

分置

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。

2001. 7. 31

[技術情報室]

炉内カバリーガス中の微量Xe、Krの分析法

1995年8月

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついでには複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒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

大洗工学センター

システム開発推進部・技術管理室

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

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49

核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

炉内カバールガス中の微量Xe、Krの分析法

曾根 徹*、青山 卓史

要 旨

高速実験炉「常陽」の一次系カバールガス中の不純物（Kr、Xe）の分析法として、カバールガス濃縮装置の操作法、Ge半導体検出器による γ 線計測装置の操作法及びデータ処理法についてまとめた。

大洗工学センター 実験炉部 技術課

* 現東海事業所 プルトニウム燃料工場 管理課



目 次

図表リスト

1. 概 要	1
2. 装 置	1
3. 操作手順	2
(1) 前準備	2
(2) 濃縮	2
(3) A r 分離	3
(4) 濃縮ガスのサンプリング	4
4. 試料測定及びデータ処理操作	5

図表リスト

- 表-1 定量分析による解析結果の出力例
- 表-2 定量分析に用いる核種のライブラリーリスト
- 図-1 サンプリング容器
- 図-2 濃縮装置
- 図-3 γ 線計測装置のブロックダイヤグラム
- 図-4 Ge 検出器の γ 線検出効率曲線
- 図-5 γ 線スペクトル測定例

1. 概要

「常陽」の一次系カバーガス (Ar) 試料を採取して、濃縮装置によりガス体積を1/10に濃縮する。濃縮した試料をGe半導体検出器で γ 線計測し、カバーガス中の放射性希ガス (Xe及びKr) 濃度の定量を行う。

2. 装置

(1) サンプリング容器 (ニードルバルブ, クィックコネクタ付) 図-1参照

(イ) 容量: 300cc

(ロ) 材質: SUS304

(2) 濃縮装置 図-2参照

サンプリング容器に採取したカバーガスを、Heキャリアーガスにより液体窒素 (沸点: -196°C) で冷却した活性炭吸着床に通し、カバーガス中のXe及びKrを吸着させる。次に、吸着床をアルコール+ドライアイス溶液に浸漬して吸着床温度を -80°C とし、Heガスを流通させて吸着床に共吸着しているArを分離する。続いて、吸着床を液体窒素で再度冷却し、吸着床内を真空排気する。最後に、ヒータにより吸着床を 200°C まで加熱して吸着していたXe及びKrを脱離させ、これをガスビューレットのHeガスにより測定用容器へ輸送・捕集する。

(3) γ 線計測装置 図-3参照

カバーガス中の放射性希ガス核種を γ 線計測し、核種の定量を行う。

(イ) Ge半導体検出器 (米国キャンベラ社製GX3019型)

・検出効率 : 30% (1332KeV の ^{60}Co 放出 γ 線に対して)

Ge検出器の γ 線検出効率曲線を図-4に示す。

・半値巾分解能 : 1.9KeV (同上)

・種類 : γ -Xタイプ

(ロ) Ge半導体検出器用しゃへい体 (キソー工業KK製)

・寸法 : $359\text{mm}\phi \times 527\text{mmH}$

・材質 : SUS3mm (外張), 鉛70mm, カドミウム1mm, 銅0.5mm, アクリル板5mm (内張) の順に構成

(ハ) 高圧電源 (米国キャンベラ社製3105型)

・パッファ (NAIG社製D-133S型) を接続して使用

(ニ) 比例増巾器 (米国キャンベラ社製2020型)

(ホ) ADC (米国キャンベラ社製8076型)

・スタビライザ (米国キャンベラ社製8232型) を接続して使用

(ヘ) 波高分析器 (米国キャンベラ社製S-95型4096チャンネル)

(ト) データ処理装置 (NEC PC-9801VX)

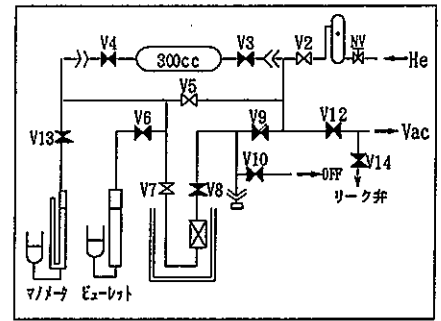
(チ) 定電圧装置 (米国エルガー社製3005B型)

(4) 測定用容器

・ガラスサンプラー (容量: 30cc)

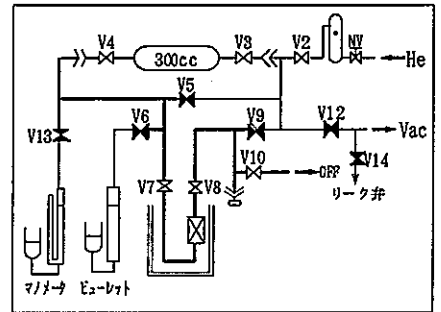
④ V12, 9, 13, を閉、V 2を開とし、ロータメータが0に戻ったらV 7を開とする。

④	V 1 2	閉
	V 9	閉
	V 1 3	閉
	V 2	開
	V 7	開



⑤同様にロータメータが0に戻ったらV 5を閉とし、次にV 8, 4, 3, 10の順にゆっくり開とする。

⑤	V 5	閉
	V 8	開ゆっくり
	V 4	開ゆっくり
	V 3	開ゆっくり
	V 1 0	開ゆっくり



⑥ロータメータの指示が、約100 ml/min となるようニードルバルブ (NV) で調節する。

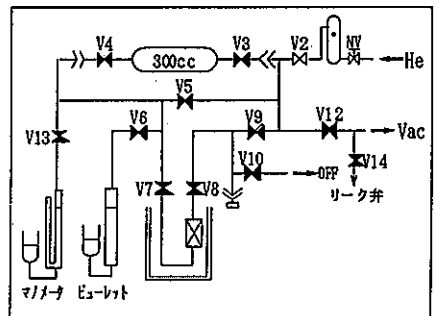
⑦時々、液体窒素を補給しながらHeガスの流通を20分間続ける。

⑧上記操作中に別のデュービンにアルコールとドライアイスを入れ、約-80℃の溶液を調整しておく。

(アルコールが冷えるまでドライアイスは、ゆっくり入る。ドライアイスは、できる限り細かくして入れる。)

⑨20分経過後、V10, 8, 7, 4, 3の順に閉とする。

⑨	V 1 0	閉
	V 8	閉
	V 7	閉
	V 4	閉
	V 3	閉



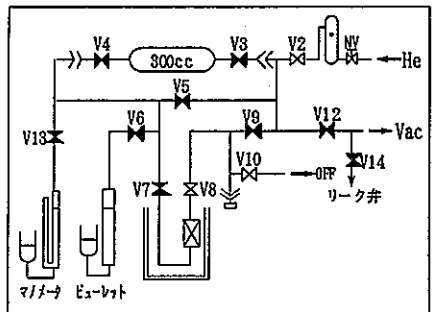
(3) Ar分離

①液体窒素のデュービンを取外し、アルコール+ドライアイスのデュービンを吸着床部に取り付ける。

②温度制御装置のメータが-120~-130℃を指示するまで待つ。

③T10/30 のガラス製メクラを指で押さえながら、V10, 8を開とし、脱離したArの一部をパージする。

③	V 1 0	開
	V 8	開

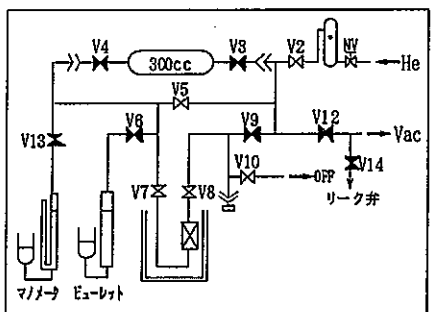


④V 5, 7を開としHeの流通を開始し、37分間流通する。

④	V 5	開
	V 7	開

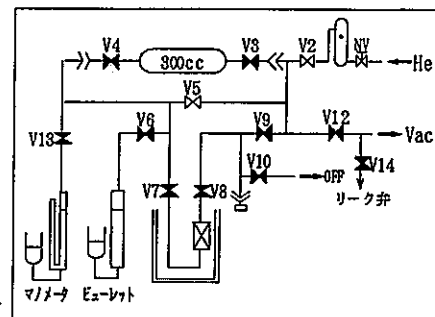
⑤ロータメータの指示が、約100 ml/minであることを確認する。

Heの流通を確認すること



⑥ 37分後、V 8, 7, 10を閉とする。

⑥	V 8	閉
	V 7	閉
	V 10	閉

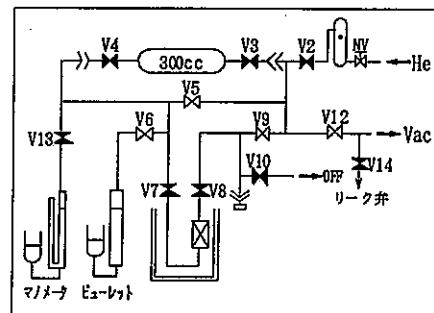


(4) 濃縮ガスのサンプリング

① アルコール+ドライアイスのデューワービンを取外し、再び液体窒素のデューワービンを吸着床部に取り付ける。

② V 2を閉、V 12, 9, 6を開とし真空排気する。

②	V 2	閉
	V 12	開
	V 9	開
	V 6	開

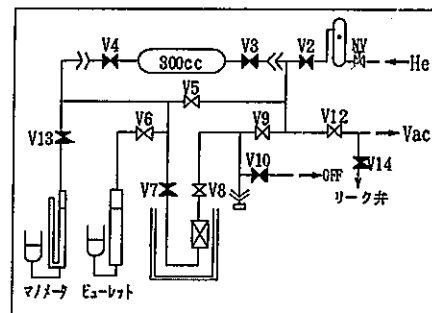


③ 温度制御装置のメータが-180~-190℃を指示するまで待つ。

④ V 8を開とし、ロータリーポンプの排気音が消えるまで吸着床内部を真空排気する。(約10秒程度)

④	V 8	開
---	-----	---

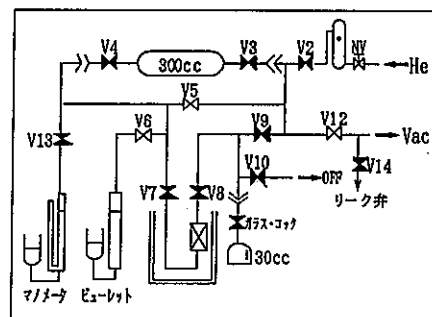
しっかり排気すること



⑤ V 8, 9を閉とする。

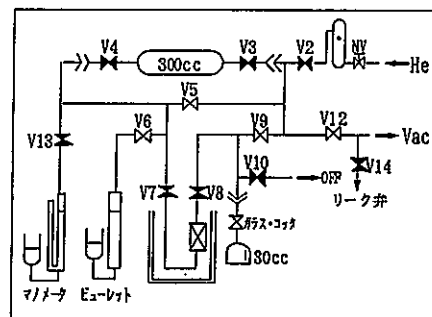
⑤	V 8	閉
	V 9	閉

⑥ ガラス製メクラを外し、測定用容器を取り付ける。



⑦ V 9を開、測定用容器のガラスコックを開とし、内部を真空排気する。

⑦	V 9	開
	ガラス・コック	開



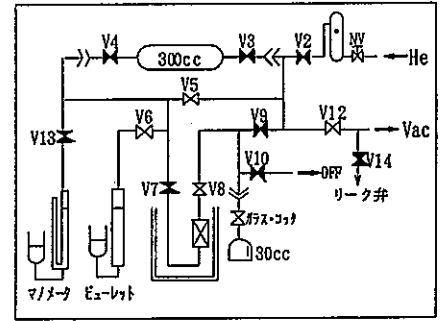
⑧ 1~2分後、V9を閉、V8を開とし、デューワービンを取り外す。

⑧	V 9 (閉)
	V 8 開

⑨ 吸着床の加熱を開始する。(温度制御装置のスイッチ入)

⑨	T.C スイッチ ON
---	-------------

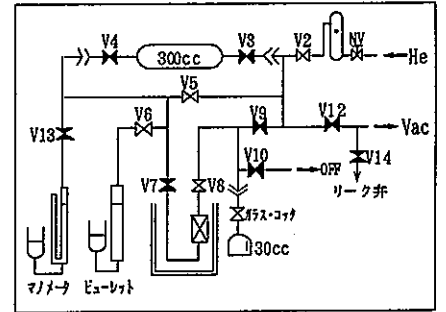
⑩ 吸着床温度を200℃で15分間保持する。



⑪ V12を閉、V2を開とし(水銀溜に気をつける)、ガス・ビューレットにHeをほぼ大気圧まで導入したらV2, 5を閉とする。

ビューレットに注意

⑪	V 1 2 (閉)
	V 2 開
	V 2 (閉)
	V 5 (閉)

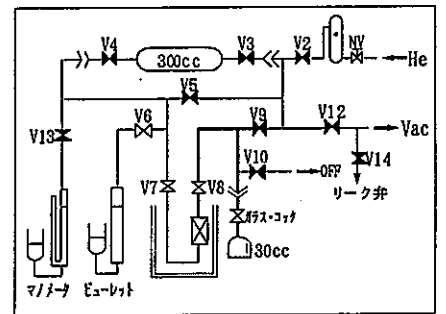


⑫ ガス・ビューレットの水銀溜を止具から外し、水銀溜とビューレットの水銀面を一致させながらV7をゆっくり開く。

⑫	V 7 開ゆくり
---	----------

⑬ ビューレットの水銀面が上昇するのに合わせて、水銀溜を持ち上げていき、大気圧になったところで、すばやく測定用容器のコックを閉とする。

⑬	ガス・コック (閉)
---	------------



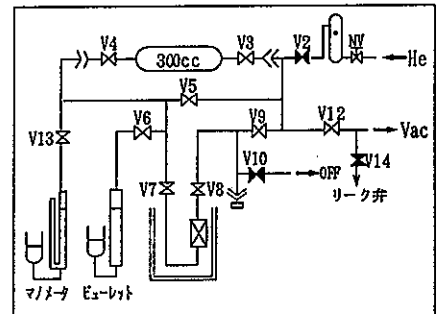
⑭ V8を閉、測定用容器を取り外しメクラ栓を取り付ける。

⑭	V 8 (閉)
---	---------

⑮ 温度制御装置のスイッチを切とし、加熱を止め、(水銀溜に気をつけて) V12, 9, 5, 6, 7, 8, 13, 4, 3をゆっくり開とし、2分間全系を真空排気する。

ビューレットに注意

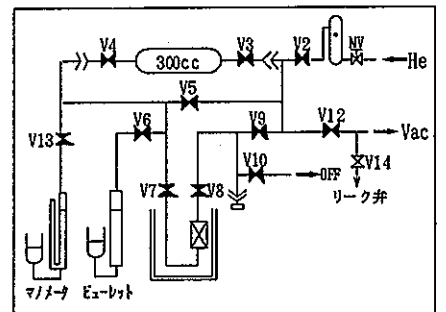
⑮	T.C スイッチ OFF
	V12, 9, 5 開
	V 6, 7, 8 開
	V13, 4, 3 開



⑯ 全バルブを閉、ロータリーポンプ及び温度制御装置のコンセントを抜き、V14を開け、ロータリーポンプ内をリークし、閉とする。

⑯	全バルブ (閉)
	ロータリーポンプ OFF
	T.C コンセント OFF
	V 1 4 開
	V 1 4 (閉)
	He 元弁 (閉)

⑰ Heガスの元弁を閉める。



4. 試料測定及びデータ処理操作

(1)試料をGe検出器の測定台にセットする。

Preset timeを3000secにする。

(2)MCAS-95のコレクトを押す。

(3)データ処理装置(PC-9801VX)の電源をONにする。

(4)初期メニュー画面の表示

以下の画面が表示される。

- F 1 定性/定量分析
- F 2 環境バックグラウンド分析
- F 3 エネルギー対チャンネル校正
- F 4 エネルギー対チャンネル校正パラメータの変更(B)
- F 5 効率対エネルギー校正
- F 6 効率対エネルギー校正パラメータの変更(B)
- F 7 システム定数/標準値の変更(B)
- F 8 核種同定ライブラリーの作成/変更(B)
- F 9 核種定量ライブラリーの作成/変更(B)

(5)F 1 定性/定量分析を選択する。

以下の画面が表示される。

- F 1 スペクトル測定の後分析実行
- F 2 MCA内のスペクトルの分析実行
- F 3 ファイル済みのスペクトルの分析実行
- F 4 定性/定量分析 メニュー終了はSTOPキーを押してください
- F 5
- F 6
- F 7
- F 8
- F 9

(6)F 2 MCA内のスペクトルの分析実行を選択し、試料名を入力する。(8文字以内)

以下の画面が表示される。

** ヘッダー情報作成/変更	ファイル=AAA.SPC	**
検出器番号	1	
MCA番号	1	
試料コード	FFDL	
試料名称		
試料採取(終了)時刻	11:00:00	
試料採取(終了)日付	95/ 7/ 1	
測定試料単位	EACH	
試料量(換算試料量)	300.00	
濃度単位	0	
ジオメトリー番号	3	

- (イ) 試料コードを選択し、“FFDL”と入力し、リターンキーを押す
 (ロ) 検出器番号を選択し、“1”と入力し、リターンキーを押す。
 (ハ) MCA番号を選択し、“1”と入力し、リターンキーを押す。
 (ニ) 試料採取(終了)時刻を選択して“時”“分”“秒”を入力し、リターンキーを押す。
 (ホ) 試料採取(終了)日付を選択して“年”“月”“日”を入力し、リターンキーを押す。
 (ヘ) 試料量(換算試料量)を選択して試料採取量を入力し、リターンキーを押す。
 (ト) ROLL UPを押す。

以下の画面が表示される。

** ヘッダー情報作成/変更	ファイル=AAA.SPC	**
ジオメトリー名称	30ml VIAL	
測定開始時刻	13:42:00	
試料採取地域名称	FFD特性試験	
解析者名		
ピーク同定ライブラリー番号	1	
定量ライブラリー/校正パラメータ番号	3	
測定時間(秒)	3000	

- (フ) 測定開始時刻を選択して“時”“分”“秒”を入力し、リターンキーを押す。
 (リ) 測定開始日時を選択して“年”“月”“日”を入力し、リターンキーを押す。
 (ス) HOME CLEARキーを押す。
 (ル) データがプリンターから出力される(リストの一例を表-1に示す)。

(7) 定量分析に用いるライブラリーリスト及びγ線スペクトル測定例

核種の定量分析に用いるライブラリーリスト(核種のピークγ線エネルギーと放出率)を表-2に、また、Ge検出器で測定したγ線スペクトルの例を図-5に示す。

注) ・換算試料量は、下記の計算式で算出する。

$$V = 300 \times \frac{P}{760} \times \frac{273}{(273 + t)}$$

P : 試料封入圧 (mmHg)

t : 室温 (°C)

・測定開始時刻は試料採取時刻から162分後とする。

表 - 1 定量分析による解析結果の出力例

***** 定量分析 解析結果 ***** 95/07/04 09:35:56 1 頁

1. 試料情報
 試料名称 : (FFDL)
 試料採取場所 : FFD特性試験 (dir)
 試料量 : 332.23 (ml) 測定量 : 1.0000 (EACH)
 試料採取日時 : 1993/03/24 09:06

2. 測定情報
 検出器番号 : 1. ライフタイム : 2700.(秒)
 ジオメトリ番号 : 3. 30 ml VIAL
 試料高さ : 1.0000 ()
 ファイル名 : SP0:315.SPC
 トゥルタイム : 2818.(秒)
 測定開始日時 : 1993/03/24 11:48
 効率校正日時 : 1991/09/09 13:34

3. ピーク定量情報
 スペクトルチャンネル数 : 4096.
 デイタイム : 162. (分)
 エネルギー校正日時 : 1993/03/24 13:07
 効率計算方式 : カーブフィッティング
 解析者名 : SUKEGAWA
 解析領域 : 95- 4095(チャンネル)
 定盤ライブラリ番号 : 3
 エラー表示値 : 1.000(シグマ)
 ドリフトアウトウ : 1.20+0.000エネルギー(Kev)

No.	核種	放射能濃度 (Bq/ml)	%エラー	検出限界 (Bq/ml)	放射能 (Bq/試料)	%エラー	ピーク位置 (Kev)	ドリフト (チャンネル)	正味ピーク計数率 (カウント/1000秒)	%エラー	減衰 係数	効率 (CPKS/ Bq)
1*	Xe-133	40.7	+- 1.03	8.715E-02	1.329E+04+-	1.03	80.99	129.97	-0.14	2.339E+05+-	1.02	17.6
2*	Kr- 85M	35.7	+- 1.70	8.658E-02	7.297E+03+-	1.70	151.00	238.83	0.32	1.871E+05+-	0.63	25.6
3*	Xe-131M	32.3	+- 2.79	2.34	1.065E+04+-	2.79	164.00	259.05	--	6.747E+03+-	2.52	0.633
4	Xe-125	-----	+- -----	9.460E-02	-----	+- -----	188.40	296.99	--	-217.	+--66.16	1.14
5*	Xe-129m	213.	+- 0.66	1.04	6.991E+04+-	0.66	196.60	309.74	-0.37	8.877E+04+-	0.26	15.7
6	Xe-127	-----	+- -----	0.106	-----	+- -----	202.90	319.54	--	-3.640E+04+-	-0.50	1.27
7	Kr- 89	-----	+- -----	1.698E+16	-----	+- -----	220.60	347.06	--	-221.	+--59.92	18.5
8*	Xe-133M	2.35	+- 7.13	0.495	777.	+- 7.13	233.20	366.65	0.20	1.884E+03+-	7.13	5.71
9*	Xe-135	153.	+- 0.74	6.418E-02	4.014E+04+-	0.74	249.65	392.23	0.30	8.552E+05+-	0.72	2.42
10	Xe-138	-----	+- -----	480.	-----	+- -----	258.60	406.15	--	-2.333E+04+-	-0.57	21.3
11*	Kr- 87	54.8	+- 1.50	0.341	3.401E+03+-	1.50	402.70	630.23	0.00	2.734E+04+-	1.50	22.6
12*	Kr- 85	67.6	+- 4.29	8.09	2.247E+04+-	4.29	513.98	803.29	--	1.303E+03+-	4.29	8.04
13*	Kr- 88	61.6	+- 0.67	0.263	9.533E+03+-	0.67	2392.00	3724.78	0.22	1.538E+04+-	0.51	5.800E-02
										7356.85	5.35	1.61

* 検出限界以上の濃度

表 - 2 定量分析に用いる核種のライブラリーリスト

定量ライブラリーリスト FILE=LBO:QU0003.TMP

#	核種名	ピーク#	半減期	エネルギー (KeV)	ピーク種別	放出率	確認ピーク数	逐次崩壊
1	Xe-133	1	7.68000E+03m	80.990	4	0.3660	0	無
2	Kr-85M	1	2.64000E+02m	151.000	4	0.7610	0	無
3	Xe-131M	1	1.19000E+01d	164.000	4	0.0200	0	無
4	Xe-127	2	3.64000E+01d	172.100	8	0.2550	0	無
5	Xe-125	1	1.69000E+01h	188.400	4	0.5490	1	無
6	Xe-129m	1	8.87000E+00d	196.600	4	0.0459	0	無
7	Xe-127	1	3.64000E+01d	202.900	4	0.6830	2	無
8	Kr-89	1	3.07000E+00m	220.600	4	0.2250	1	無
9	Xe-133M	1	2.19000E+01d	233.200	4	0.0995	0	無
10	Xe-125	2	1.69000E+01h	243.400	8	0.2880	0	無
11	Xe-135	1	5.48000E+02m	249.650	4	0.9200	0	無
12	Xe-138	1	1.41000E+01m	258.600	4	1.0000	0	無
13	Xe-127	3	3.64000E+01d	375.000	8	0.1720	0	無
14	Kr-87	1	7.63000E+01m	402.700	4	0.4960	0	無
15	Kr-85	1	1.07000E+01y	513.980	4	0.0043	0	無
16	Kr-89	2	3.07000E+00m	586.400	8	0.1860	0	無
17	Kr-88	1	1.68000E+02m	2392.000	4	0.3800	0	無

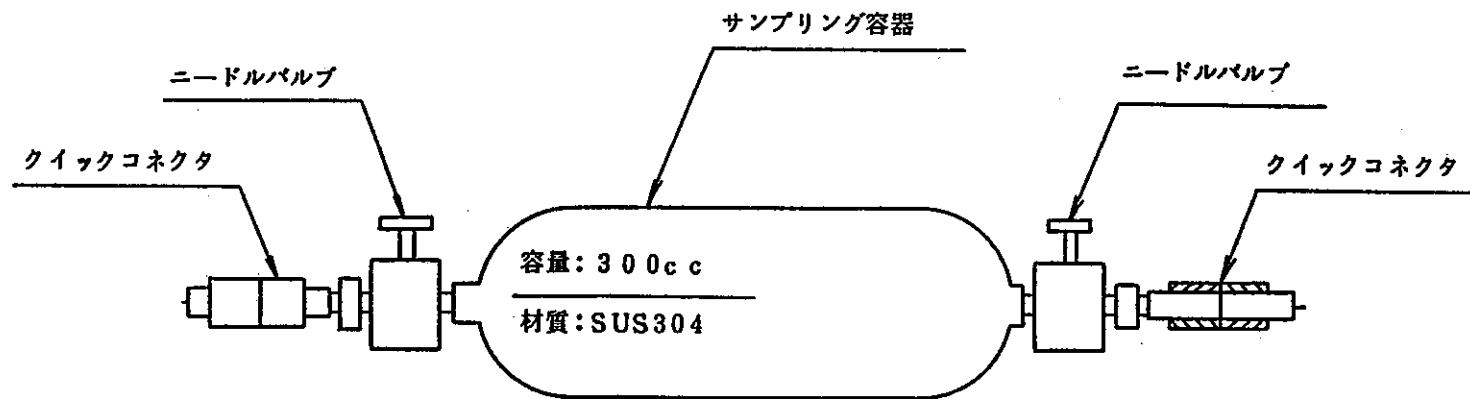
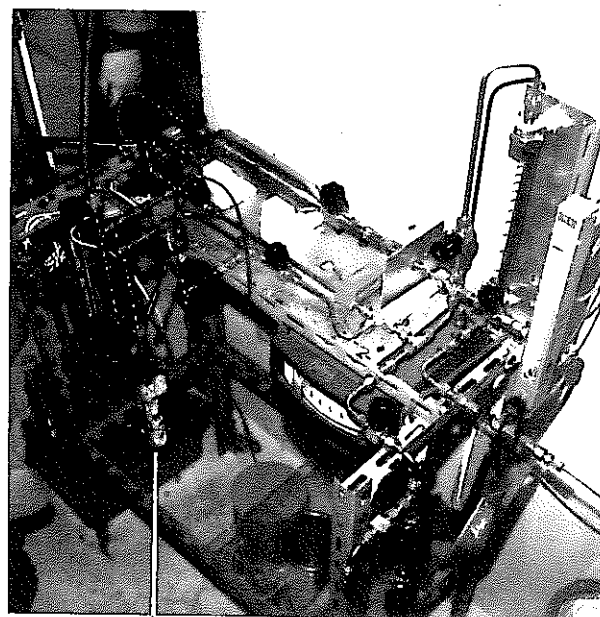
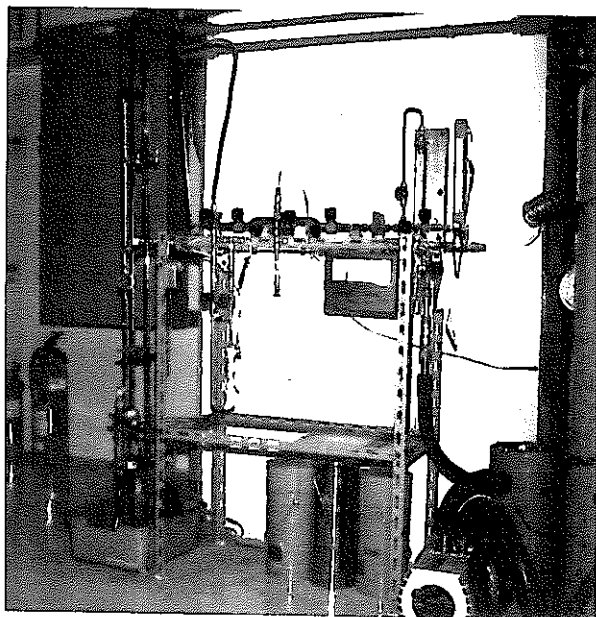
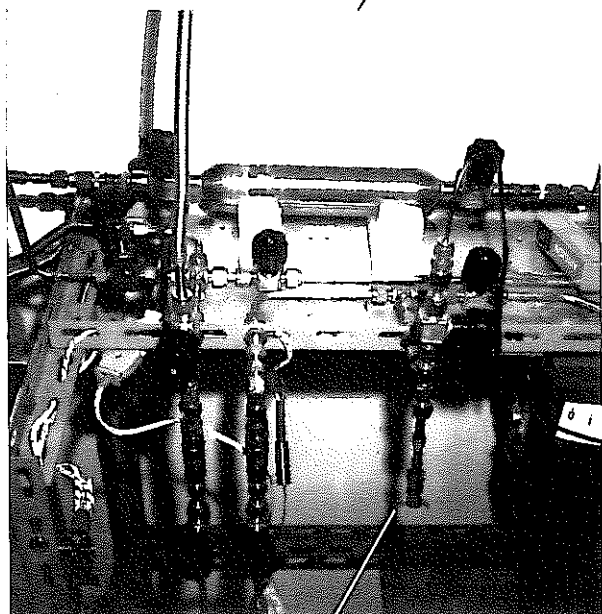


図 - 1 サンプリング容器

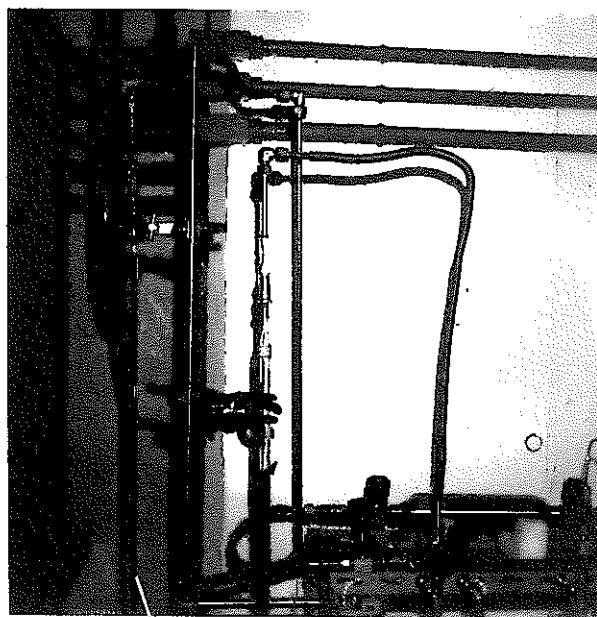


吸着床

サンプリング容器



ガラスサンプラー取付部



マノメータ

図 - 2 濃縮装置

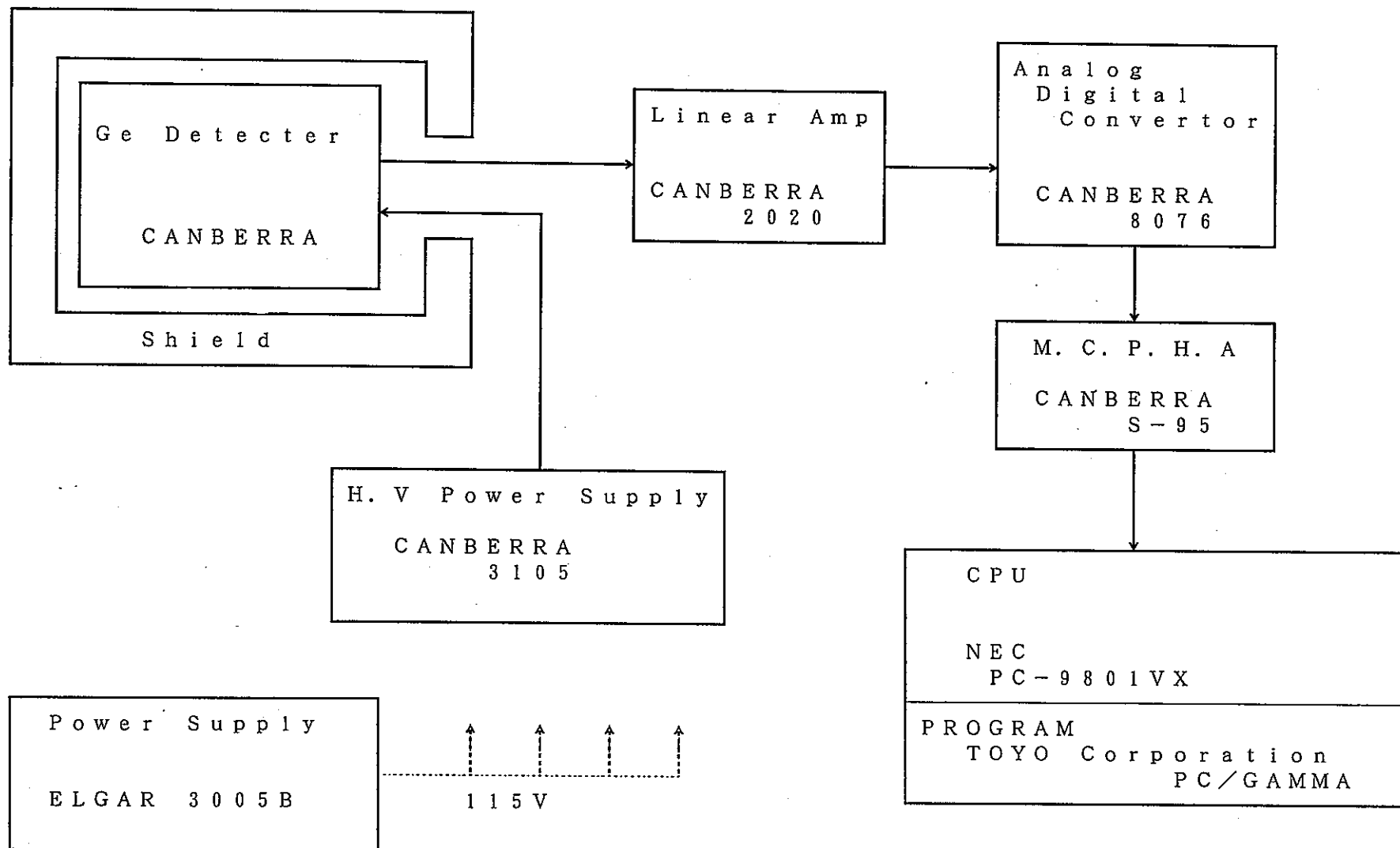


図-3 γ 線計測装置のブロックダイヤグラム

—14—
EFF

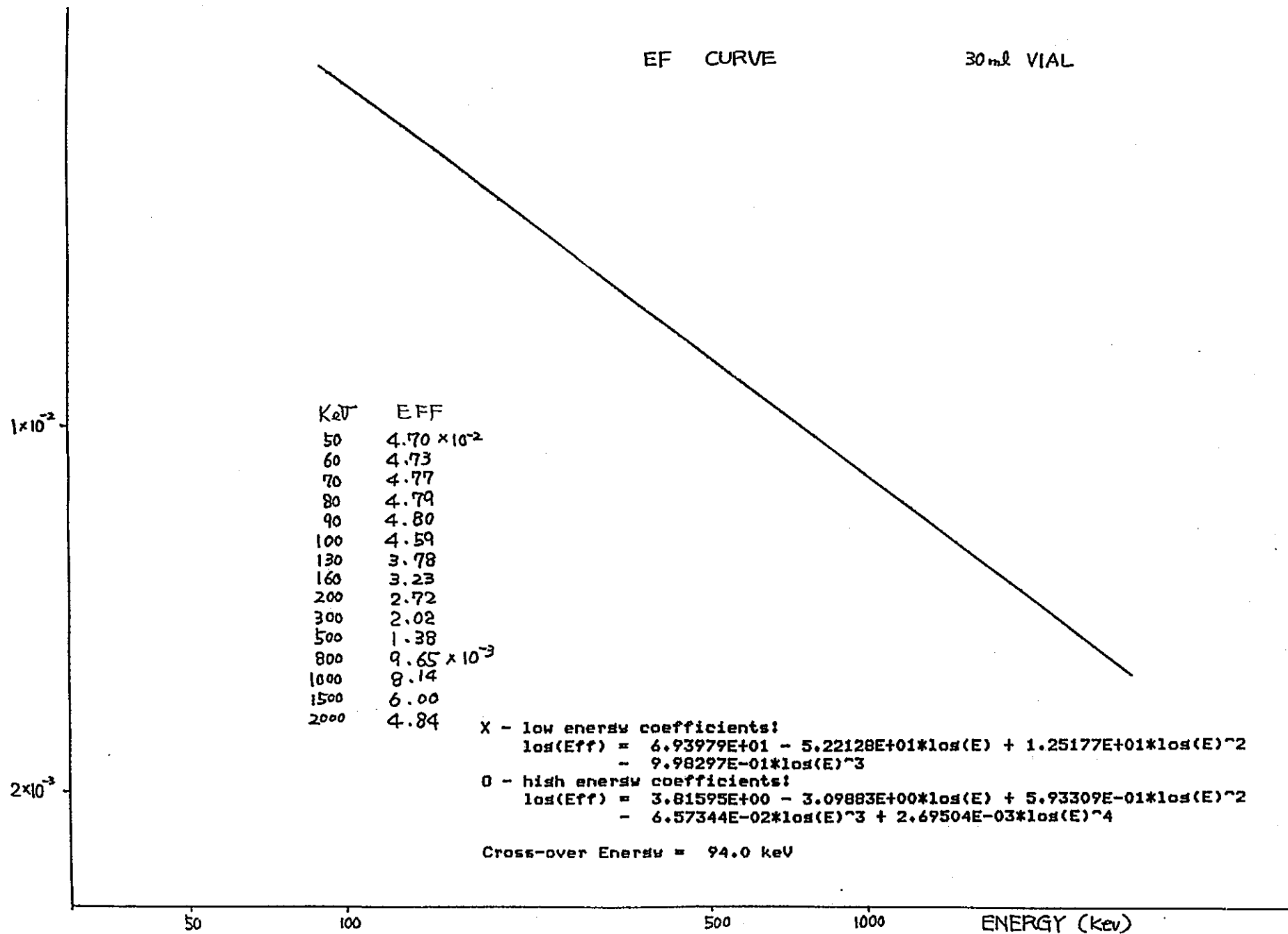


図 - 4 Ge 検出器の γ 線検出効率曲線

ファイル=315.SPC
ライブタイム(SEC)= 2700 トルタイム(SEC)= 2818 93/ 3/24 11:48:00

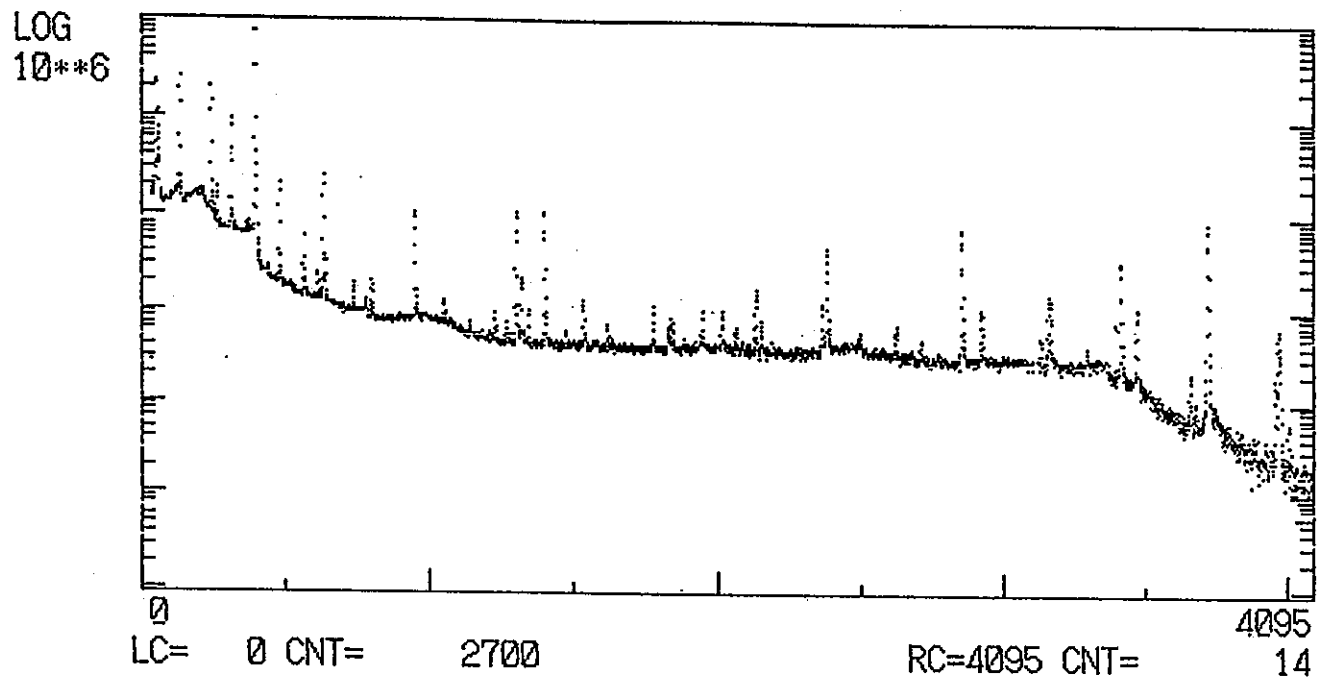


図 - 5 γ 線スペクトル測定例