

高速実験炉「常陽」性能試験報告書

廃ガス濃度測定試験 (PT-53)

(1978年4月～8月)

1979年10月

動力炉・核燃料開発事業団

1979年10月

高速実験炉「常陽」性能試験報告書

塵ガス濃度測定試験 (PT-53)
(1978年4月~8月)

○ 中島裕治, 根本典雄, 遠藤清志
引地眞義, 安哲徳, 広瀬正史
今泉英之, 田村政昭, 久保久保
三輪秀泰

要 旨

出力上昇試験期間中に、アルゴンおよび窒素塵ガス処理系の塵ガスを簡集容器にサンプリングして、塵ガスに含まれる放射性ガスの核種分析・濃度測定を、多重波高分析装置 (MCA)・振動容量電位計 (VRE) で行った。

MCA で得られた β 線スペクトルでは、 ^{41}Ar ($T_{1/2}=1.83\text{hr}$, $E_{\gamma}=1.29\text{MeV}$, $E_{\beta}=1.20\text{MeV}$) のみが確認され、VRE による減衰特性の結果では、 ^{41}Ar の他に長半減期核種の存在も確認された。長半減期核種については、試料の分析 (減衰法+液シン) により ^3H ($T_{1/2}=12.26\text{y}$, $E_{\beta}=0.018\text{MeV}$) が一部混入していることが判明し、さらには諸々の条件により ^{14}C ($T_{1/2}=5730\text{y}$, $E_{\beta}=0.156\text{MeV}$) が推定された。

以上の核種分析の結果に基づいて塵ガス試料の濃度を評価したが、原子炉出力との相関は不明であった。全体の傾向としては、長半減期核種の濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) が、出力上昇試験期間中に 10^{-5} から 10^{-4} オーダーに1桁程度増加し、アルゴンおよび窒素系から、各々 ^3H , ^{41}Ar が支配的に塵ガス処理系へ到達していることが認められた。

本試験では、核種の同定が不完全で塵ガスデータについての十分な解析結果が得られていないが、今後は実験をふまえて、プラント状態に合致させたサンプリング、連続測定の方法の検討、 ^3H , ^{14}C の定性・定量分析の可能な測定方法の導入、および塵ガス発生源の放射性ガスの核種・濃度・発生量などに関する試験の充実により総合的な解析・評価を進める。尚、試験期間中の塵ガスの濃度・放出率は、管理基準値を十分に満足していた。

* 大洗工務センター安全管理部放射線管理課第2係
** 同上 高速実験炉部技術課プラントGT
*** 同上 原子炉第1課第4GT

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。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002
動力炉・核燃料開発事業団 大洗工務センター
システム開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technology Management Section, O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002, Narita O-arai-machi Higashi-Ibaraki-gun, Ibaraki, 311-14, Japan

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



Oct., 1979

"JÖYÖ" Start-Up Test Report

Measurement of Radioactive Waste Gas

°Yuji Nakashima*, Norio Nemoto*,
Kiyoshi Endo*, Takayoshi Hikichi**,
Tethunori Yasu**, Tadashi Hirose**
Hideyuki Imaizumi***, Masaaki Tamura***,
Minoru Kashikubo*** and Hideyasu Miwa***

Abstract

A radionuclide-analysis and a determination of activity of the waste argon and nitrogen gas were carried out during the power ascension test. The sampling of the gas was carried out by means of stainless steel vacuum vessels or vinyl bags and gamma activities were analyzed with a multi channel pulse height analyzer (MCA) and a vibrating reed electrometer (VRE).

^{41}Ar was observed as the major part of gamma activity. In addition to ^{41}Ar , some long-lived radionuclides were observed in the decay measurement with VRE. Concerning long-lived radionuclides, it was confirmed that some amounts of ^3H existed as a part of activity and some amounts of ^{14}C were considered to be in the waste gas by judging several characteristic informations of the gas. The concentration of radionuclides in the waste gas were also evaluated. No relationship between the concentrations and a reactor power were found. Above results, however, indicated such general tendency that the concentration of this long-lived radionuclides released from the argon and nitrogen waste gas are ^3H and ^{41}Ar . The values of concentrations of the radionuclides and release rates of the waste gas were well below the control criteria in this test period.

* Radiation Control Section, Health and Safety Division, O-arai Engineering Center, PNC.

** Reactor Technology Section, Experimental Fast Reactor Division, do.

*** Operation Section, Experimental Fast Reactor Devesion, do.

目次

1. まえがき	1
2. 廃ガス処理系設備概要	3
2.1 アルゴン廃ガス処理系概要	3
2.2 窒素廃ガス処理系概要	3
2.3 サンプリングボックス概要	3
3. 試験の方法	6
3.1 廃ガス核種分析	6
3.2 廃ガス濃度測定	7
4. 試験結果	11
4.1 サンプリング条件	11
4.2 廃ガス核種分析	12
4.3 廃ガス濃度測定	20
5. 検討	25
5.1 管理基準値について	25
5.2 基礎データについて	25
6. 結 語	27
添付データ	28
参考資料	32

図 表 目 次

表 1.1. 平常運転時の予想される気体廃棄物	1
図 2.1. 廃ガス処理系フローシート	4
図 2.2. 廃ガスサンプリング系統フローシート	5
図 3.1. ガス採取バッグ	6
図 3.2. 廃ガス核種分析ブロックダイヤグラム	6
図 3.3. ガス抽集用電線箱	7
図 3.4. 廃ガス濃度測定ブロックダイヤグラム	7
図 3.5~3.7. 表題なし	9
図 4.1. 予定と実績	11
表 4.1. 廃ガス試料 γ 線スペクトル	12
表 4.2. 廃ガス試料減衰特性	12
図 4.2. 9 MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル	13
図 4.3. 15 MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル	14
図 4.4. 50 MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル (サンプリング直後測定)	15
図 4.5. 50 MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル (サンプリング約 20 時間後測定)	16
図 4.6. (9 MWt 時) 廃ガス試料減衰特性<Type-a>	17
図 4.7. (9 MWt 時) 廃ガス試料減衰特性<Type-b>	18
図 4.8. (燃交モード) 廃ガス試料減衰特性<Type-c>	19
表 4.3. ^{14}C の濃度算出結果	21
表 4.4. ^3H と ^{14}C の混在比 (発)	21
表 4.5. 廃ガス試料濃度測定結果	22
図 4.9. (1), (2) 廃ガス濃度測定結果	23
図 5.1 ~ 5.3. 廃ガス処理系ガスマニタ指示値記録	29

List of Tables

Table 1.1. Radionuclides of the waste gas evaluated in normal operation.	1
Table 4.1. Distribution of gamma-ray spectrum of the waste gas analyzed with MCA.	4
Table 4.2. Distribution of decay characteristic of the waste gas analyzed with VRE.	5
Table 4.3. The estimated activity of ^{14}C .	6
Table 4.4. The ratio of ^3H to ^{14}C activity.	7
Table 4.5. Concentration of waste gas activity.	9

1. ま え が き

「常陽」から排出される放射性気体廃棄物は、一次カバ-ガス系、燃料交換機等の燃料取扱系から排出されるアルゴン廃ガス、および一次容器ガス予熱系、安全容器呼吸系から排出される窒素廃ガスが主要である。気体廃棄物の平常運転時に予想される核種・量・放出率は、表1.1(a)~(f)に示すとおりであり、着目する核種は⁴¹Ar, ³H, ¹⁴Cと考えられる。ただし、⁴¹Arは、半減期が短く、発生源から廃ガス処理設備に到達するまでの時間が相当長いので、排出されるまでに十分減衰する。また、³H, ¹⁴Cは半減期が長いので、運転履歴を蓄積していかないと、放射能値は増加しない。

そこで、これらの廃ガスについて、管理基準値との比較、高速炉における廃ガスの基礎データの収集などを目的に、各出力毎のサンプリングにより核種分析および濃度評価を行った。

表1.1 平常運転時の予想される気体廃棄物

(出典：高速実験炉「常陽」運転マニュアル参考資料) p.41~43

(a) アルゴンガス

核種	半減期	単位時間当り生成量 (Ci/sec)	排気塔先端放出量
⁴¹ Ar	110min	0.77×10^{-3}	3×10^{-7} Ci/sec

*1:主に一次カバ-ガス種で生成。⁴⁰Ar(n, γ)⁴¹Ar

(b) ナトリウム中の不純物ウランによる核分裂生成物

核種	半減期	単位時間当りの生成量 (Ci/sec)	Na中の不純物ウランによるものカバ-ガスへの放出率 (Ci/sec)	廃ガス系への放出率 (Ci/sec)
Kr 83m	144 m	2.85×10^{-3}	5.99×10^{-11}	1.57×10^{-12}
Kr 85m	4.36 h	1.98	4.15×10^{-8}	8.55×10^{-9}
Kr 85	10.27 y	1.00×10^{-5}	2.10×10^{-13}	2.10×10^{-13}
Kr 87	78 m	8.00×10^2	1.68×10^{-6}	7.90×10^{-8}
Kr 88	2.77 h	5.4×10^2	1.13×10^{-5}	9.28×10^{-7}
Kr 89	3.18 m	3.15×10^3	6.32×10^{-5}	0.0
Xe 131m	12.0 d	1.05×10^{-8}	2.21×10^{-16}	2.16×10^{-16}
Xe 133m	2.3 d	9.75×10^{-4}	2.05×10^{-11}	1.81×10^{-11}
Xe 133	5.3 d	1.90×10^{-2}	3.89×10^{-10}	3.78×10^{-10}
Xe 135m	15.6 d	4.40×10^{-1}	9.24×10^{-9}	0.0
Xe 135	9.1 h	4.18	8.77×10^{-8}	4.11×10^{-9}
Xe 137	3.9 m	4.70×10^3	9.87×10^{-5}	0.0
Xe 138	17 m	1.18×10^3	2.47×10^{-5}	0.0
I 131	8.1 m	4.23×10^{-2}	8.87×10^{-13}	8.56×10^{-13}
I 132	2.4 h	1.14 × 10	2.40×10^{-10}	1.11×10^{-11}
I 133	20.8 h	6.45	1.35×10^{-10}	9.68×10^{-11}
I 134	52.5 m	1.83×10^2	3.83×10^{-9}	1.42×10^{-12}
I 135	6.7 h	4.18×10	8.77×10^{-10}	3.10×10^{-10}

List of Figure

Fig. 2.1 Schematic flow diagram of the waste gas treatment system.

Fig. 2.2 Schematic flow diagram of the waste gas sampling system.

Fig. 3.1 Vinyl bag for sampling.

Fig. 3.2 Schematic block diagram of the multi channel pulse height analyzer for gamma-ray spectrum.

Fig. 3.3 Stainless steel vacuum vessel for sampling.

Fig. 3.4 Schematic block diagram of the vibrating reed electrometer for total activity.

Fig. 3.5 ~ 3.7 No title.

Fig. 4.1 Schedule and accomplishment of waste gas sampling.

Fig. 4.2 Gamma-ray spectrum of the waste gas at 9 MWt power operation.

Fig. 4.3 Gamma-ray spectrum of the waste gas at 15 MWt power operation.

Fig. 4.4 Gamma-ray spectrum of the waste gas at 50 MWt power operation. (directly after sampling)

Fig. 4.5 Gamma-ray spectrum of the waste gas at 50 MWt power operation. (at about 20 hours after sampling)

Fig. 4.6 Decay characteristic of the waste gas at 9 MWt. (Type-a)

Fig. 4.7 Decay characteristic of the waste gas at 9 MWt. (Type-b)

Fig. 4.8 Decay characteristic of the waste gas at refueling period. (Type-c)

Fig. 4.9-(1) Waste gas activity depending on reactor power.

Fig. 4.9-(2) Waste gas activity dependign on reactor integrated power.

Fig. 5.1 ~ 5.3 Variation of waste gas activity measured by gas monitor. (1) ~ (3)

(c) 放射性化ナトリウム

核種	半減期	ナトリウム蒸気による放射能強度	カベガス領域からの放射率
²² Na	2.58 y	5.2×10^{-6} Ci (*2)	8.7×10^{-11} Ci/sec
²⁴ Na	15.1 h	1.42×10^{-2} Ci	2.4×10^{-7} Ci/sec

*2: ナトリウム温度 435℃での飽和蒸気圧 0.001 atm より求めた

(d) トリチウム

核種	半減期	単位時間当り生成量	放射率
³ H	12.26 y	3×10^{-8} Ci/sec	3×10^{-9} Ci/sec

*3: Ternary fission, 制御棒・調整棒に含まれる ^{6,7}Li, ^{10,11}B から生成

(e) 窒素ガス

核種	半減期	放射能量及び放出量
¹⁴ C	5568 y	10年間照射で 4.5×10^{-8} μ Ci/cm ³ 放出放射能量としては 無視し得る。
¹⁶ N	7.35 s	"

*4: ¹⁶N (n, p) ¹⁴C, ¹⁶N (n, γ) ¹⁶N の反応で生成

(f) 燃料破砕時における核分裂生成物の放射率 (2 多岐相想定)

核種	半減期	生成量 (Ci/sec)	単位時間当り 生成量の2% 相当放出時の カベガスへの放 出率 (Ci/sec)	燃料系への 放射率 (Ci/sec)	14日間クランクへ 送入了た際の 放射能 (Ci)	さらに13日間 冷却した際の 放射能 (Ci)	クランクへ貯留 した場合の排 気筒からの放 出率 (Ci/sec)
Kr 83m	114 m	2.85×10^{-3}	5.7×10^{-5}	1.50×10^{-6}	1.48×10^{-2}	0.0	0.0
Kr 85m	4.36h	1.98	3.96×10^{-2}	8.16×10^{-3}	1.86×10^2	0.0	0.0
Kr 85	10.27y	1.0×10^{-5}	2.00×10^{-7}	2.00×10^{-7}	2.13×10	2.13×10	1.76×10^{-5}
Kr 87	78 m	8.0×10^2	1.60×10^1	7.52×10^{-2}	5.08×10^2	0.0	0.0
Kr 88	2.77h	5.4×10^2	1.08×10^1	8.87×10^{-1}	1.28×10^4	0.0	0.0
Kr 89	3.18m	3.15×10^3	6.30×10^1	0.0	0.0	0.0	0.0
Xe131m	12.0 d	1.05×10^{-3}	2.10×10^{-10}	2.05×10^{-10}	1.70×10^{-4}	8.05×10^{-5}	6.65×10^{-11}
Xe133m	2.3 d	9.75×10^{-4}	1.95×10^{-5}	1.72×10^{-5}	4.84	9.51×10^{-2}	7.86×10^{-8}
Xe133	5.3 d	1.90×10^{-2}	3.80×10^{-4}	3.60×10^{-4}	1.99	3.60×10^1	2.98×10^{-5}
Xe135m	15.6 d	4.40×10^{-1}	8.8×10^{-3}	0.0	0.0	0.0	0.0
Xe135	9.1 h	4.18	8.36×10^{-2}	3.91×10^{-2}	1.85×10^3	0.0	0.0
Xe137	3.9 m	4.70×10^3	9.40×10^1	0.0	0.0	0.0	0.0
Xe138	17 m	1.18×10^3	2.36×10^1	0.0	0.0	0.0	0.0
I 131	8.1 d	4.23×10^{-2}	8.46×10^{-7}	8.16×10^{-7}	5.75×10^{-1}	1.89×10^{-1}	1.56×10^{-7}
I 132	2.4 h	1.14 × 10	2.28×10^{-4}	1.06×10^{-5}	1.24 × 10 ⁻¹	0.0	0.0
I 133	20.8 h	6.45 × 10	1.29×10^{-4}	9.25×10^{-5}	1.00 × 10	0.0	0.0
I 134	52.5 m	1.83×10^2	3.66×10^{-3}	1.35×10^{-6}	6.14×10^{-3}	0.0	0.0
I 135	6.7 h	4.18×10	8.36×10^{-4}	2.95×10^{-4}	1.02×10	0.0	0.0

2. 廃ガス処理系設備概要

2.1. アルゴン廃ガス処理系概要

廃ガス処理系の概略フローシートを図2.1に示す。

アルゴン廃ガス処理系に流入する廃ガスは廃ガスヘッダに集められ、次いで廃ガスクーラーで冷却される。廃ガスはプレフィルター通過後、放射性ガスモニタによりモニタリングされ、放射性物質濃度が規定濃度 ($0.03 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) 以下の場合は、廃ガスをバイパスして廃ガスポストフィルタを経て排気筒から放出される。また、廃ガスの放射性物質が $0.03 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以上の場合は、廃ガスをタンクに送り圧縮貯留される。

廃ガスタンクからの放出は、廃ガスのサンプリング測定および連続モニタリングにより放射性物質濃度が放出基準 (61.5 Ci/day) 以下で放出できることが確認された場合のみ行われる。

注-1) 「原子炉施設保安規定 参考資料 (S. 50. 4.) を参照」

2.2. 窒素廃ガス処理系概要

窒素廃ガス処理系に流入する廃ガスは、まず窒素ガスクーラーにより冷却される。次にフィルターで炉過され、窒素ガス中に含まれる粒子状物質が除去された後、系内の放射性物質濃度が規定濃度 ($0.03 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) 以下の場合は、ブローにより排気筒から大気へ放出される。

また、廃ガスの放射性物質濃度が $0.03 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以上の場合は、アルゴン廃ガス処理系へ送り処理される。

2.3. サンプリングボックス概要

廃ガスサンプリング系統のフローシートを図2.2に示す。

本サンプリングボックスは廃ガスタンクおよび廃ガス処理系ラインからの配管が集中されており、バルブ操作によって任意のタンクまたはラインの廃ガスをサンプリングできるようになっている。サンプリングボックスの形状はグローブボックス型であり、廃ガスをサンプリングするための抽集容器はボックス内に入れて、グローブボックスの気密性を保持した状態でサンプリングすることができる。

ボックスには真空ポンプが備えてあり、タンクおよびラインからの廃ガスをサンプリングする時サンプリングライン内のガスを完全に置換させてから行う。

注-2) 窒素廃ガス処理系のサンプリングラインは設備として不備の為、本試験期間中は使用せず。試験終了後、改造予定。(S. 53. 10. より使用可能)

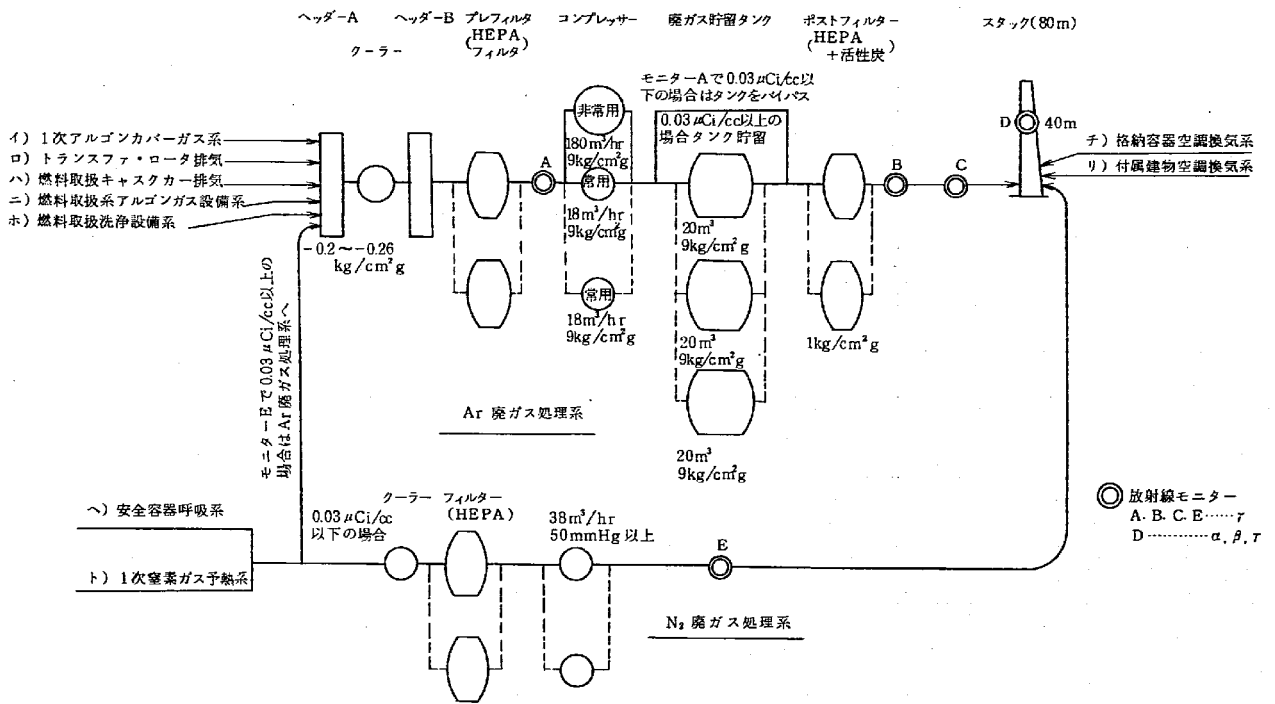


図 2.1 廃ガス処理系フローシート

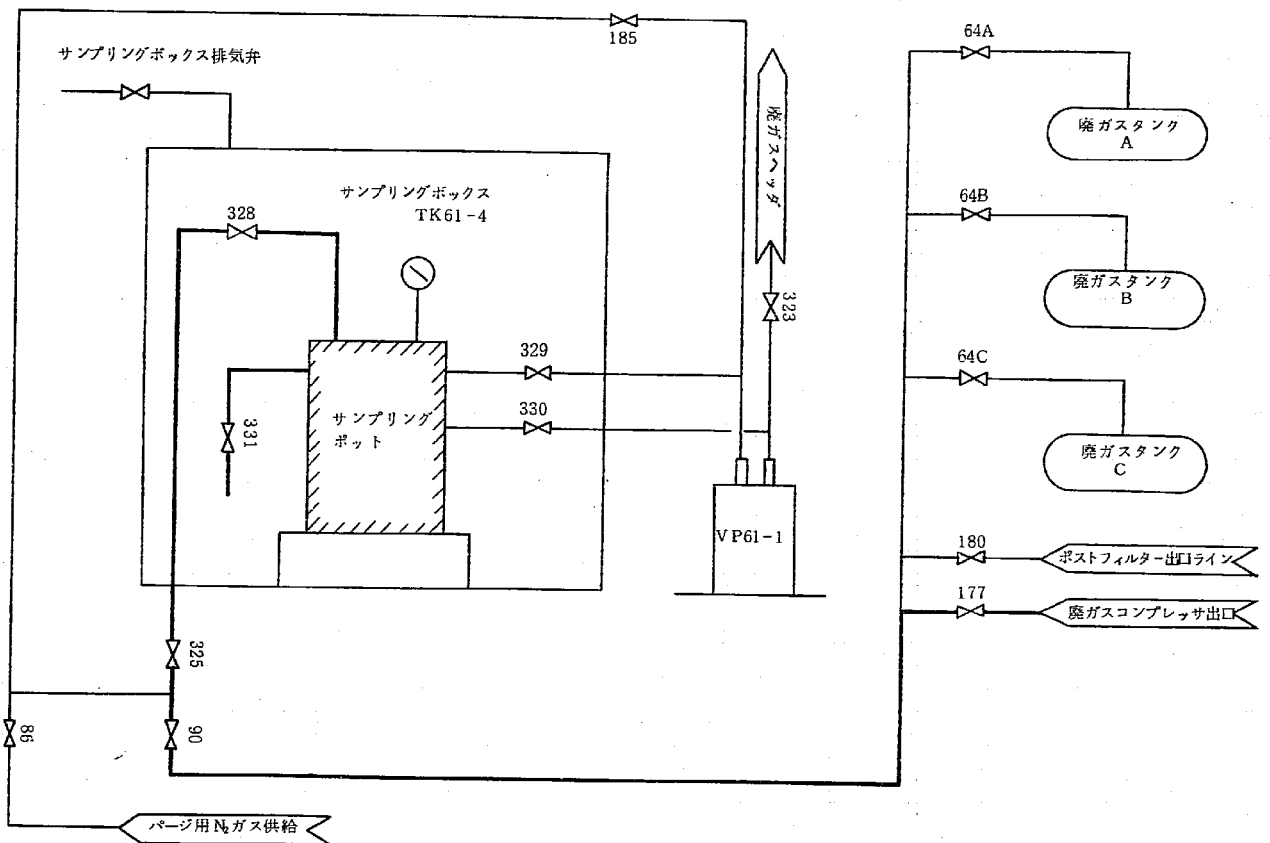


図 2.2 廃ガスサンプリング系統フローシート

3. 試験の方法

廃ガス核種分析と廃ガス濃度測定について、各々サンプリング方法、測定方法、解析方法の順に以下に示す。

3.1. 廃ガス核種分析

(1) サンプリング方法

図2.2のサンプリングノズルに二連球を取付けたガス採取バッグ（以下「バッグ」）…図3.1参照）を接続し、手で廃ガスをサンプリングする。

採取後は、内部の試料ガスが漏れないように、締め金具で、ホースを締めつける。

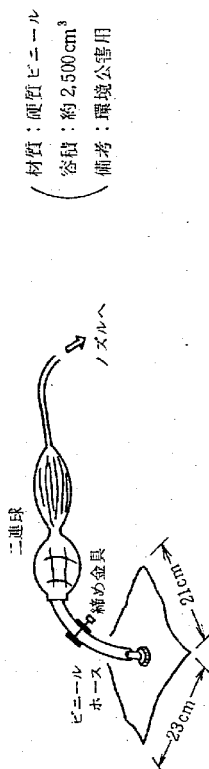


図3.1. ガス採取バッグ

(2) 測定方法

廃ガスで十分に満たしたバッグを鋳製の遮へい測定台に入れ、多重高分析装置（以下「MCA」）で試料のγ線スペクトルを測定する。

なお、検出器には、NaI (Tl) 検出器およびGe (Li) 半導体検出器の二種類を用意する。

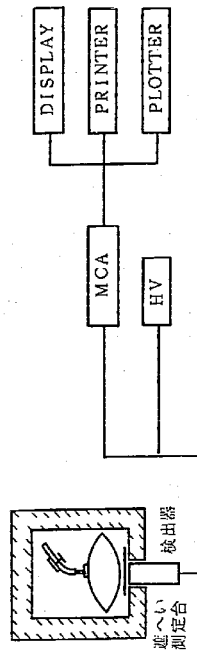


図3.2. 廃ガス核種分析ブロックダイアグラム

(3) 解析方法

MCA で得られた廃ガス試料のγ線スペクトルにより、試料に含まれるγ線放出核種のγ線エネルギーを決定し、表1.1に示した予想核種を考慮して、該当核種を同定する。

3.2. 廃ガス濃度測定

(1) サンプリング方法

図2.2のサンプリングノズルに、あらかじめ真空状態にしたガス捕集用電離箱（以下「1.5Lチェンバ」）を接続し、付属のバルブの閉閉により廃ガスをサンプリングする。

なお、サンプリング時には、1.5Lチェンバ内が大気圧と等しくなるように注意する。

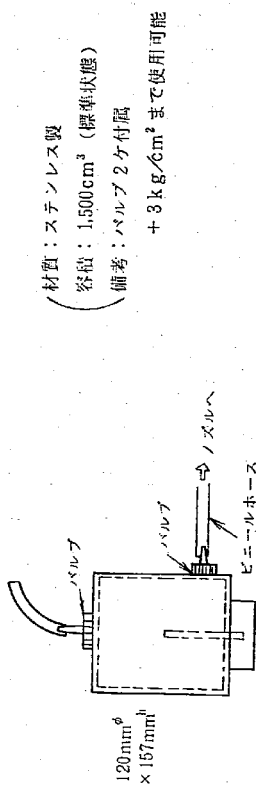


図3.3. ガス捕集用電離箱

(2) 測定方法

廃ガスをサンプリングした1.5Lチェンバを振動容器電位計（以下「VRE」）に装着し、主にチェンバ内の放射性ガスのα線、β線による電離電流を測定する。

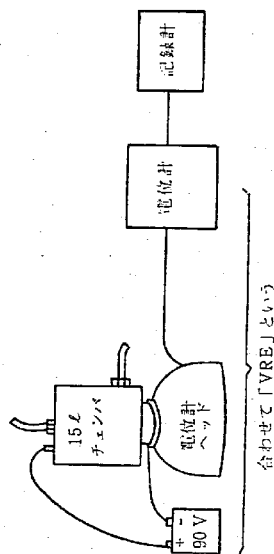


図3.4. 廃ガス濃度測定ブロックダイアグラム

一般に電離電流と濃度C (μCi/cm³) の関係は次式による。

$$C = \frac{W \times I}{V \times (3.7 \times 10^4) \times E \times 10^5 \times (1.6 \times 10^{-19}) \times \eta} = 3.8 \times 10^5 \frac{I}{E \eta} \quad (\mu\text{Ci}/\text{cm}^3) \quad \dots\dots (3-1)$$

ここで、

$$\begin{cases} C = \text{放射性ガス濃度} (\mu\text{Ci}/\text{cm}^3) \\ V = \text{電離箱容積} (\text{cm}^3) \end{cases}$$

$$E = \text{平均エネルギー (MeV)}$$

$$I = \text{電離電流 (Amp)}$$

$$\eta = \text{電離効率}$$

$$W = 1 \text{ ケのイオンを作るのに要するエネルギー}$$

$$\left(\beta \text{線に対しては } E \approx 0.33 E_{\text{max}} \left(1 - \frac{Z^{1/2}}{50}\right) \left(1 + \frac{E_{\text{max}}}{4}\right) \right)$$

$$\left(\alpha \text{線に対しては } E \approx 0.33 E_{\text{max}} \text{ としてよい。} \right)$$

$$\left(\beta \text{線に対しては } 34 \text{ eV, } \alpha \text{線に対しては } 35 \text{ eV} \right)$$

電離箱の電離効率 η は、 β 線の平均エネルギー E に反比例する。したがって $E\eta$ の積は一定になるので、一般に β 線に対しては ^3H を除いて同一の計算式によって濃度を求めてよい。
一般の β 線に対しては、(3-1)式に $E\eta$ の値を代入すると、次のようになる。

$$C = 1.6 \times 10^6 I \dots\dots\dots (3-2)$$

^3H に対しては、同様に

$$C = 1.1 \times 10^9 I \dots\dots\dots (3-3)$$

注-3) 応用物理 32 巻 (1963) $E\eta = 2.4 \times 10^{-2}$

以上の関係を用いたVREによる濃度測定は、次の2つの方法があり、通常は、「I) 高抵抗で測定した場合」の方法を用いている。

この方法を用いた場合の検出感度は、 ^3H に対して $\sim 2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 、一般の β 線に対して $\sim 1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ としている。

I) 高抵抗端子で測定した場合

一般の β 核種に対しては、

$$C = 1.6 \times 10^5 \frac{V}{R} \dots\dots\dots (3-4)$$

トリチウムに対しては

$$C = 1.1 \times 10^6 \frac{V}{R} \dots\dots\dots (3-5)$$

ただし、 V = 電位計の読み

(注-4) R = 測定に使用した抵抗値 (Ω)

注-4) 電離効率は 65% としている。

注-5) 管理上のバックグラウンド値 5 mV ($R = 10^{12} \Omega$) を差引いた正味値

II) オープン端子で測定する場合 (電荷蓄積法)

10^{-13} A 以下の微小電流を測定する場合はオープン端子を使用する。

一般の β 核種に対しては、

$$C = 1.6 \times 10^{-6} \frac{dV}{dt} \left(\frac{\text{mV}}{\text{sec}} \right) \dots\dots\dots (3-6)$$

^3H に対しては、

$$C = 1.1 \times 10^{-5} \frac{dV}{dt} \left(\frac{\text{mV}}{\text{sec}} \right) \dots\dots\dots (3-7)$$

【測定上の注意事項】

- a) 十分安定してから測定する (電離箱にガスを採集して約 10 ~ 15 分後)
- b) 電気溶接作業等が近くで行われている場合、空気イオンが発生して、その影響で高い指値を示すことがあるので注意すること。
- c) 半減期の短い核種については減衰の補正をする。
- d) 採取したガスが大気圧に等しくなるように注意すること。
- e) 飽和電流を与えるような電圧がかかっていること。
- f) 電離箱の空気の漏洩、バックグラウンドの上昇に注意する。(通常のバックグラウンドは 1 ~ 5 mV である)

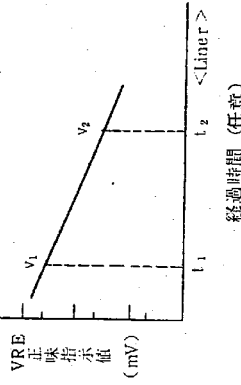
(3) 解析方法

原則的には、(2)で述べた方法で試料のグロス濃度が算出されるが、試料中に ^3H , ^{14}C 等の長半減期核種が存在する場合、多核種が存在する場合等の核種の同定、核種別濃度の算出について、解析方法を考察する。解析は、記録計に記録された電位計指示値と時間変化(「減衰特性」という)で行うが、MCA で得られた核種分析の結果も考慮し、総合的に行う。

以下に、予想される幾通りかの減衰特性について分類し、基本的な解析方法を示す。

I) 減衰が指数関数的で一律の場合

試料中の放射性ガスが単一核種と考えられるので、次の方法で核種の物理的半減期 ($T_{1/2}$) を求める。
 $V_2 = V_1 \times \exp \left\{ -0.693 \times (t_2 - t_1) / T_{1/2} \right\} \dots\dots\dots (3-8)$



ここで、 $T_{1/2}$ = 試料の物理的半減期
 t_1, t_2 = 減衰測定中の任意時刻
 V_1, V_2 = t_1, t_2 における VRE の正味指示値 (mV) 図 3.5

また、試料の放射性ガス濃度(C)は次式による。

$$C = 1.6 \times 10^5 \times \frac{V_0}{R} \dots\dots\dots (3-9)$$

ここで、 C = 放射性ガス濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)

V_0 = 試料採取時における VRE の正味指示値 (mV)

尚、 V_0 は、次式による時間補正を行い求める。

$$V_1 = V_0 \exp \left(-0.693 t_1 / T_{1/2} \right) \dots\dots\dots (3-10)$$

ii) 減衰が途中で飽和する場合

試料中に短半減期と長半減期の放射性ガスが混在していると考えられるので、長半減期の指示値 (V_L) を差引いて、図 3.6 の破線に 1) の方法を適用し、試料中の短半減期核種の物理的半減期と濃度を算出する。

また、長半減期核種についての物理的半減期はこの場合求まらず、核種は同定できない。更に、長半減期分の指示値も、核種が単一か、混在か、また、 3H の存在の有無によって、濃度への換算が異なるので、参考値として取扱う。

iii) 減衰が最初から飽和している場合 (減衰しない場合)

試料は、長半減期核種が単一または混在と考えられるが、それ以上の解析はできない。指示値の取扱いは、ii) と同様。

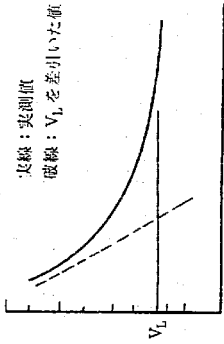


図 3.6.

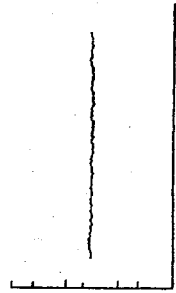


図 3.7.

4. 試験結果

各出力でサンプリングした廃ガス試料の核種分析、濃度測定の結果を下表に示す。

4.1. サンプリング条件

試験の予定と実績を図 4.1 に示す。

試験の実施率は 90% 以上で立合検査も含め合計 13 ケース (1.5 とチャレンジャー約 20 本、バッグ 13 袋) の廃ガスサンプリングを行った。

この期間の原子炉出力の推移は図のとおりで、原子炉が試験運転の為、頻りに原子炉出力が変化しているが、廃ガスサンプリングは全体として、起動前・運転中・停止後、また、各運転出力では連続運転の末期をねらって実施した。

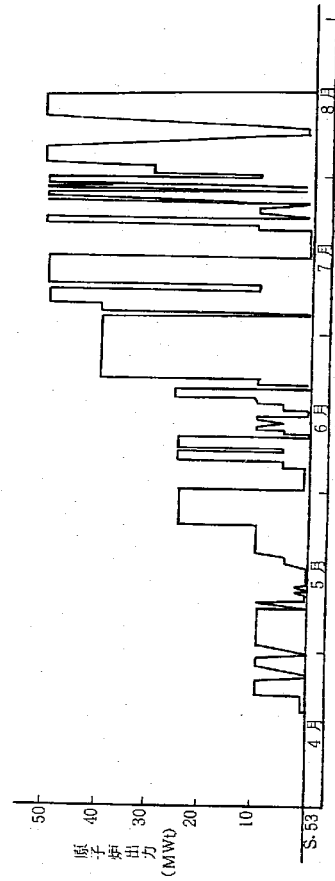
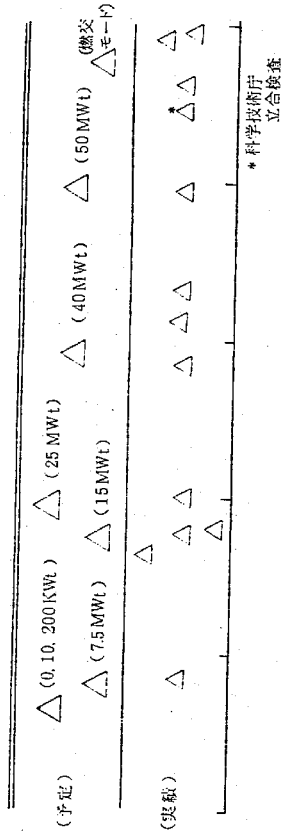


図 4.1 予定と実績

4.2. 廃ガス核種分析

多重波高分析装置でバッグを測定して得られた γ 線スペクトルと、脈動容量電位計セットで1.5eVチェンバを測定して得られた減衰特性の結果を異なるタイプに分類すると次のようになる。

(1) γ 線スペクトル

代表的なタイプを下表に示す。

表 4.1 廃ガス試料 γ 線スペクトル

タイプ	スペクトル	ケース*	備考
1	^{41}Ar の1.29 MeVのピークをもつ	2	図 4.2 参照
2	バックグラウンドスペクトルと同じ	11	図 4.3 参照

* 図 4.1 での実績を13ケースとする

Type-1に該当する廃ガス試料においては、 ^{41}Ar 以外の核種は全く検出されず(図 4.4. 参照), $\text{Ar}-41$ が減衰した後にも同様であった(図 4.5. 参照)。

(2) 減衰特性

代表的なタイプを下表に示す。

表 4.2 廃ガス試料減衰特性

タイプ	確認された核種	回数	備考
a	^{41}Ar ($T_{1/2} = 1.83\text{h}$)のみ	1	図 4.6 参照
b	^{41}Ar と長半減期核種*	3	図 4.7 参照
c	長半減期核種のみ	16	図 4.8 参照
d	なし	3	

* 廃ガスの分析により、 ^{90}Sr が確認されている。しかしながら、VREから算出した濃度($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)と分析データが一致しないことなどから、他の長半減期核種(ex. ^{14}C)の混在も推定される。(添付データ-1)参照

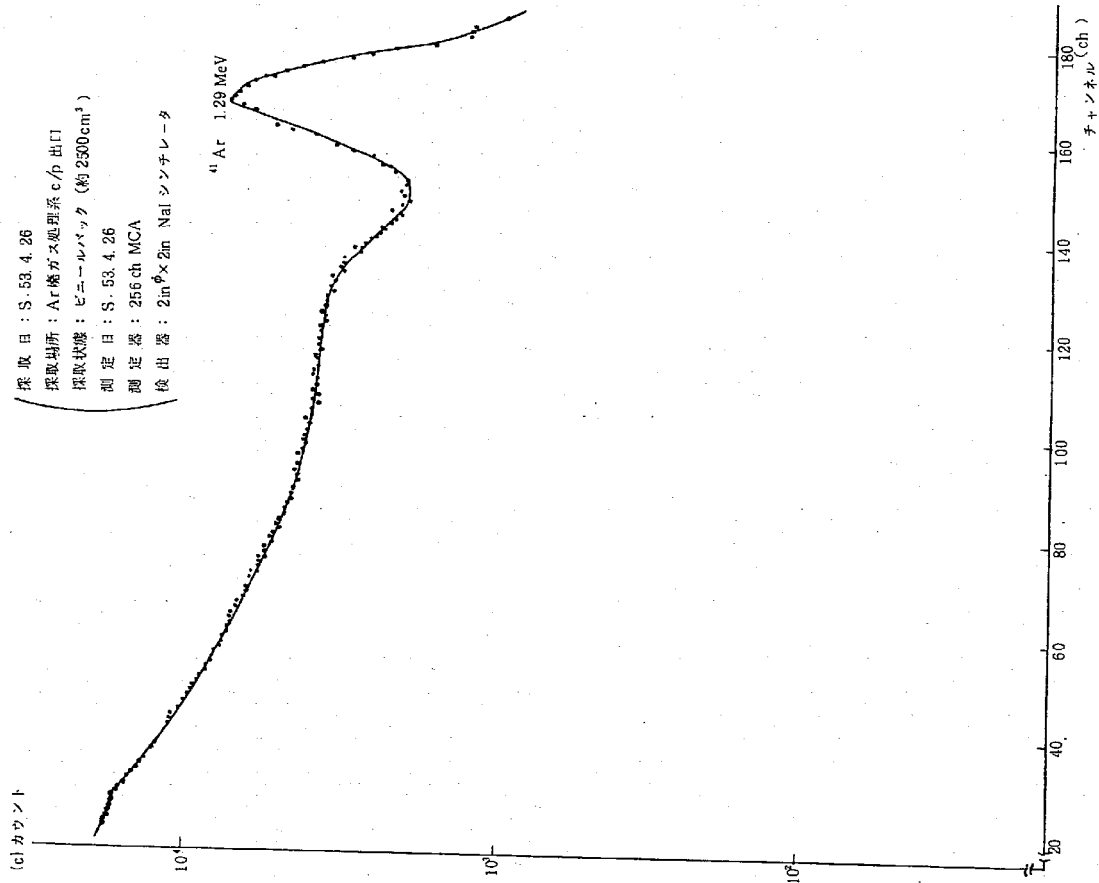


図 4.2 9 MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル<Type-1>

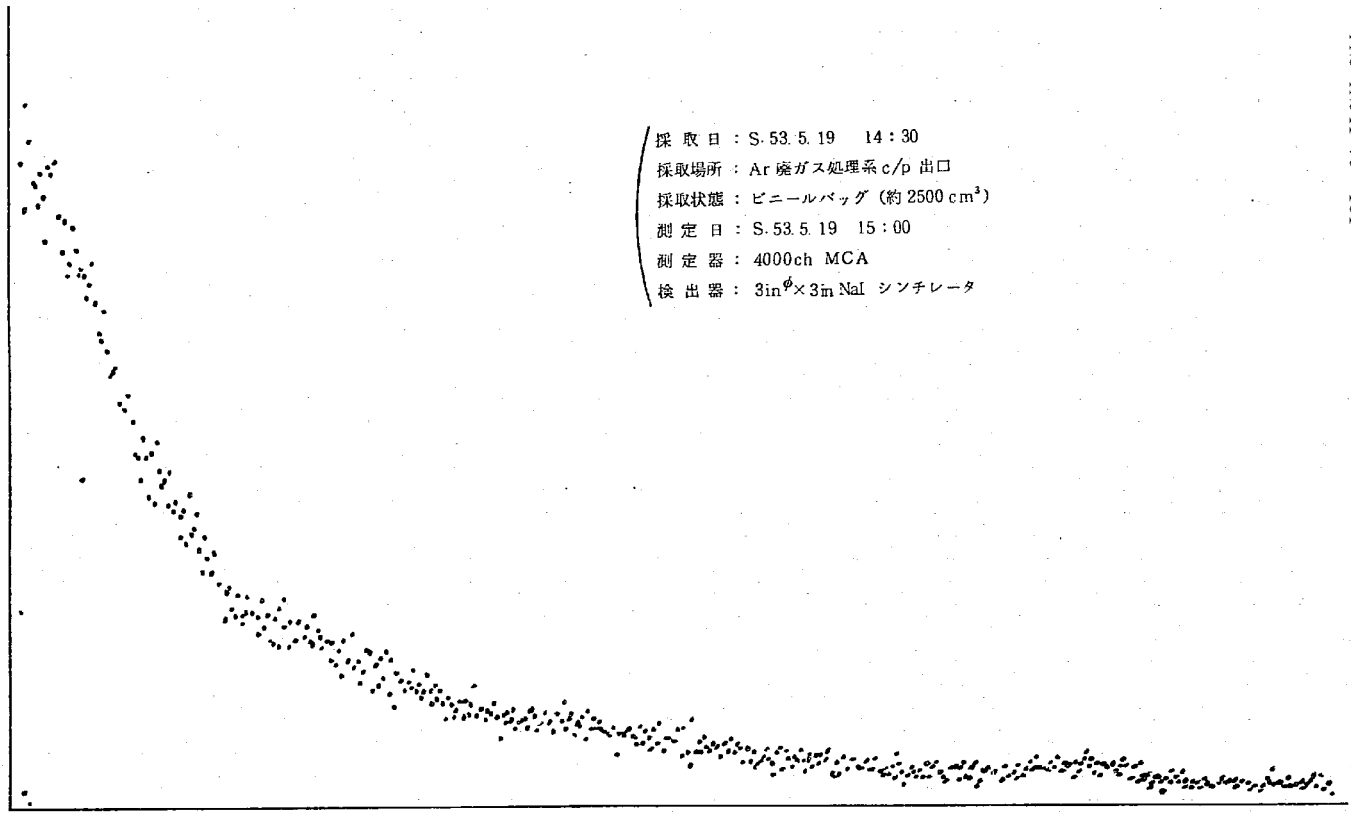


図 4.3 15MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル<Type-2>

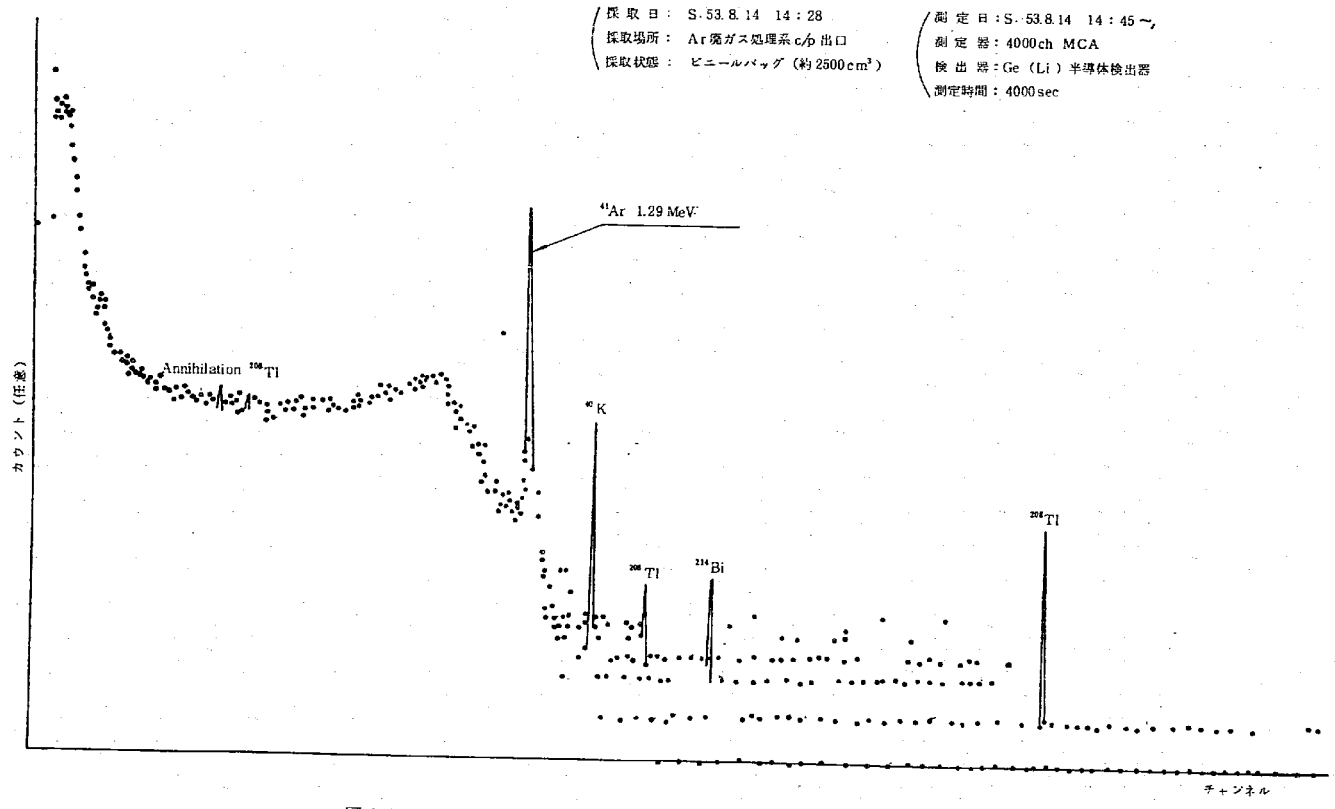


図 4.4 50MWt 時廃ガス試料 γ 線スペクトル (サンプリング直後測定)

採取日: S.53.4.26 15:11
 採取場所: Ar 廃ガス処理系 c/p 出口
 採取状態: 1.5 L チェンバ
 測定日: S.53.4.26 15:00 ~ 4.27 11:00
 測定器: VRE (R = 10¹⁰ Ω)

(×印... 廃ガス燃料試験データ
 (△印... 表測されたBG値 (~4 mV) を
 差引いた値)

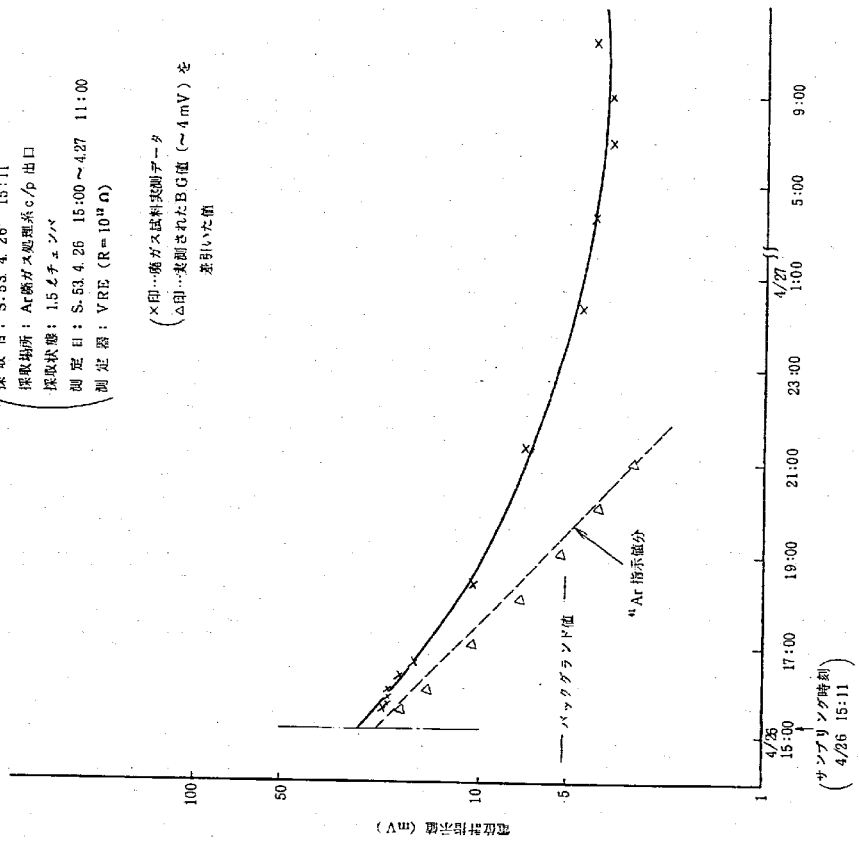
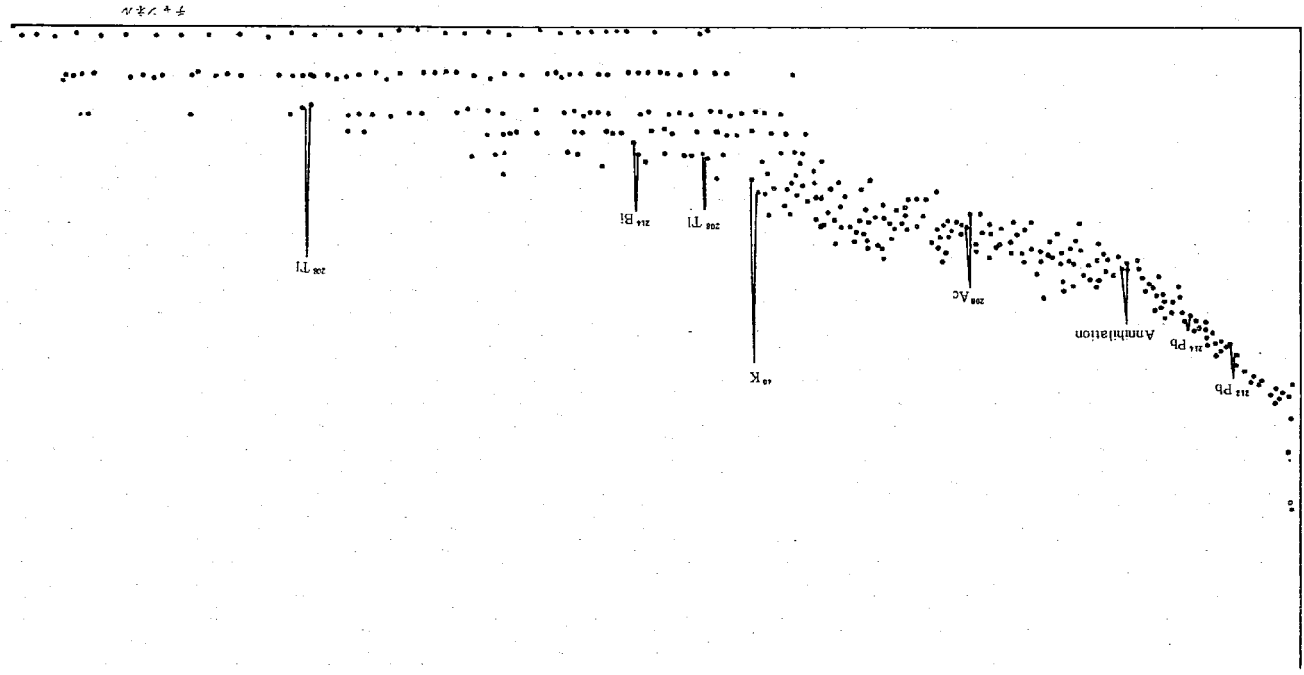


図 4.6 (9 MWt 時) 廃ガス燃料減衰特性 < Type-a >

図 4.5 50 MWt 時廃ガス燃料マスキング線スペクトル (サンプリング後約 20 hr 経過に測定)



採取日: S.53.8.14 14:28
 採取場所: Ar 廃ガス処理系 c/p 出口
 採取状態: E-エネルギー (約 2500 cm²)
 測定器: 4000 ch MCA
 測定器: Ge (Li) 半導体検出器
 測定時間: 4000 sec

チャンネル (任意)

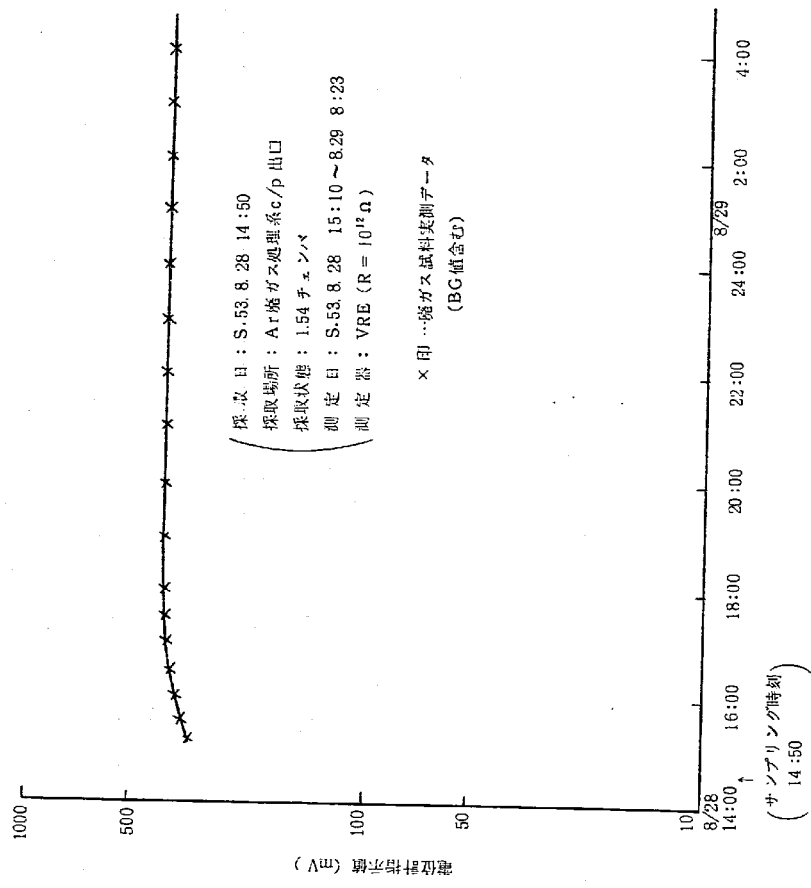


図 4.8 (燃交モード) 焼ガス試料減衰特性 <Type-c>

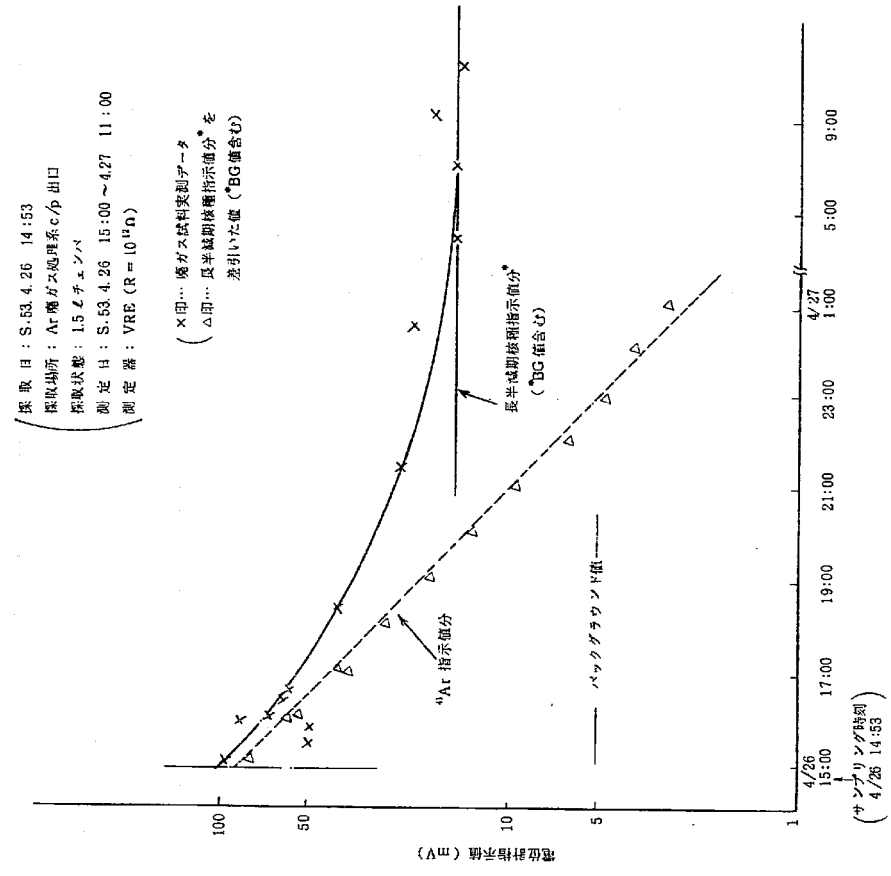


図 4.7 (9MWt 時) 焼ガス試料減衰特性 <Type-b>

4.3. 廃ガス濃度測定

各サンプリングにおけるVREによるデータと、4.2の結果をもとに廃ガス試料の濃度を計算した結果を表4.4にまとめる。

1.5とチェンバに封入した廃ガス試料をVREで長時間測定して減衰しなかった指示値分、すなわち長半減期核種による電離電流分を濃度に換算する場合、3.2-(2)-1)で示したように一般β線放出核種と³Hとでは換算係数が異なるので、表ではNa分析室の分析結果(表4.5.欄外参照)を参考に、試料中の長半減期核種を³Hのみと想定して(3-5)式により濃度を算出した。この場合、一般のβ線放出核種として濃度を計算するのに比べ、約7倍の過大計算となる。

参考値として⁶26、⁷3の廃ガス試料の核種別濃度を、分析結果とVREの測定データとから算出すると次のようになる。

注-6) 1.5とチェンバに封入した廃ガス試料は、濃度が相当低く、現段階での分析方法(βHの捕集方法)では十分に³Hが捕集されなことが予想される。従って、分析結果で得られた³Hの濃度(μCi/cm³)は、過小評価になっていると判断されるので、以下の計算結果は、参考値として取扱う。

尚、捕集方法についての検討は現在続行中である。

<核種別濃度の算出>

1) 計算式...³H以外の核種として¹⁴Cを仮定する。

廃ガス試料をVREで測定するときの放射能A(μCi)と電離電流値I(Amp)との関係式は、

一般のβ核種について : $A_C = K_1 \times I_C$ (4-1)

(ここでは¹⁴Cである) <ここで $K_1 = 2.4 \times 10^{11}$ >

³Hについて : $A_H = K_2 \times I_H$ (4-2)

<ここで $K_2 = 1.65 \times 10^{12}$ >

従って、濃度a(μCi/cm³)と電圧値V(mV)との関係式は、

$V = IR \cdot 10^3 = (A/K) \times R \times 10^3$ より

[¹⁴C : $V_C = (a_C \times V_C / K_1) \times R \times 10^3$ (4-3)

[³H : $V_H = (a_H \times V_H / K_2) \times R \times 10^3$ (4-4)

ここで

a_C, a_H : ¹⁴C, ³Hの放射能濃度(μCi/cm³)

V_C, V_H : 試料ガス容積(通常1500cm³)

R : 測定に使用する抵抗値(Ω)

V_C, V_H : 電位計指示値(mV)

ii) 計算結果

表4.3 ¹⁴Cの濃度算出結果

試料ID	a_H (μCi/cm ³)	V_H (mV)	A_H (μCi)	V_T (mV)	V_C (mV)	a_C (μCi/cm ³)
6/26	1.6×10^{-5}	1379	2.2×10^{-3}	1.3	680	66.7×10^{-6}
7/3	2.1×10^{-5}	1376	2.9×10^{-2}	17.6	575.0	9.7×10^{-5}

* $a_H \sim A_H$ まではNa分析室における分析結果(添付データ-I)より)

* V_T の値はVRE測定データ、但し、圧力補正のされていない値。(R=10¹² Ω)

表4.4 ³Hと¹⁴Cの混在比(%)

試料ID	a_H/a_C	A_H/A_T	a_C/a_T	V_H/V_C	V_H/V_T	V_C/V_T
6/26	14.5	12.7	87.3	2.0	2.0	98.0
7/3	23.6	19.1	80.9	3.2	3.1	96.9

表 4.5. 廃ガス試料濃度測定結果

プラント 状態	採取日	測定結果		備考
		濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	長半減期核種	
MWL 9	4/26	1.7×10^{-5}	Ar-41	
	5/19	$<2.0 \times 10^{-6}$		
	5/23	1.4×10^{-5}		
25	5/24	6.0×10^{-5}		
	6/1	7.3×10^{-5}		
40	6/26	7.5×10^{-5}		分析値
	7/3	8.3×10^{-5}		
	7/10	6.3×10^{-4}		
50	7/29	5.3×10^{-4}		分析値
	8/14	4.4×10^{-4}		
	8/18	4.3×10^{-4}		
燃交 モード	8/28	1.9×10^{-4}		局立
	8/30	1.0×10^{-4}		
		1.1×10^{-4}		
		1.3×10^{-3}		
		$<2.0 \times 10^{-6}$		
		$<2.0 \times 10^{-6}$		
		3.0×10^{-4}		
		4.4×10^{-4}		
		$<2.0 \times 10^{-6}$		
		4.6×10^{-4}		
		4.8×10^{-4}		

*1: 9Hとして計算した濃度
(一般の月線放出核種として計算する場合に比べ約7倍大きくなる。)

表 4.5. の結果を原子炉出力 (MWt) との関係で図 4.9 に示す。

参考データとして、一次カバークラスのサンプリングから得られた長半減期核種の濃度 $2.5 \sim 4.0 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ を図中に示す。この値も、廃ガス同様に ^3H として算出しているが、一次カバークラス内の長半減期線放出核種は ^3H のみと予想されるので、得られている濃度の値は信頼性があると考えられる。

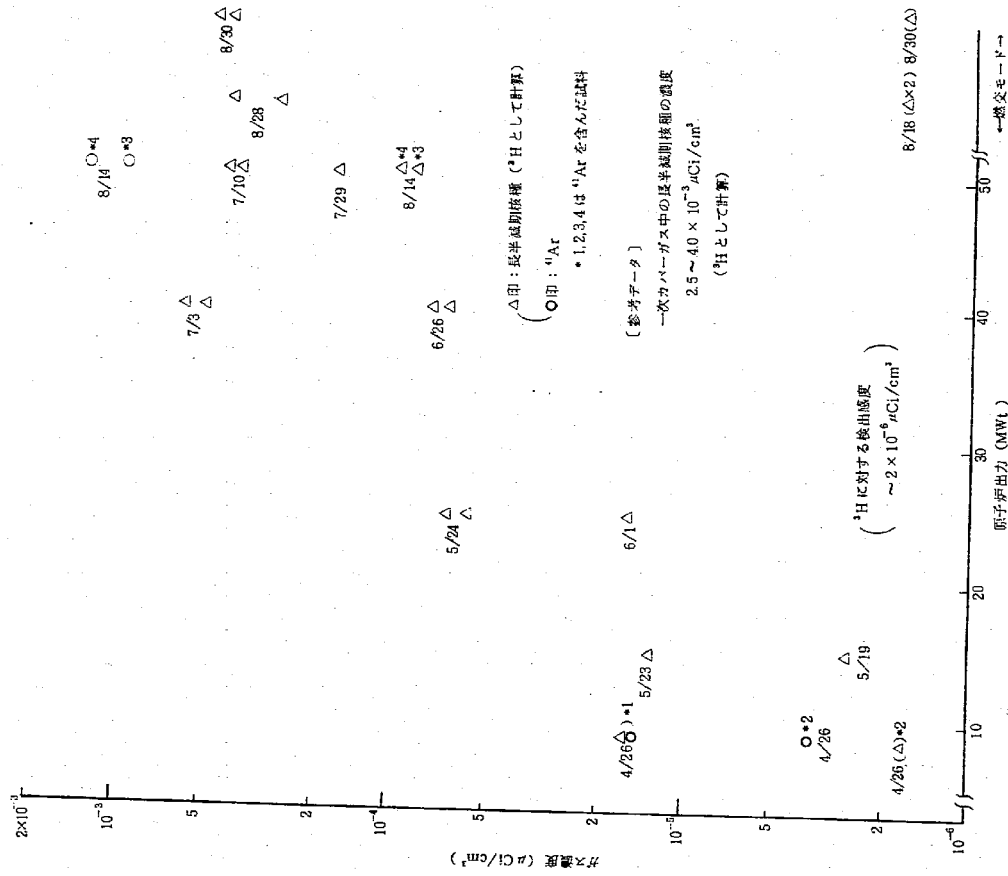


図 4.9 - (1) 廃ガス濃度測定結果 (S. 53. 4. 26 ~ 8. 30 原子炉最高出力 50 MWt)

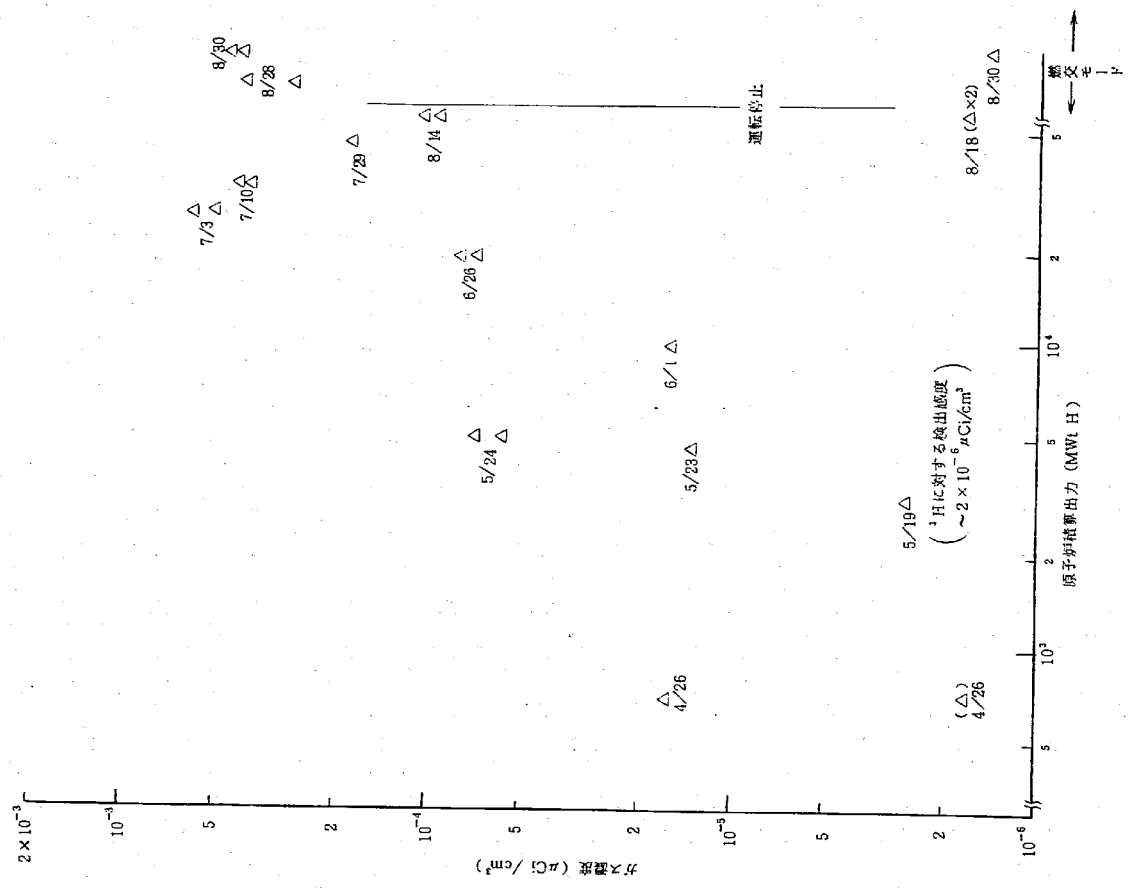


図 4.9-(2) 廃ガス濃度測定結果 (S. 53. 4. 26 ~ 8. 30 原子炉積算出力 50 MWt)

5. 検 討

前述の 4.結果をまとめ、考察すると次のようになる。

5.1. 管理基準値について

(1) バイパス放出時の値 $0.03 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ に対しては、廃ガスモニタ (GM-5, 6, 7, 8) のシーケンスにより順調に管理され、廃ガスサンプリングの結果も基準値以下であった。従って、一時間平均放出率 $0.33 \text{ Ci} \cdot \text{MeV}/\text{hr}$ も、設計上、満足していると思われる。確認の為、スタックガスモニタ (GM-3, 12) の指示値で放出率について考察してみると、この試験期間中、モニタの指示値が警報設定値 ($1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) 以下、更には検出感度 ($6.0 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) 以下であったことから、以下の計算例に示すように十分管理基準値を満足していることが認められる。

<放出率の計算例-(1)>

スタックにおいて、ガスモニタの検出感度の濃度のガスが 1 日間連続して放出されたと仮定した場合の、1 日間平均放出率 A (Ci·MeV/day) を計算する。

$$\begin{aligned} \left(\begin{array}{l} \text{検 出 感 度: } \gamma = 6.0 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \text{ (} E_{\gamma} = 1.29 \text{ MeV の場合)} \\ \text{スタック流量: } F \approx 13.0 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{hr} \end{array} \right) \end{aligned}$$

よって、

$$\begin{aligned} A &= \gamma \times (F \times 10^6) \times 1/10^6 \\ &= \{ 6.0 \times 10^{-8} \times (13.0 \times 10^4 \times 10^6) \times 1/10^6 \} \times 1.29 \\ &= (0.78 \times 10^{-2}) \times 1.29 \\ &= 0.01 \text{ Ci} \cdot \text{MeV}/\text{hr} \end{aligned}$$

故に、 $A \ll 0.33 \text{ Ci} \cdot \text{MeV}/\text{hr}$

(2) 廃ガススタック放出については、本試験期間中、該当する状態がなかったが、計算例-(1)の結果を引用して計算し、1 日間管理目標値を十分に下まわっていることが確認される。

<放出率の演計算例-(2)>

$$0.78 \times 10^{-2} \times 24 = 0.19 \text{ Ci}/\text{day} \quad (\ll 61.5 \text{ Ci}/\text{day})$$

5.2. 基礎データについて

(1) 廃ガス含有放射性核種として、 γ 線スペクトル、廃ガス分析などにより ^{41}Ar , ^3H が確認され、事前評価、減衰特性、廃ガス分析など諸々のデータにより ^{14}C の存在が推定される。また、 γ 線スペクトルの結果から、 ^{41}Ar 以外の γ 線放出核種、例えば FP である Kr ,

Xe, I, 一次冷却材の放射化 Na (ベーパーとして放出される可能性あり) などの存在は無いものと思われる。

(2) 廃ガス含有の核種・濃度とプラント状態 (ex. 原子炉出力、運転モード) との関係は、試験期間中のみのデータでは不明確である。強いて云えば、廃ガスモニタの指示値の変化から、出力上昇時すなわちプラント状態が不安定なときに、廃ガス放出の傾向がみられる。

(添付データ-②, ③, ④参照)

(3) 5.2(1), ②の結果と、ガスモニタ (GM-5.6.7.8) の指示変化を解析した結果を総合的にまとめると、次のことが予想される。

i) アルゴン廃ガス処理系に流入する廃ガスの含有放射性核種は ^3H が支配的である。

(一次カバークラスからの ^{41}Ar は、到達時間が十分に長いので減衰する。)

ii) 窒素廃ガス処理系に流入する廃ガスの含有放射性核種は ^{41}Ar が支配的である。

従って、通常、廃ガス処理系内には $10^{-4} \sim 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の濃度の ^3H が停留していることになる。

6. 結 言

原子炉の炉型が新しくかつ運転実績が少ないことで、廃ガス放出の実態・メカニズムなどが試験前にほとんど予測できず、しかも本試験期間中においても不明確であったことなどの理由により、結果に対する十分な解析を避けてきたが、今後は、i) プラント状態を考慮したサンプリング、ii) 測定方法の改善などを重点的に実施し、系統だった基礎的データを蓄積してゆく予定である。

i) については、50MWt 連続運転に廃ガス放出に関する情報・傾向を把握し、それに合致したサンプリングを実施すること、窒素廃ガス処理系の廃ガスサンプリングを併用すること。さらにガスモニタのインタロックを解除してアルゴン系と窒素系の分離サンプリング法を採用するなどにより、一層効果的なサンプリングが実現できる。

ii) については、3. 試験方法で示した以外の可搬型通気式ガスマニタによる連続測定、捕集装置と液体シンチレーションカウンタによる ^3H , ^{14}C の分離定性・定量分析などにより改善は実現可能で、今回不明だった点についての解析に大いに役立つと考えられる。

只、i), ii) の実施については幾つか問題があり、例えばサンプリングの為にプラントの運転状態を変更した場合の弊害、適切な連続サンプリング法により生ずるプラント管理・故障管理の難易さなど、検討を要する事項であろう。

また、「常陽」全体の総合的なガス管理を成すにも、廃ガスのデータ解析の面からも、廃ガスだけでなく、廃ガスの発生源となる一次カバークラス領域、安全容器呼吸系他の放射性ガスの核種・濃度・量などの測定を充実させることも、より一層必要と思われる。

以上の他に、全く解析できなかった VRE 測定の際の“グロウ特性 (仮称)” の問題、これは廃ガス含有核種・廃ガス濃度の結果に影響するので、注-7) 以外のアプローチの方法で早急に解決しなければならぬ。(図 4.8. 参照)

注-7) 測定系の健全性のチェック、FP の存在による核種種の生成を想定したフィッティング法 (手計算) による核種・濃度の推定の 2 通りで解析したが、適切な解答は得られなかった。

塵ガス試料の分析結果

1. 分析方法

1.5ℓチェンバに封入された試料ガス中の³Hを管目し、凝縮法で³Hを捕集して液体シンチレーションカウンタで放射能量を評価する。

2. 分析試料

採取日: S. 53.26 18° 20', S. 53.7.3 14° 05' の2本

採取場所: Ar 塵ガス処理系コンプレッサ出口

採取量: 約1500 cm³ (1.5ℓチェンバに封入)

3. 分析結果

採取日	核種	濃度 (μCi/cm ³)	量 (Ncm ³)	VRE指示値 (mV)
6/26	³ H	1.6 × 10 ⁻⁶	1379	68.0
7/3	³ H	2.1 × 10 ⁻⁵	1376	575.0

* 分析前にVREで測った値 (R = 10¹² Ω 使用)
この値を³Hとして濃度に換算すると、各々の値になる。
6/26 : 7.5 × 10⁻⁵ μCi/cm³, 7/3 : 6.3 × 10⁻⁴ μCi/cm³

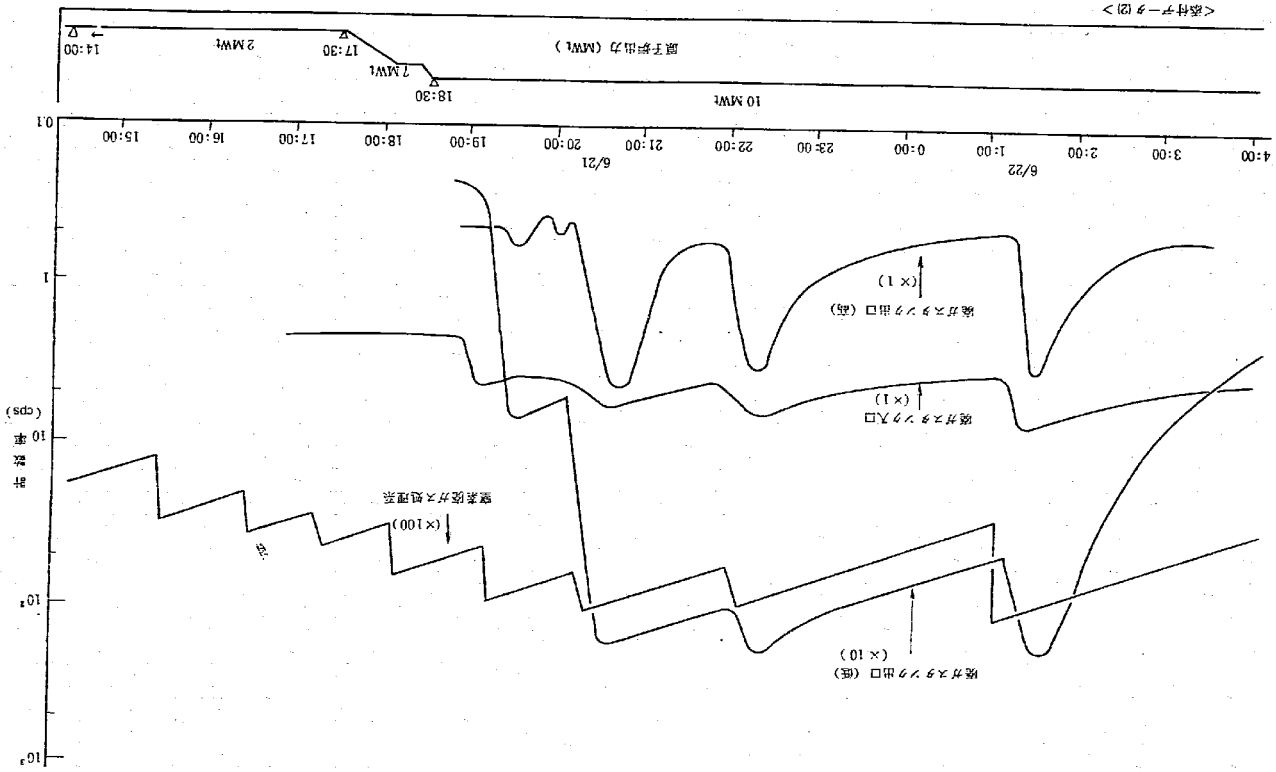


図 5.1 塵ガス処理系ガスマニピ指示値記録 (6/21 14:00 ~ 6/22 4:00 起動 ~ 2 MWt ~ 7 MWt ~ 10 MWt)

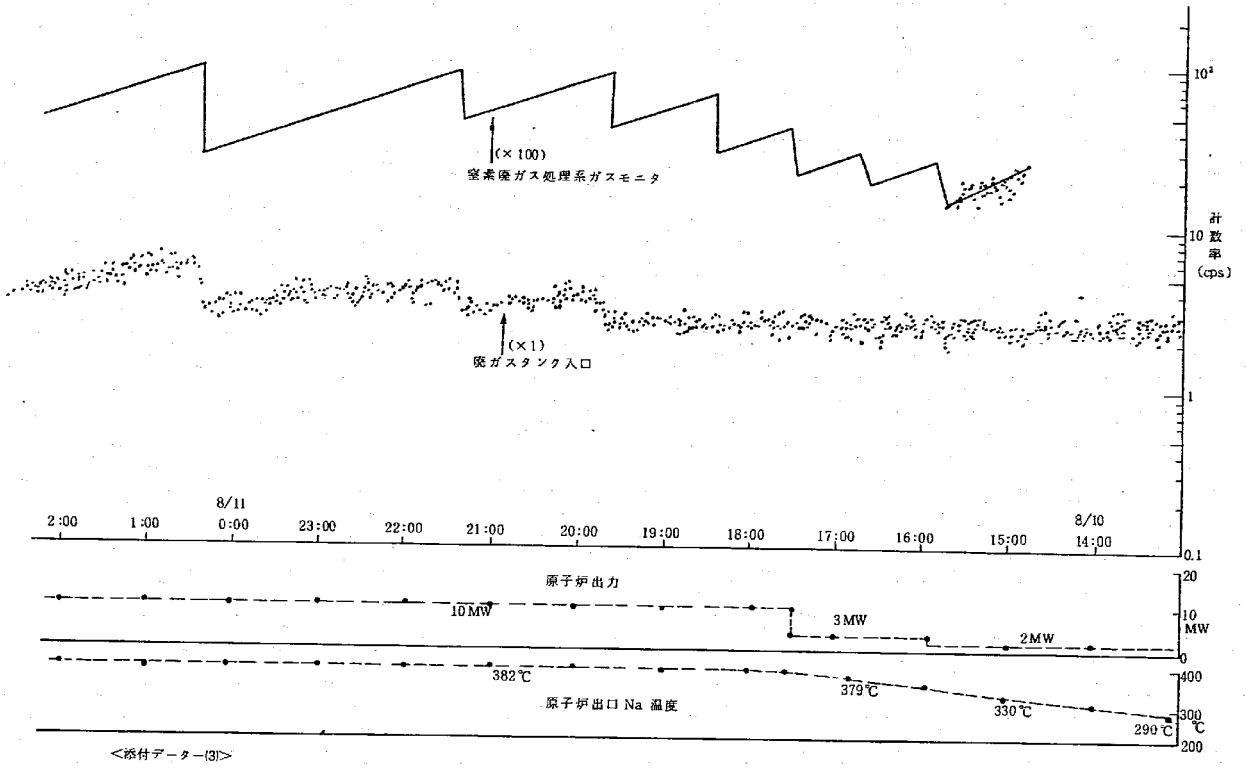


図 5.2 廃ガス処理系ガスモニタ指示値記録 (8/10 14:00~8/11 2:00 起動~2 MWt~3 MWt~10 MWt)

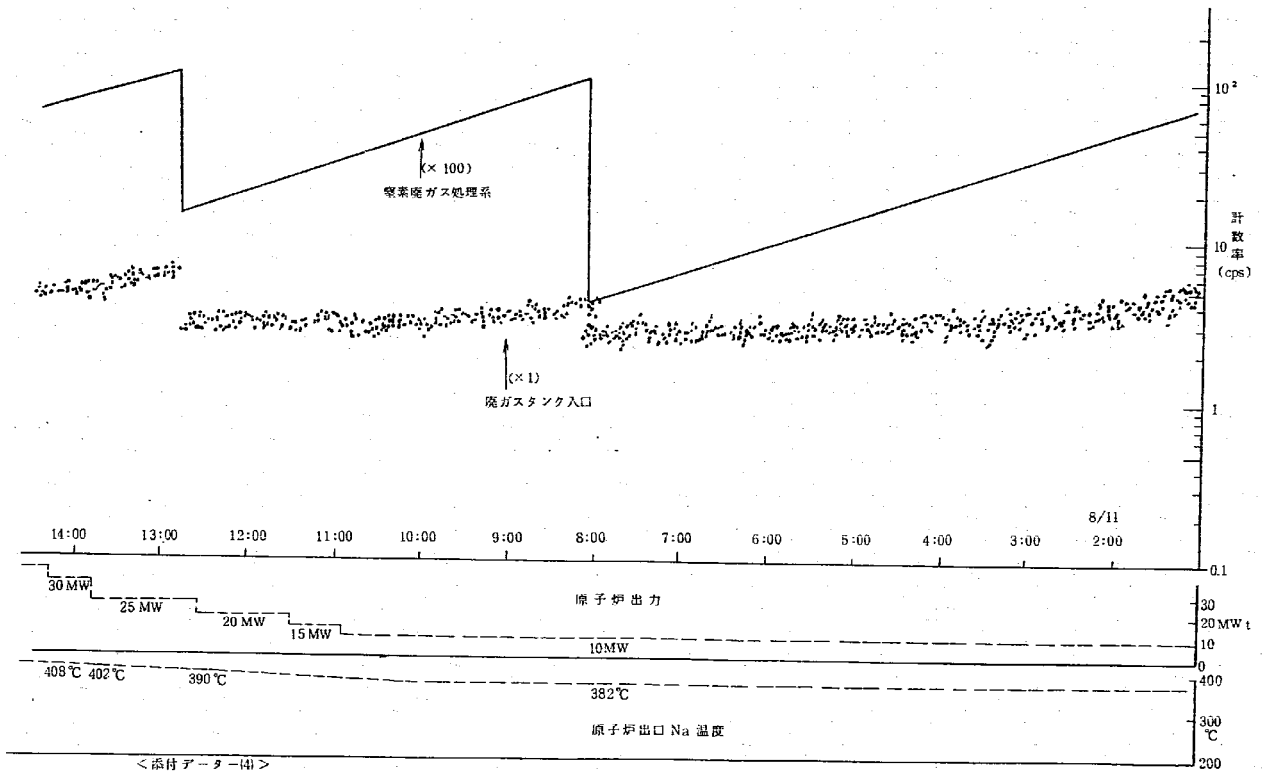


図 5.3 廃ガス処理系ガスモニタ指示値記録 (8/11 2:00~14:00 10 MWt~15. 20. 25. 40~50 MWt)

< 参 考 资 料 >

1. "大洗工学センター原子炉施設保安規定" S. 52.9.1.
2. 同 上 "別 冊" S. 52.9.1.
3. 同 上 "参 考 资 料" S. 50.4.
4. "高速実験炉「常陽」運転マニュアル参考資料"
5. "放射線管理マニュアル" S. 53.8.