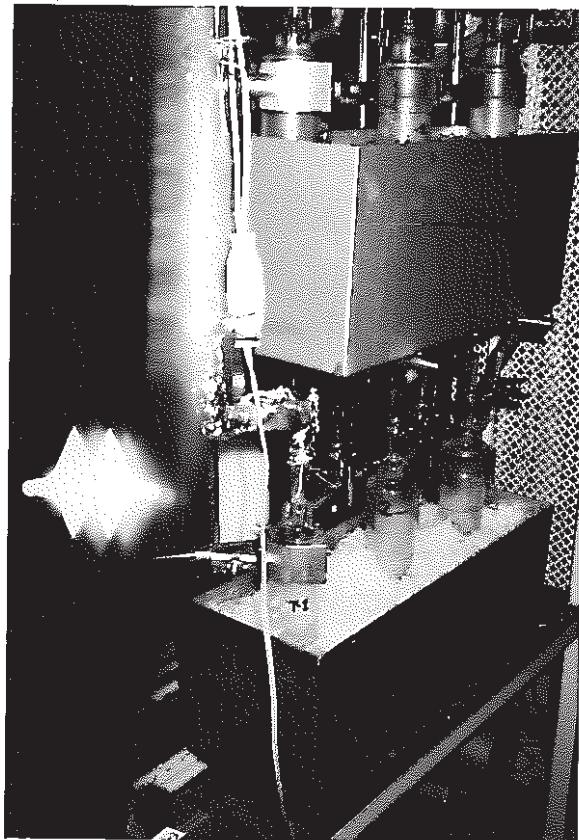


写真-3.6 吸 収 瓶 組 立

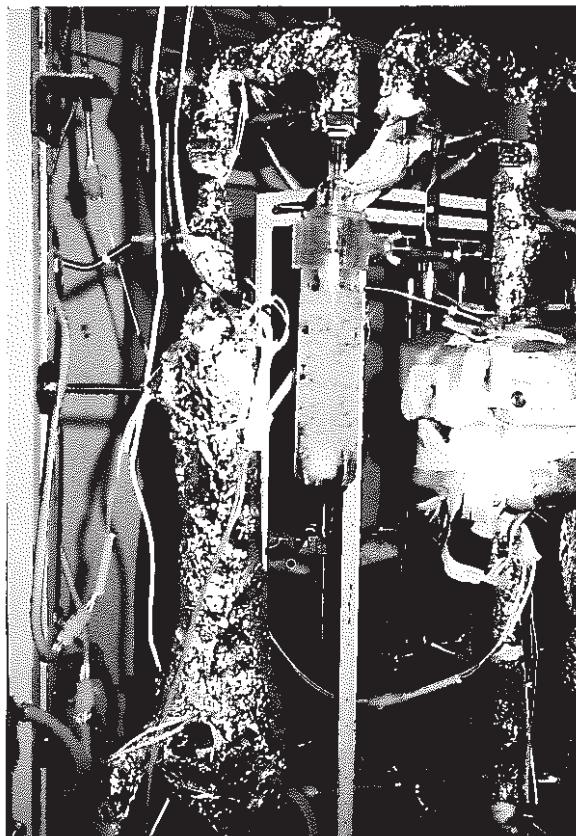


写真-3.7 スクラババブリング状態

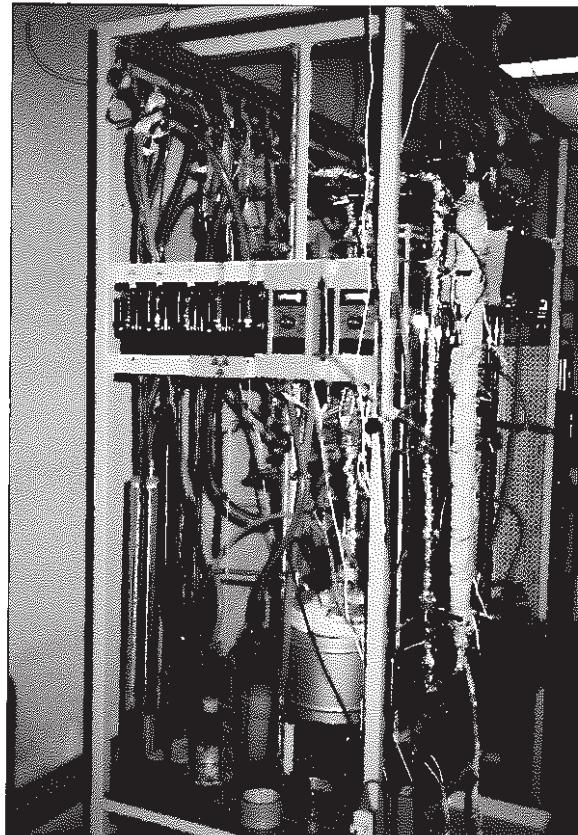


写真-3.8 D F 测定装置側面

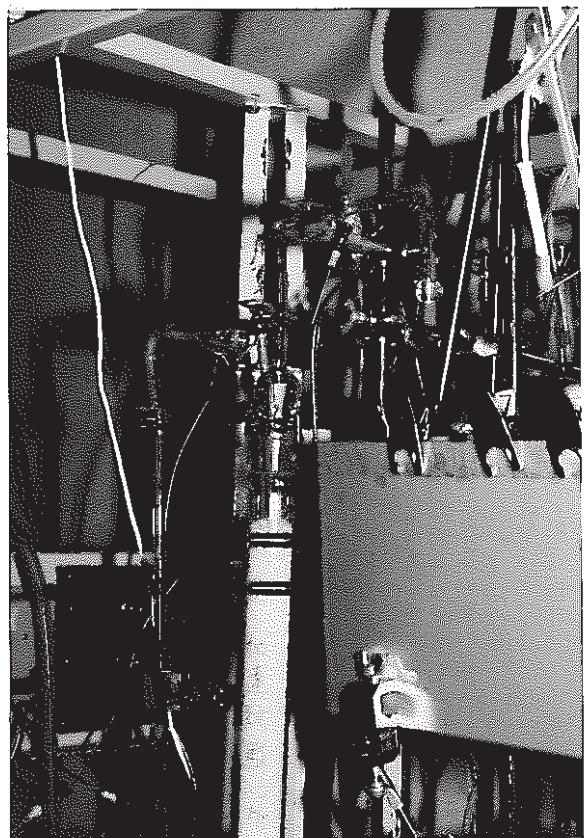


写真-3.9 カラムとの接続部

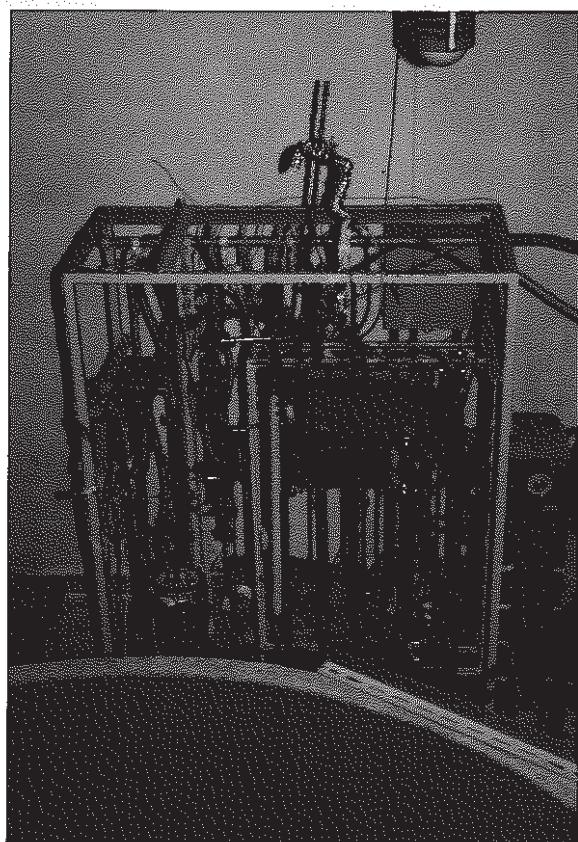


写真-3.10 全体のガラス管組立  
(シリカゲルカラム測定時)

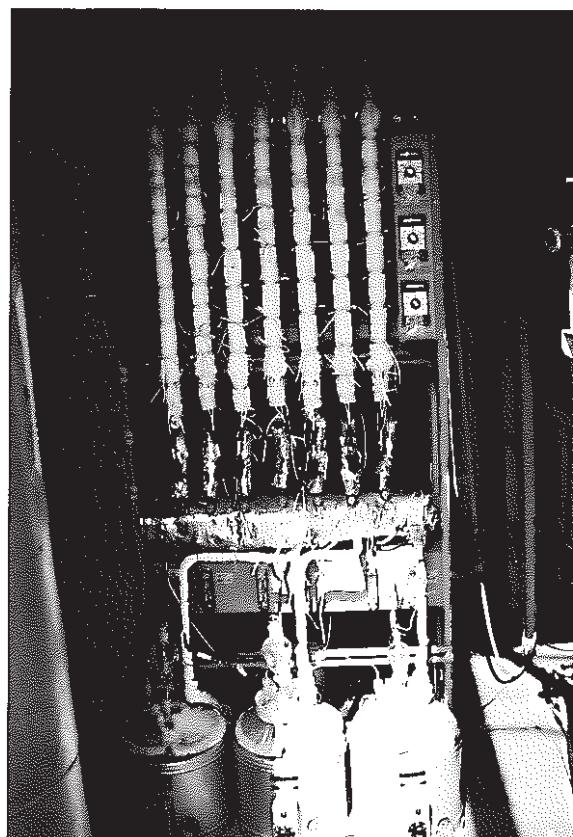


写真-3.11 通 気 試 験 装 置

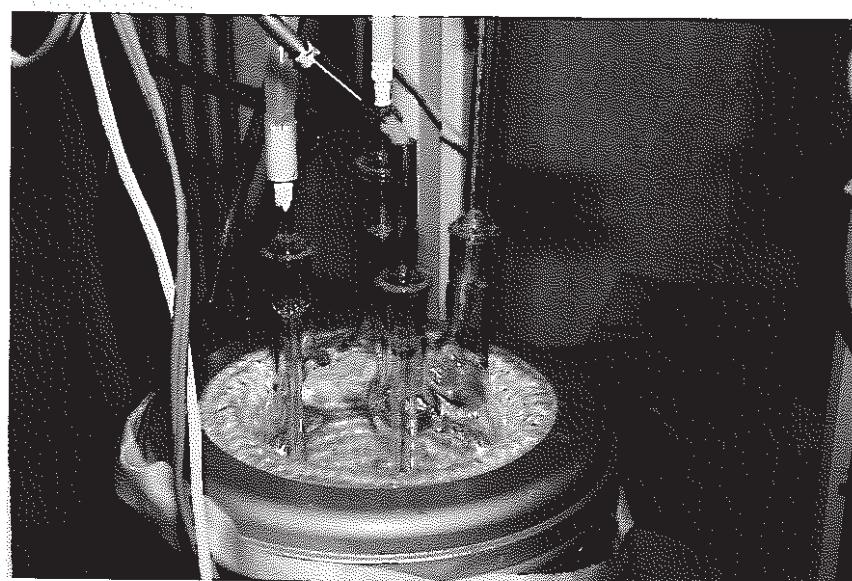


写真-3.12  $\text{RuO}_4$  発 生 器

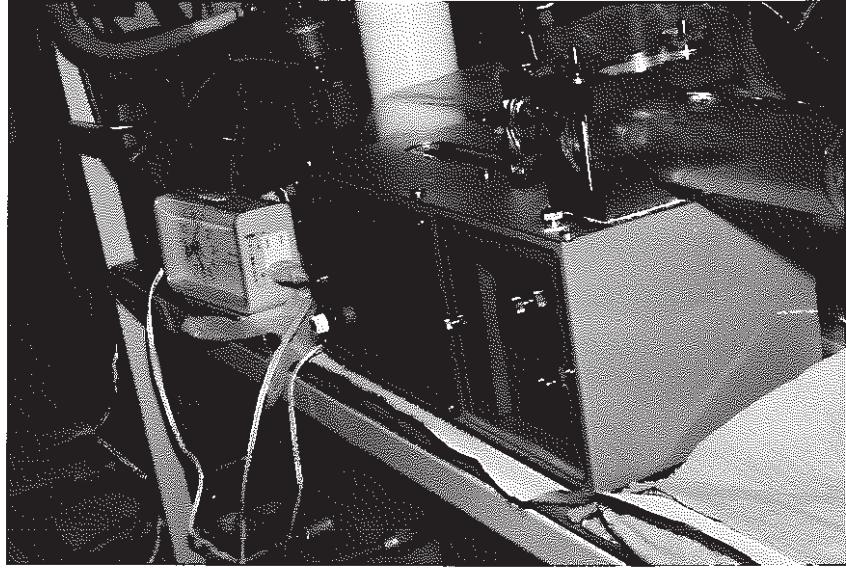


写真-3.13 RuCl<sub>3</sub>供給器

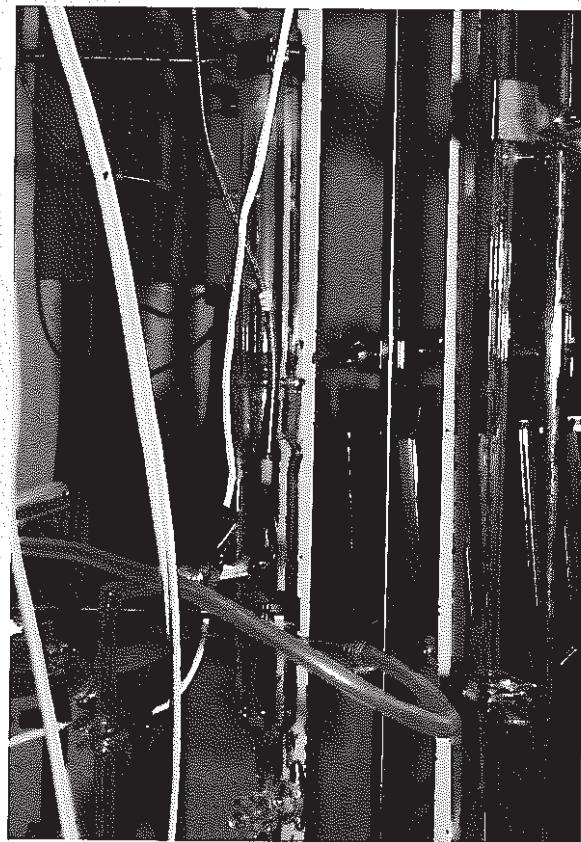


写真-3.14 ガス混合器

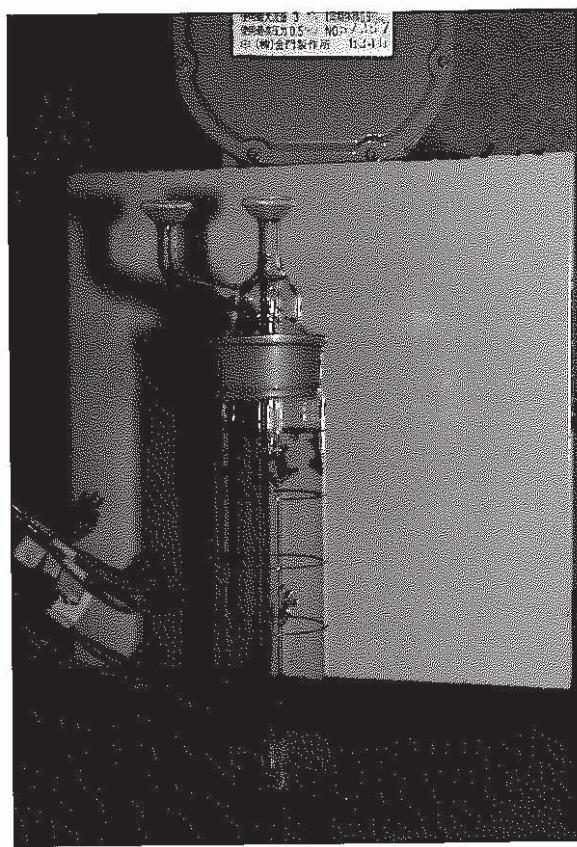


写真-3.15 インピンジャー式吸収壜

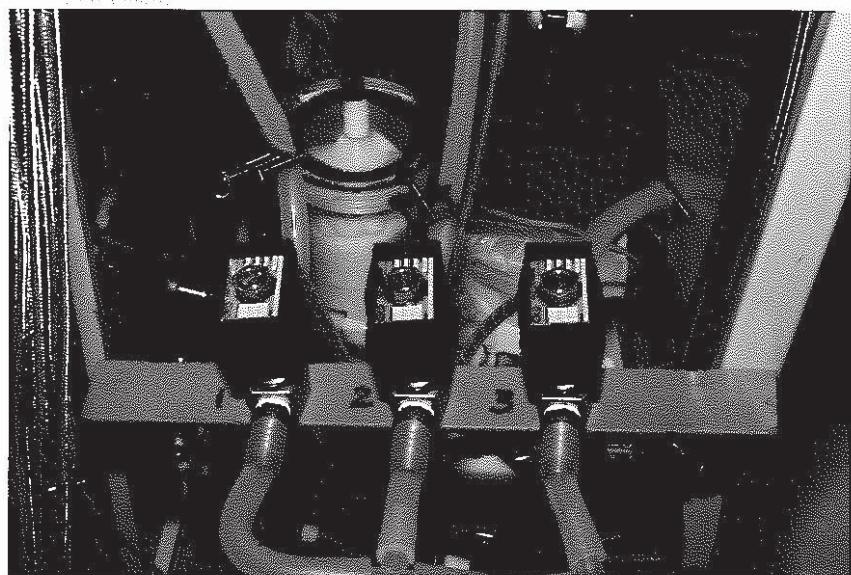


写真-3.16 電 磁 弁

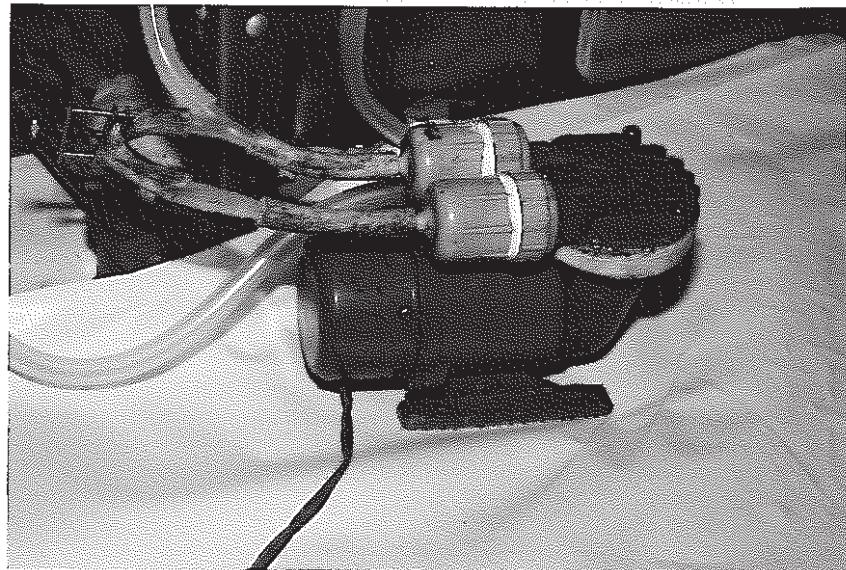


写真-3.17 吸引ポンプ

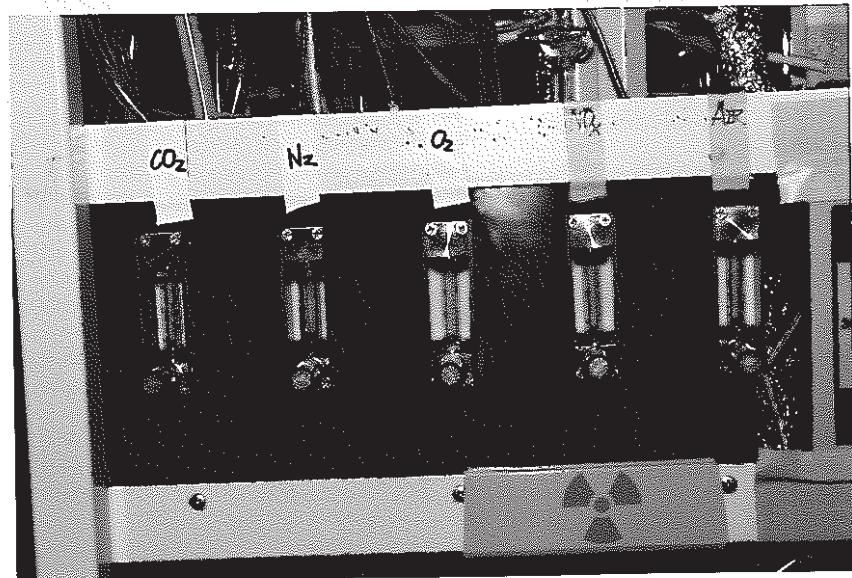


写真-3.18 流量計



写真-3.19 NaIシンチレータスケーラ

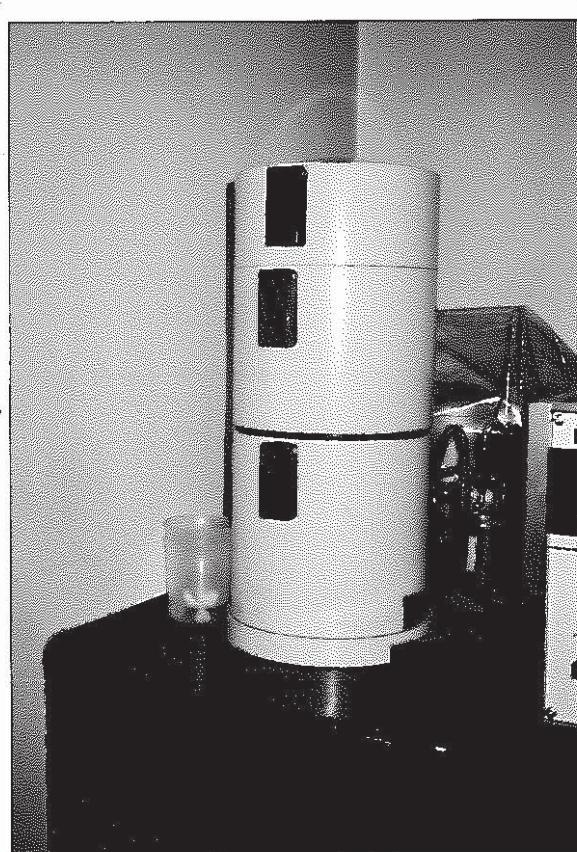


写真-3.20 ディテクタ



写真-3.21 G M 計 数 管

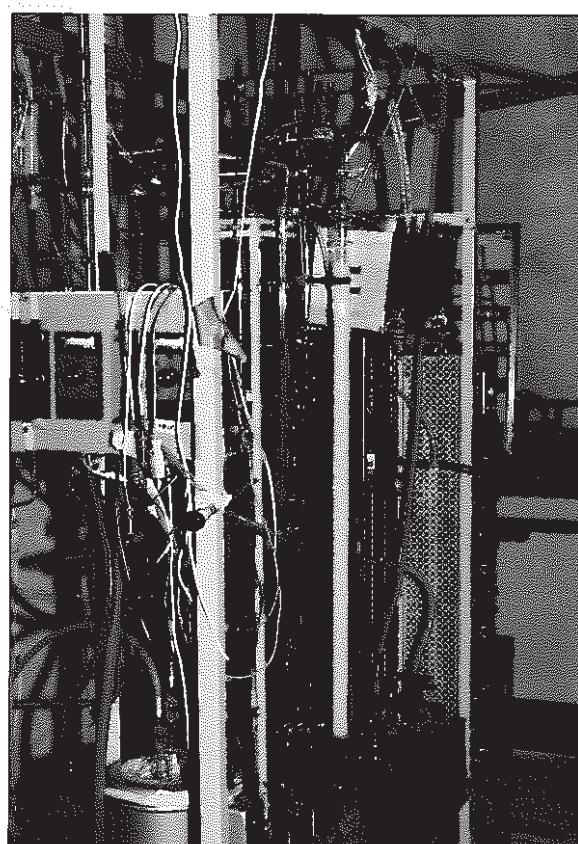


写真-3.22 シリカゲルカラム

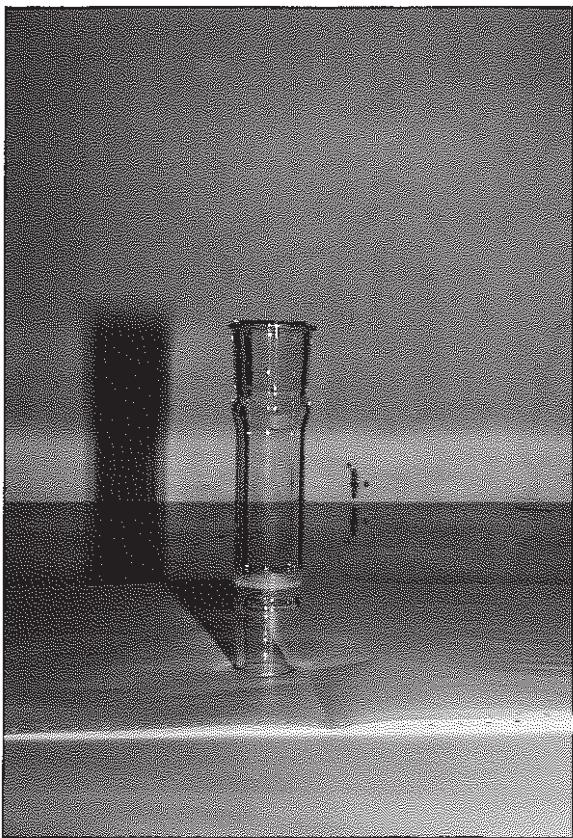


写真-3.23 竹状シリカゲルカラム  
(部分)

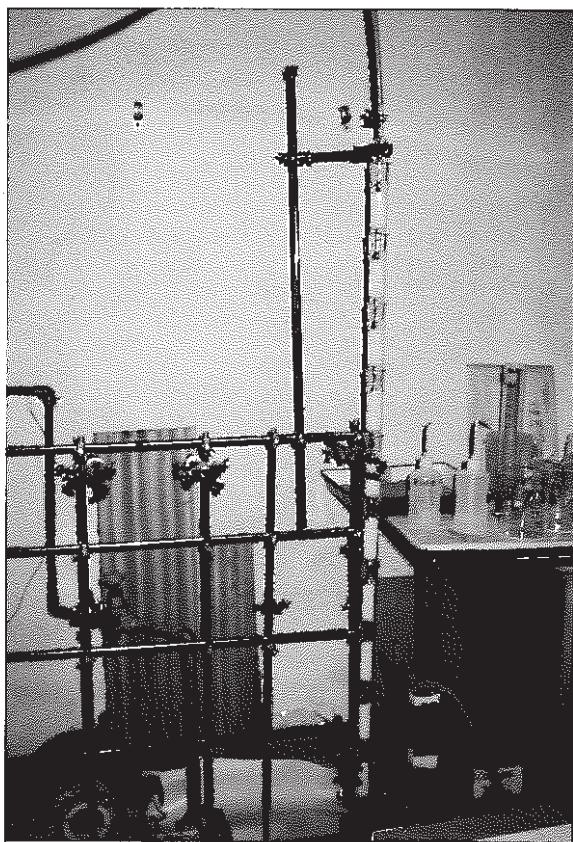
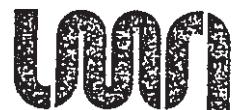


写真-3.24 竹状シリカゲルカラム  
(全体)

## 8. 参考文献

- 1) F. E. Bartel, R. M. Suggitt [Jurnal of American Chemical Soc.]  
(58, 39 1954)
- 2) P. W. Cains, K. C. Yewer [Volatile Ruthenium trapping on Silicagel  
and solid catalysts] (18th DOE Nuclear Airborne waste manegement  
and air cleaning coference)
- 3) 梅田俊雄、八田昌久「高レベル放射性廃液固化に関する研究開発の現状」  
(IHI技報 Vol. 24 No. 4)
- 4) J.D. Christian 「“Process and Control of Ruthenium and Cerium”, in  
Processings of ANS-AICHE Topical Meeting on Controlling Air-Borne  
Effluents from Fuel Cycle Plants」(Sun Valley, Idaho, August 5-6, 1976)

Commissariat  
à l'Energie Atomique  
Bureau National  
de Métrologie  
Office des  
Rayonnements Ionisants



laboratoire de métrologie des rayonnements ionisants

Boîte postale 21  
91190 Gif sur Yvette, France  
Télex : 690641 F Energat  
Téléphone : 908.25 13

## CERTIFICAT D'ÉTALONNAGE

Radionucléide :  $^{106}\text{Ru}$

Destinataire : SCETI JAPON  
Commande : ST 2565 24.04.1986 (ET 46522)

Activité <sup>(1)</sup>	$3,541 \cdot 10^7 \frac{\text{Bq}}{\text{g}}$ $957 \frac{\mu\text{Ci}}{\text{g}}$	le 12.02.1986 à 12h00 <sup>(2)</sup>
Référence	Solution étalon, type : EL 6 B	N° 3288 / 36016
Descendants	$^{106}\text{Rh}$ à l'équilibre	
Impuretés <sup>(3)</sup>	$^{125}\text{Sb} \rightarrow 0,18\%$ - $^{144}\text{Ce} \rightarrow 0,3\%$ - $^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs} < 0,1\%$	
Période <sup>(4)</sup>	$372,6 \pm 1,0$ d	
Volume délivré	1 ml $\pm 0,2\%$	Densité : 1,017 à 20°C
Composition chimique <sup>(5)</sup>	20 $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ $\text{RuCl}_3$ + 20 $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ $\text{RhCl}_3$ en HCl 1N	
Incertitude <sup>(6)</sup> $t_{\bar{x}} + \sum d_i$	Erreur aléatoire (intervalle de confiance 99,7 %) Erreur systématique [ $\sum d_i$ ] Incertitude	0,3.....% 1,7.....% 2,0.....%
Observations		

(1) Renvois : voir au verso; see overleaf.

Le Directeur de l'ORIS

Le Chef du LMRI

Y. LE GALLIC

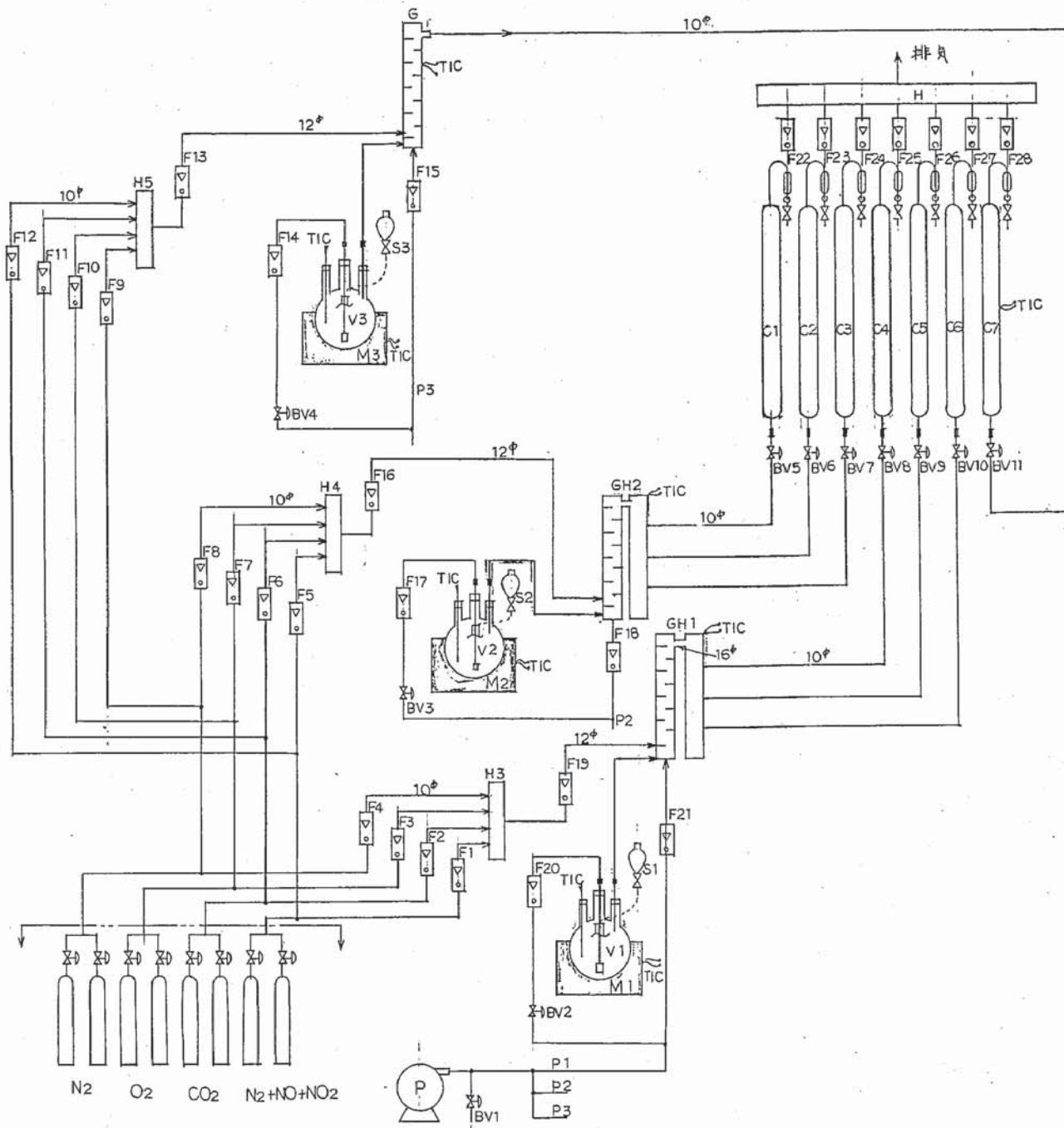
Saclay le 16 mai 1986

La Responsable du groupe étalons

J. LEGRAND — 93 —

L.GUERIN

ノズルリスト						
記号	呼径	個数	フランジ規格	呼び圧	寸法	ノズル原用 途 記事
H345	混合 ヘッダー 四つロクスコ用 球形弁及ヘッダー用	3	SUS	3	40X40X210	
		3		3	"	
		3		3	"	
TIC	球形 ピッタ	7				サミン培調計付
BV54	球形弁及ヘッダー エアーポンプ	1	BSBM	1		
P		1	SUS	1		
H		1				
C1~7	シリカゲルカラム	7	硝子管	7	上部V字型2-3-1行 1431x1.020千筒17本	
G	混合器	1		1	40X40X90mm	
GH1,2	混合器及ヘッダー	2	SUS	2	3000cc用温調付	
M123	マントルヒーター	1		1	200ml	
S123	金網口付	1		1	温度計挿入口 P-10-10 プローブ-ペ-10-10	
V123	四つロクスコ	3	硝子管	3	"	
28		1		1		
27		1		1		
26		1		1		
25		1		1		
24		1		1		
23		1		1		
22	N <sub>2</sub>	1	三本管なし	1	1~10NL/分	
21		1		1	20~200NML/分	
20	Air	1		1	"	
19	N <sub>2</sub>	1		1	"	
18		1		1	1~10	
17	Air	1		1	0.5~5	
16	N <sub>2</sub>	1		1	1~10	
15		1		1	"	
14	Air	1		1	"	
13		1		1	0.2~2	
12	N <sub>2</sub>	1		1	0.1~1NL/分	
11	CO <sub>2</sub>	1		1	30~300mL/分	
10	O <sub>2</sub>	1		1	"	
9		1		1	0.1~1	
8	N <sub>2</sub>	1		1	0.5~5	
7	O <sub>2</sub>	1		1	"	
6	CO <sub>2</sub>	1		1	0.1~1NL/分	
5		1		1	2~20NML/分	
4	N <sub>2</sub>	1		1	0.5~5	
3	O <sub>2</sub>	1		1	"	
2	CO <sub>2</sub>	1		1	0.1~1NL/分	
F1	N <sub>2</sub> 測量計ニードル	1	BSBM	1	2~20NmL/分	
番号	名	種	材質	個数	記事	
動力炉・核燃料開発事業団 様						
尺	/	・	/	・	横	月日
度					写	設計
國名	長期安定性試験及耐久試験のための 模擬排ガス追気テスト装置 E.F.D					
制作物名						
圖面番号						
圖面番号	図-3.1					
日立造船株式会社						



No. 93

△第1回改正 59.7.10.

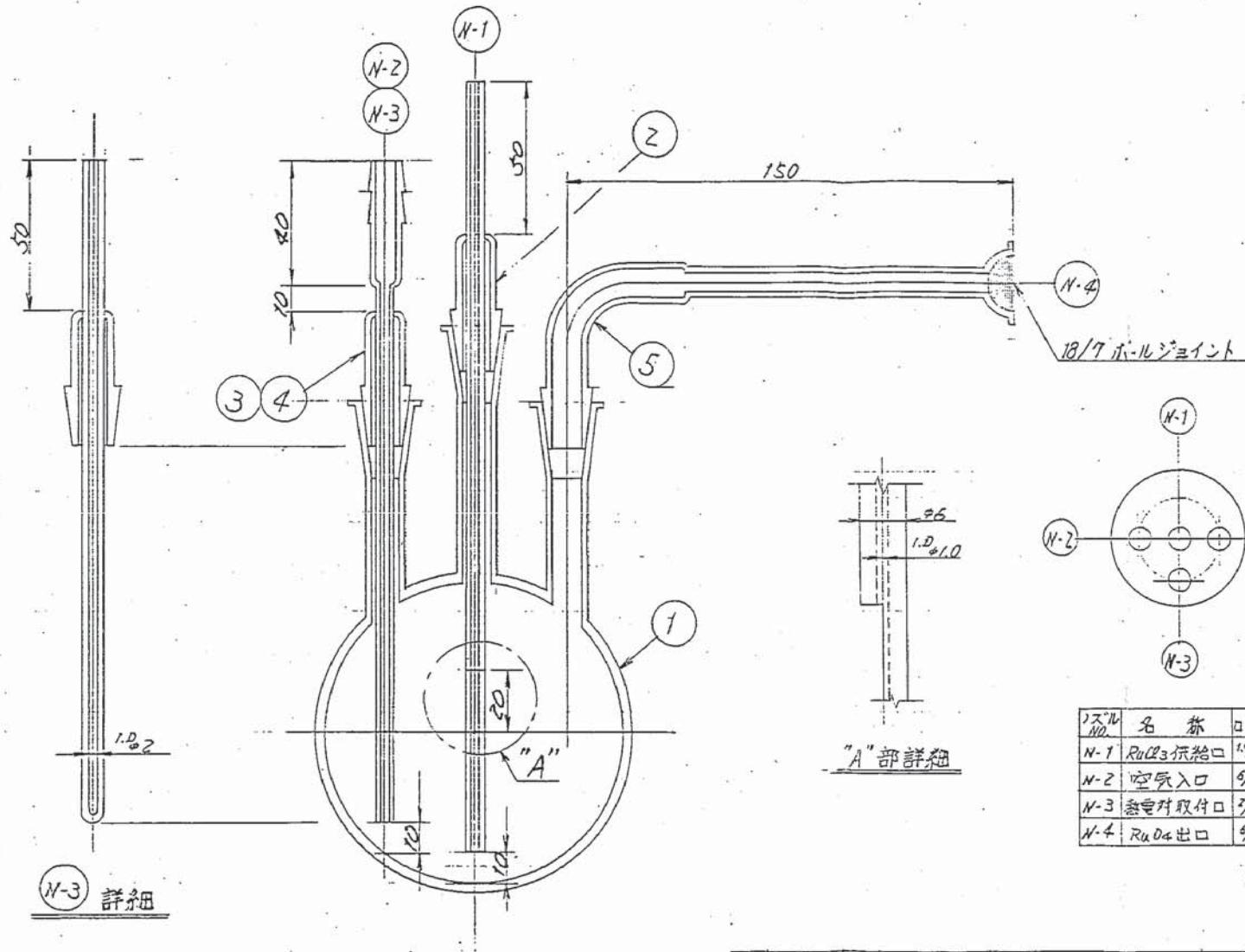


図-3.6

ノズル No.	名 称	口 径	備 考
N-1	Ru023供給口	1.9吋	
N-2	空気入口	6/10	
N-3	熱電対取付口	3/	
N-4	Ru04出口	6/10	

1	1	5	RuO <sub>4</sub> 出口ノズル	(181-7A)			
1	1	4	熱電対取付ノズル	"			
1	1	3	空気入口ノズル	"			
1	1	2	RuCl <sub>3</sub> 供給ノズル	"			
1	1	1	四ツロフ拉斯コ	500ml (181-7A)			
B-A	部品 基本個数	番号	名 称	呼 ビ 方 (寸 法)	材 料	单 重 量 kg	摘要
製造番号:				コード 番号			

陸番	21670370	
動力炉・核燃料開発事業団		
Ru除去システムに関する 除染性能確認試験		
RuO <sub>4</sub> 発生器		
1/15(尺度)		
日立造船株式会社 -		
原子力事業部設計部		
主任 部員 職員 署名 	担当	
関係先		(担当) (製図)
作図年月日		
整理番号		
回数		

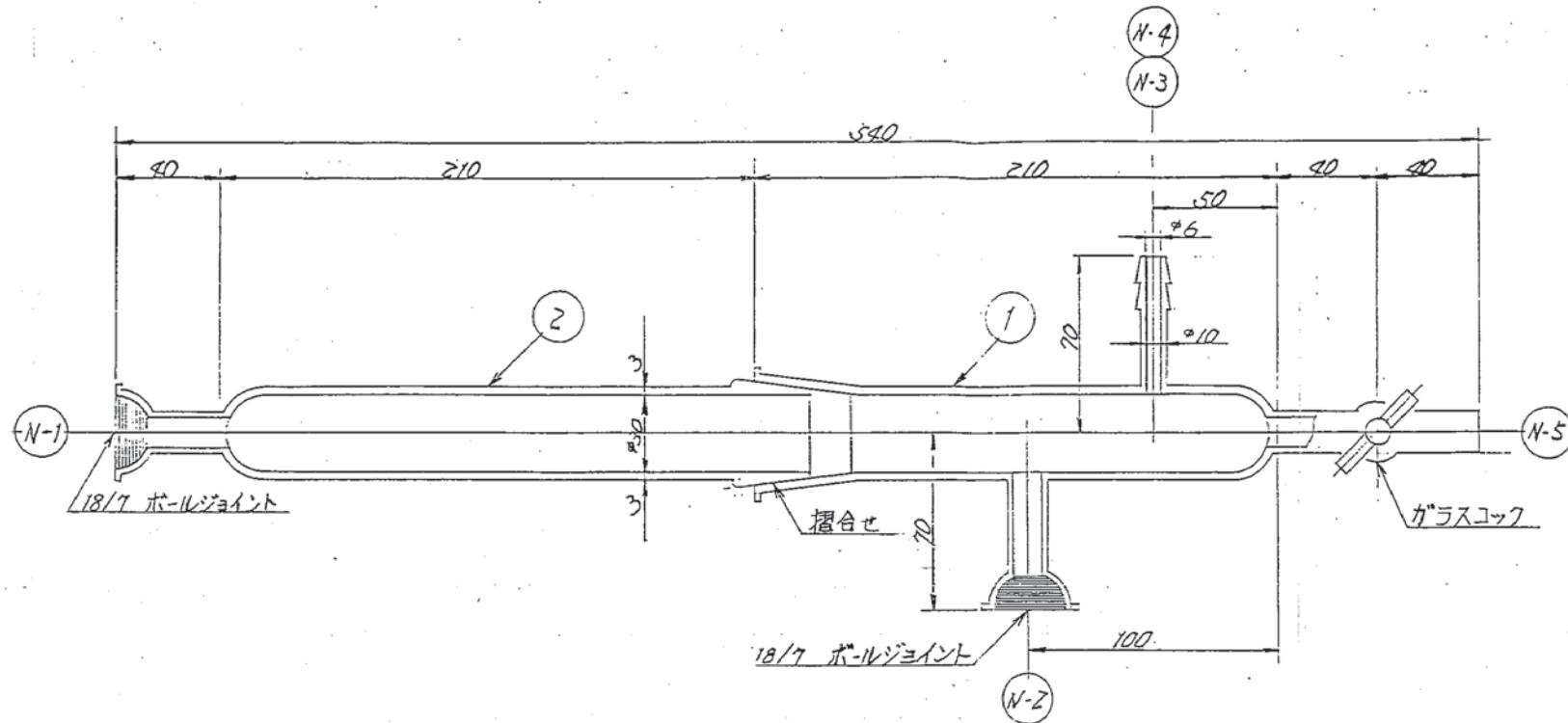


図-3.7

陸番 21670370

動力発・核燃料開発事業団段

Ru除去システムに関する  
除染性能確認試験

ガス混合器

1/2(尺度)

日立造船株式会社

原子力事業部設計部

主任部員 7月12日 担当 向井 課長

関係先 (担当) (製図)

宮屋 敏

作団 59年6月日

整理番号:

図面番号:

計:

## ノズル表

ノズル No.	名 称	口 径	備 考
N-1	混合ガス出口	6/10	
N-2	RuO <sub>4</sub> 入口	6/10	
N-3	H <sub>2</sub> O 入口	6/10	
N-4	NO <sub>x</sub> 入口	6/10	
N-5	ドレン	6/10	

1	2	混合ガス出口		Φ30×250"	ハンドル付		
B	A	部品 番号		名 称	呼 叫 方 (寸 法)		材 料
基本個数							kg
製造番号					コード 番 号		

NOTE

MANUF. No.	No. WANTED	DATE	REMARK

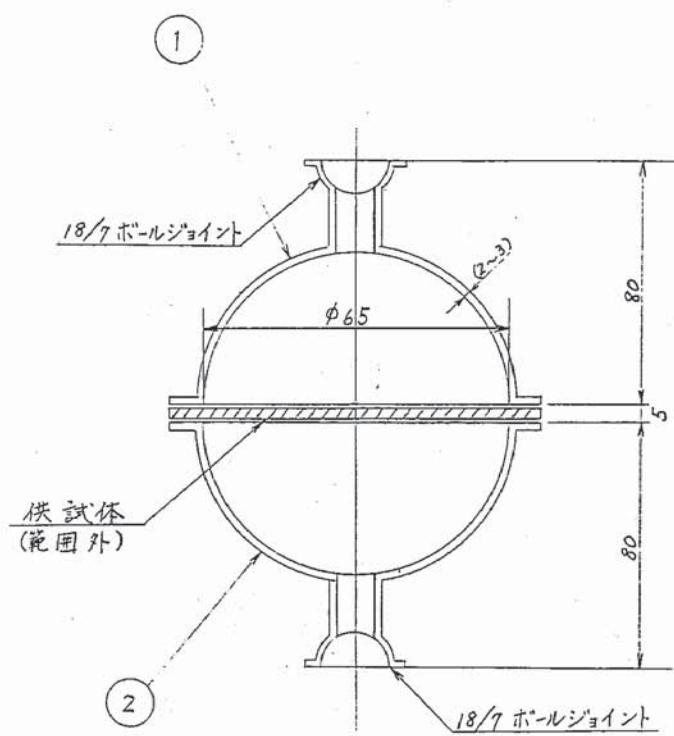
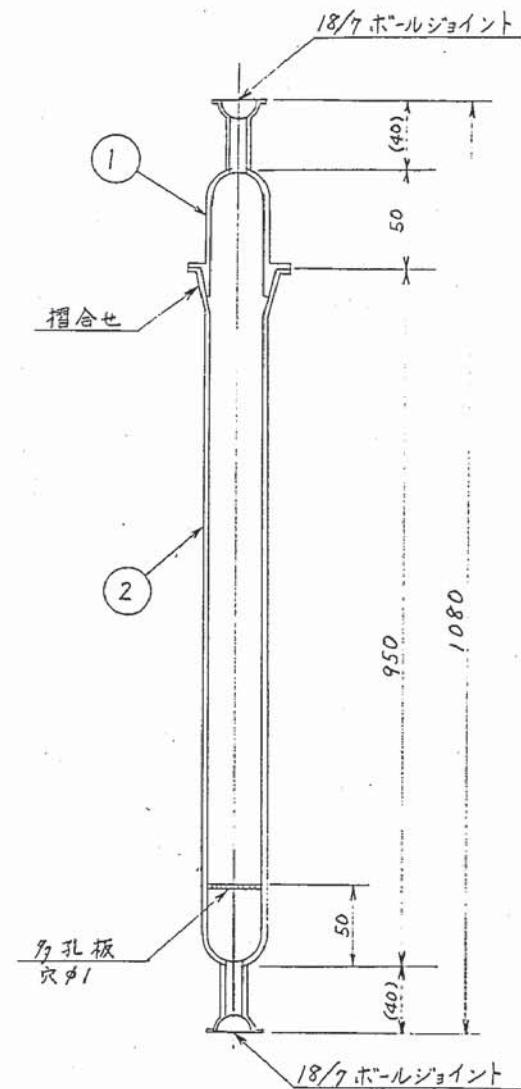


図-3.8

L.No. 21670370
動力炉・核燃料開発事業団段
Ru除去システムに関する 除染性能確認試験
HEPAフィルタホルダー <sup>-</sup> (SCALE)Free
HITACHI ZOSEN CORPORATION 原子力事業部設計部 —OSAKA JAPAN—
DATE (DRAWN BY) T. Takehara (CHECKED BY)
RELATED SECTION
SHEET No.
DRWG. No.

B I A	PART No. CF MFRS	NAME OF PART No.	MATERIAL	UNIT WEIGHT Kg	REMARK
MANUF. No. CODE No.					



B	A	部品番号	名 称	呼 叫 方 (寸 法)	材 料	单 重 量 kg	摘要
24	②	Ru吸着剤カラム	φ30 x 990H (ハイレックス)				
24	①	ガス入口カラム	φ30 x 112H (ハイレックス)				

製造番号: 二一四  
二一四

使用番号	製造日	使用年月	注文主その他

図-3.9

陸番	21670370		
動力炉・核燃料開発事業団段			
Ru除去システムに関する 除染性能確認試験			
シリカゲルカラム			
Free (尺度)			
日立造船株式会社			
原子力事業部設計部			
関係先	担当	(担当) (製図)	
		武	川
作図	61年4月10日		
整理番号			
回面番号			
控	計		

配布先

担当

関係先 (担当) (製図)

武 川

61年4月10日

整理番号

回面番号

控 計

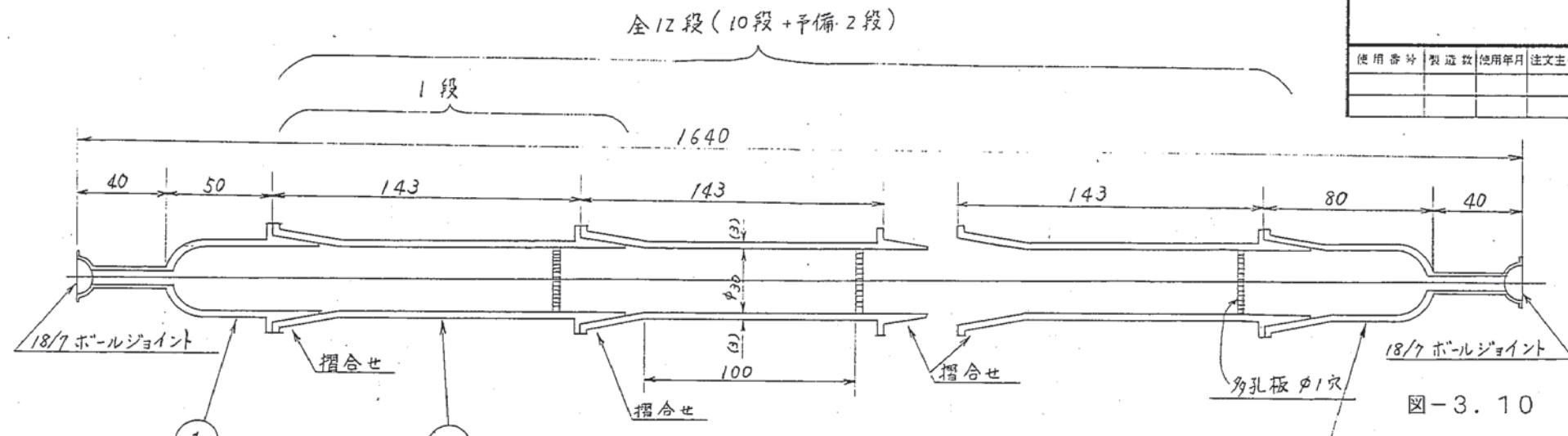


図-3.10

陸番 21670370

動力炉・核燃料開発事業部課

Ru除去システムに関する  
除染性能確認試験  
竹状シリカケルカラム

1/20 (尺度)

日立造船株式会社  
原子力事業部設計部

		担当	
関係先	(担当)	(製図)	
武			
川			

作図 61年4月10日

整理番号

図面番号

B	A	部品番号	名 称	呼 び 方 (寸 法)	材 料	单重 量 kg	摘 要
1	③	ガス出口カラム	φ30×120H	(パイレックス)			
1/2	②	Ru吸着剤カラム	φ30×165H	(パイレックス)			
1/1	①	ガス入口カラム	φ30×112H	(パイレックス)			