[60] LMFBR における放射性ナトリウムと核分裂生成物 による空気汚染モニタリング技術

吉田 芳和*, 成富 満夫*, 村田 幹生*

(1974年 7月31日 受理)

Air Monitoring Techniques for Radioactive Sodium and Fission Products in LMFBR

By Yoshikazu YOSHIDA, Mitsuo NARITOMI and Mikio MURATA

The air monitoring system for liquid-metal-cooled fast breeder reactors will for the most part be similar to those for other types of reactor. One particularity, however, is that the main object of air monitoring would be radioactive sodium aerosol mixed with fission products such as radioiodine.

A review is presented of studies made on the behavior of sodium aerosol and fission products, particularly radioiodine, in a sodium aerosol produced as a result of sodium leakage from the primary cooling system of an LMFBR and also on the air monitoring techniques available for such air contamination. The cases of other radionuclides and corrosion products are also described.

KEYWORDS: LMFBR type reactor, air monitoring, sodium aerosol, radioactive sodium, radioiodine, fission products, corrosion products, behavior

I. はじめに

Na 冷却高速増殖炉(以下 LMFBR という)における空気汚染モニタリング方式は、軽水炉その他の原子炉の場合と本質的には変りないが、冷却材として用いられているナトリウム(以下 Na と記す)の漏洩によって生ずる放射性ナトリウムおよび冷却材中に捕捉されているヨウ素を初めとする核分裂生成物(以下 F.P. と略)による空気汚染が対象となるので、その点を考慮する必要がある。

本稿では、LMFBR の Na 冷却材またはカバー・ガスの漏洩によって生ずる放射化された Na エアロゾルとそれに含まれる放射性ヨウ素の性状およびこれらの空気汚染をモニタリングする上で技術上問題となる点について述べる。また、その他の F.P. および腐食生成物の場合についても述べる。

II. LMFBR における空気汚染

LMFBR の運転中および保守作業時に生ずる空気汚染は、冷却材として用いられている Na の漏洩によ

り生ずる。その漏洩の原因、経路は主として、

① 1 次系のパイプの接合部、パルプ、ベッセルなどの欠陥部を通じての漏洩、② 燃料交換装置からの漏洩、③ Na の蒸気を含んだカバーガスの漏洩の 3 つが考えられる⁽¹⁾。

Na 冷却材漏洩時の空気汚染核種としては、放射性ナトリウムと冷却材に捕捉されている F.P. が問題になる。第 1 表⁽²⁾は、(注)に示すような条件で燃料破損が生じている原子炉において Na 冷却材の漏洩による空気汚染が発生したとき、各核種の潜在的危険度を比較して示したものである。各核種の Na 冷却材中濃度と許容濃度 (MPC)。との比から、運転中に生ずる空気汚染において重要な核種は ^{24}Na と ^{131}I であることがわかる。Na または NaK 冷却型原子炉の 1 次系で検出された主な放射性核種についての調査結果が原安協報告⁽³⁾に記載されている。LMFBR においては軽水炉に比して Na 冷却材の圧力ならびに Na 自身の蒸気圧が低い⁽⁴⁾ことと Na がヨウ素などをよく捕捉する性

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

質⁽⁴⁾から考えて、冷却材の漏洩がない限り希ガス以外の F.P. による空気汚染の生ずる可能性は小さいと考えられる。

第1表 LMFBR における1次冷却材の漏洩による潜在的危険度⁽²⁾

核種	Na 中の放射能濃度 [†] ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	(MPC) _a ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	Na 中放射能濃度
			(MPC) _a
²⁴ Na	4×10^4	$1 \times 10^{-6} \uparrow \uparrow$	4×10^{10}
¹³¹ I	5×10^{10}	9×10^{-9}	0.05×10^{10}
Pu	6×10^{-4}	4×10^{-11}	0.0015×10^{10}
²² Na	1×10^{10}	2×10^{-7}	0.0005×10^{10}
⁹⁰ Sr	2×10^{-3}	1×10^{-9}	0.0002×10^{10}

[†] ²⁴Na と ²²Na 放射能は平衡であり、0.1% の燃料破損で10% のハロゲンと他の F.P. の0.1% が Na 中に放出し、それらが Na 中に留まると仮定した。

^{††} ICRP.2 週40hr 可溶性の場合の最大許容濃度。

次に LMFBR における空気汚染モニタリング上特に考慮すべき問題点を述べる。Na 冷却材の放射化により生成される ²⁴Na の運転中における比放射能は $0.1 \times (\text{MWt}^*) \text{mCi/g}^{(5)}$ 程度である。第1図は、原子炉運転時における冷却材中の ²⁴Na 比放射能を 10mCi/g とし、Na 空気汚染の放射能濃度と質量濃度との関係を原子炉停止後の経過時間をパラメータとして示したものである。この図から ²⁴Na の空气中許容濃度(週168 hr) $5 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ に対する Na の質量濃度は、運転中では $5 \times 10^{-12} \text{g Na}/\text{cm}^3$ 、原子炉停止後1週間では $1 \times 10^{-8} \text{g Na}/\text{cm}^3$ になる。また NaOH としての Na の化学毒性を問題とする場合の規制値は $0.5 \sim 2 \text{ppm}^{(6)}$ ($0.4 \sim 1.5 \times 10^{-8} \text{g Na}/\text{cm}^3$) である。したがって、原子炉停止後1週間以上経過した場合の空気汚染では Na の化学毒性の方が問題になることがわかる。いずれの場合も放射性ナトリウムによる空気汚染は、一般

の RI による場合に比して比放射能が小さいので、その挙動は非放射性の Na エアロゾルの性状によって決まる。

腐食生成物および燃料破損に伴って Na 冷却材中に放出される F.P. は、希ガス以外は Na 化合物(ヨウ素は NaI) または酸化物として冷却材中によく捕捉される⁽³⁾ ので、冷却材またはカバーガス漏洩時に生ずるこれら核種による空気汚染は常に高質量濃度の NaI エアロゾルを伴うことになる。

Na は、空気中の酸素や蒸気と強く反応し、それによって生ずる Na エアロゾル(Na_2O , NaOH , Na_2CO_3 などにより構成される)も著しい潮解性をもつ。したがって、Na エアロゾルの化学的物理的性状は、エアロゾルの発生条件すなわち本章の最初に述べた漏洩の原因と経路や雰囲気条件に大きく依存する。

また、F.P. を捕捉している Na 冷却材の漏洩時には、NaI などの形で Na エアロゾルと挙動をとともにするヨウ素とガス状になって Na エアロゾルから分離するものがあり、その割合、化学的形状は漏洩の規模、漏洩時の温度および雰囲気条件により異なる。

以上述べたように、LMFBR における空気汚染は高質量濃度の Na エアロゾルと微量の F.P. で構成されるので、その空気汚染モニタリング技術を確立するためには、Na エアロゾルおよびそれに含まれる放射性ヨウ素をはじめ F.P. の冷却材中およびエアロゾル中の挙動を明らかにしておく必要がある。

Ⅲ. 放射性ナトリウム・エアロゾル中のモニタリング

1. Na 漏洩によるエアロゾルの生成

Na 冷却材の漏洩による空気汚染は主として第Ⅱ章に述べた3つの原因、経路によって起こると考えられる。Na 蒸気がカバーガスとともに室内空气中に漏洩する場合、Na 蒸気は急速に酸化されるとともに周囲に熱をうばわれて冷えるため凝縮して Na_2O エアロゾルとなる。このような Na エアロゾルの生成条件に近い実験 (Na 蒸気温度⁽⁷⁾: $720^\circ \sim 1,000^\circ\text{F}$) では粒子径 $0.27 \sim 4.0 \mu\text{m}$ (質量中央径; MMD) の Na_2O エアロゾルが生成されている⁽⁷⁾。著者らの行った21% O_2 空気中での実験でも同様の粒子径が得られた⁽⁸⁾。これらの粒子径は次に述べる Na 火災時に生成される粒子よりも比較的小さい。

LMFBR では1次冷却系配管などが酸素濃度を0.5

第1図 Na 質量濃度と放射能 (²⁴Na) 濃度との関係

* 炉の熱出力。

%以下に低下させたチッ素雰囲気中に収納されるので、Na の直接的な空気雰囲気への漏洩は重大事故以外ではないと考えられる。しかしなんらかの原因で空気中に漏洩した場合は Na 火災を生ずる。このような火災を模擬して、配管などからスプレイ状に噴出し燃焼するスプレイ火災と配管などの破損部から流出する Na によってできる Na プールの火災との2種類の実験が行われている⁽⁹⁾。スプレイ火災では、Na は反応面積の大きな液滴状で噴出するので爆発的に燃焼する。この場合、生成される Na エアロゾルは完全な Na_2O になるが、その粒子径はスプレイされる Na 液滴径によって左右される。一方、Na プール火災ではプール表面近くにおいて Na_2O 粒子が高濃度になり凝集するので、生成される Na エアロゾルの粒子径は一般に大きくなる：プール表面を空気が流れている状態での火災実験では $0.5 \sim 16 \mu\text{m}$ (MMD) 程度⁽³⁾、空気の入らない閉じた狭い空間におけるプール火災では大きな雪状の粒子(Snowflake)⁽⁹⁾が生成される。

1 次配管系を収納する低酸素濃度のチッ素雰囲気でも酸素量に対して漏洩する Na 量が少なければ完全に酸化された Na エアロゾルが生成される。

いずれの Na 漏洩の場合でも、生成直後の Na エアロゾルは Na_2O であるが、作業区域の雰囲気によって次に述べるように性状が変化する。

2. Na エアロゾルの性状

空気中で生成された Na_2O 粒子は水蒸気、 CO_2 と反応して時間とともにその物理的、化学的形態が変化する。

Clough らの解析⁽¹¹⁾によれば、 Na_2O 相対湿度の低い空気中では徐々に水酸化ナトリウム化するが固体粒子の状態を維持する。湿度が35~40%になると粒子は水蒸気を凝縮して NaOH の液滴となる。この反応は非常に速く直径 $10 \mu\text{m}$ の粒子でさえ湿度が40%の空気中に数 sec 間曝されると完全な液滴となる。液滴はその水蒸気圧が空気中の水蒸気圧と平衡に達するまで水蒸気を凝縮して成長する。平衡液滴に達する時間は粒子径が小さいほど、湿度が高いほど短い。液滴ができると NaOH と空気中の CO_2 (0.033%)との間の反応によって液は暫次炭酸ナトリウム化する。この反応は湿度が高いほど速く $10 \mu\text{m}$ の粒子では湿度が99%のとき約 1 sec、40%のとき約 100 sec で完全に炭酸ナトリウム化する。液滴の炭酸ナトリウム化が進んで飽和溶液濃度をこえるような条件(水蒸気、 CO_2)になれば液滴から再結晶粒子へと変化する。 Na_2CO_3 水溶液を 32°C 以下の温度で結晶させると10水化物が析出す

る。この水化物は 20°C の室内空気中では約95%の相対湿度以下で固体状を維持し、これ以上の湿度では再び Na_2CO_3 液滴となる。

著者らの実験⁽¹²⁾においても、以上述べた Clough らの理論的解析と同様な結果を得た。第2図の実線は水蒸気の凝縮による粒子の成長の1例で、相対湿度40%においてそれぞれ 2.0 、 2.6 と $2.8 \mu\text{m}$ (空気力学中央径)の粒子が各相対湿度の空気中で平衡する液滴径の実験値を示している。計算値もそれらの実線とほぼ一致する。いずれの粒子でも40%のときに比べて95%では粒子径で1.4倍、体積で2.7倍に成長することがわかる。

第2図 空気加熱による Na エアロゾル粒子径の変化⁽¹²⁾

以上のことから Na エアロゾルの性状は次のように要約できる。

(1) 比較的乾燥した空気中では短時間は Na_2O 粒子であり、徐々に水酸化ナトリウム化するが固体の状態を維持する。(2) 湿度40~90%の空気中に数 min 間滞留すると Na_2CO_3 の液滴あるいは条件によって再結晶粒子となる。さらに湿度が95%以上の雰囲気では再び Na_2CO_3 の液滴(一部は重炭酸ナトリウム)として空気中に滞留することになる。したがって、通常の作業環境において浮遊する Na エアロゾルは液滴の状態にある可能性が大きい。このような液滴は空気とともに加熱管中を通すことによってより安定した固体状粒子とすることができる。加熱管(長さ70cm、内径2cmの石英管の外側にヒータを巻いたもの)を通して空気を 80°C に加熱すると95%の相対湿度をもつ空気でも相対湿度は10%以下にさがる。したがって、液滴から水分が蒸発し粒子径が小さくなる。第2図⁽¹²⁾の破線は加熱後の粒子径の変化の様子を示す。加熱後の粒子径は加熱前の相対湿度に無関係に吸湿前の Na_2O の粒子径にほぼ等しくなる。このようにして得られた粒子は Na_2CO_3 の乾燥固体粒子で、通常の室内空気(相対湿度 60~80

%)に長時間曝らしておいても潮解しない。写真1に相対湿度40と60%の空气中で捕集した粒子と、それを加熱管を通して捕集したときの光学顕微鏡写真を示す。

写真1 加熱前後の Na エアロゾル粒子⁽¹²⁾
($\times 300$)

3. モニタリング技術

前述のようにNaエアロゾルは空気中の水蒸気の影響によって強いアルカリ性の液滴となること、同一放射能濃度で比較すると一般の RI による空気汚染に比べて質量濃度が高いことなどの特徴があるため、これらの点を考慮した空気汚染モニタリングが必要となる。濾紙にエアロゾルを捕集して測定するという従来の方法を Na エアロゾルに適用する場合、サンプリング濾紙の性能として捕集効率が高いことのほかに、Naエアロゾルに対する負荷容量が大きいこととアルカリ液滴に対する耐性が要求される。しかしこれらの点を考慮したサンプリング濾紙の Na エアロゾルに対する捕集特性に関する実験は見当らない。第3図⁽¹³⁾は著者らの実験結果の1例で、従来から空気汚染のモニタリングに用いられている捕集効率の高い粒子捕集用の繊維濾紙 HE-40*と比較的気孔径の大きい PF-1**, LP**について、Na の負荷量と流量率の変化の関係を示したものである。横軸は濾紙の Na 負荷量で示してあるが、実際には粒子が吸収した水を伴っているため、水を加えた全質量はこの数倍になる。相対湿度が高くなるほど粒子に伴う水の量が多くなるので、図中に破線

第3図 各種濾紙の Na エアロゾル負荷に対する流量率変化⁽¹³⁾

で示されるように負荷容量が低下する。例えば湿度が80%になると、HE-40濾紙のNa負荷容量(初期の流量率が20%低下したときの負荷量をその濾紙のNa負荷容量と定義する)は 1×10^{-4} g Na/cm² 程度になる。一方、気孔径の大きい LP 濾紙では1桁ほど大きく 1×10^{-3} g Na/cm² である。この濾紙はサブミクロン粒子に対する効率は低い(80%程度)が $1 \mu\text{m}$ 以上の粒子に対する効率は95%以上である。

いま濾紙の捕集面積が 20 cm^2 で原子炉運転中の²⁴Naの比放射能を10 mCi/g とすれば、上記 HE-40 濾紙のNa負荷量(10^{-4} g/cm² $\times 20 \text{ cm}^2 = 2 \text{ mg}$)に対する放射能は20 μCi 、炉停止後1週間では $9 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ となる。これらの値はこの種のモニタの放射能検出限界である $5 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ を充分に超えている。したがって炉の運転中および停止後1週間では、排気系や炉室における²⁴Na および粒子状の放射性空気汚染のモニタリングに従来から用いられている HE-40 などの繊維濾紙が使用できることがわかる。またこの濾紙は8 hr 程度のサンプリング時間中にはなんらのアルカリ損傷を受けないことも著者らの実験で確認された。

第1図に示されるように原子炉停止後10日以上では、²⁴Na の比放射能が著しく減衰し(この場合 Na エアロゾルの化学毒性が支配的になる)、検出限界以上の²⁴Na 放射能($5 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$)を捕集すると濾紙のエアロゾル負荷量が多くなりサンプリング流量率が急激に低下する。このような高質量濃度の Na エアロゾルのモニタリングには Na 負荷容量の大きい LP 濾紙などを前段に、捕集効率の高い HE-40 濾紙を後段におい

* セルローズ・アスベスト繊維、気孔径 $11 \mu\text{m}$ (0.3 μm の粒子に対して99.9%以上の捕集効率をもつ)。

** テフロン繊維、気孔径 $22 \mu\text{m}$ 。

** レイヨン・パルプ繊維、気孔径 $88 \mu\text{m}$ 。

て使用する方法が考えられる。

前章において述べた Na エアロゾルの空気加熱効果は、濾紙によるサンプリングに適用すれば、Na 負荷量-圧力損失の関係が湿度に依存せずほぼ一定の関係になるばかりでなく、一定の圧力損失に対する Na 負荷量が加熱捕集しない場合の約 3 倍に増加する⁽¹⁴⁾。どの濾紙の場合でも加熱捕集によって同様に捕集性能が改善される。

Ⅳ. 放射性ナトリウム・エアロゾル中のヨウ素のモニタリング

1. Na 冷却材中のヨウ素の性状

Na 冷却材中のヨウ素の化学形態は、ヨウ素の質量濃度が極めて低いことから実験によって立証することは非常に困難であるので、熱力学的な検討によって推定されている。Castleman⁽¹⁵⁾, Clough⁽¹⁶⁾ が行った熱力学的考察と NaI の Na に対する溶解度^{*(17)} から、燃料破損に伴って放出されるヨウ素はほぼ確実に NaI として Na 冷却材中に溶解していると見做されている。

Na 冷却材中のヨウ素濃度(gI/cm³Na)に対するカバー・ガス中のヨウ素濃度(gI/cm³Ar)の比、すなわち気液配分比は、AI 社⁽¹⁸⁾でのアウトパイル実験とインパイルカプセル実験によると、 $10^{-5} \sim 10^{-6}$ である。この値は軽水炉の場合(気液配分比: $10^{-3} \sim 10^{-4}$)⁽¹⁹⁾に比べて小さい。また、そのときの相対移行率(Na 冷却材中の(I/Na)比に対する気相中の(I/Na)比)は、Pollock⁽²⁰⁾, Castleman⁽²¹⁾, Clough⁽⁴⁾ および著者ら⁽²²⁾の実験結果によると、Na 冷却材の温度450°~550°C に対して0.3~1.0の範囲内にある。

2. Na エアロゾル中のヨウ素の性状

(1) Na 冷却材の漏洩により生ずる

浮遊ヨウ素の性状

NaI を溶解した Na のプール火災を模擬した実験は、Lauben⁽²³⁾, Morewitz ら⁽²⁴⁾, Barmash ら⁽²⁵⁾, 木谷ら⁽²⁶⁾によって行われており、Na 中に溶解させたヨウ素の2~40%が放出されている。河原ら⁽²⁷⁾は、小規模の実験において、ヨウ素の放出割合がNaの表面温度、表面上を流れる空気流速に比例して大きくなり、空気中の酸素濃度および湿度が低くなるほど大きくなる結果を得ている。

プール火災によって生ずる空気汚染中の Na に対するヨウ素の相対移行率(熔融ナトリウム中の(I/Na)比に対するエアロゾル中の(I/Na)比)は、Lauben⁽²⁸⁾や著者らの実験⁽²²⁾から0.3~1.0の範囲内にあり、前に述べた Na 冷却材からカバー・ガスへ気化する場合と

ほぼ等しい。

以上の事柄は、ヨウ素の放出率が燃焼の規模、燃焼の仕方および雰囲気条件によって著しく異なるが、生成される Na エアロゾル中のヨウ素濃度(I/Na)は冷却材中のヨウ素濃度(I/Na)と同程度であることを示している。

プール火災によって生ずる Na エアロゾル中のヨウ素の形態は、Na 燃焼条件によって異なるが、大部分の Na エアロゾルと挙動をとにする粒子状ヨウ素であり、一部分であるが Na エアロゾルから遊離したガス状ヨウ素になることが報告されている: Descamps ら⁽²⁹⁾の実験ではヨウ素の大半が NaI の形で Na エアロゾル(Na₂O, 一部 Na₂O₂)に含まれており、一部のヨウ素は NaIO₃ の形で Na エアロゾル(Na₂O₂, 一部 Na₂O)に含まれていていずれも粒子状ヨウ素であり、Na エアロゾルから遊離するガス状ヨウ素はないと報告している。しかし木谷ら⁽²⁶⁾の行った約1m³のチェンバ内での燃焼実験では、Na エアロゾルから遊離して長時間浮遊するヨウ素が約3%(0.3~10%)存在し、このヨウ素はラジオ・ガスクロマトグラフィーにより CH₃I を主体とした一連のヨウ化アルキルであると同定されている。

Barmash ら⁽²⁵⁾は、浮遊させた元素状ヨウ素と Na エアロゾルとの反応実験において、Na₂O 粒子は元素状ヨウ素の大部分をスカベンジすることを報告している。この場合、反応しないで長時間浮遊するヨウ素は約0.1%である。

Clough ら⁽³⁰⁾は、ヨウ化メチルと Na 蒸気および Na エアロゾルの反応について次のように報告している。CH₃I は1次系において予想される温度500°Cあるいはそれ以上で Na 蒸気と速やかに反応して NaI になるが、400°C以下の Na 蒸気と短時間(~0.5sec)接触する程度ではあまり反応しない。また、Na₂O とは500°C以上の温度でもほとんど反応せず、CH₃I は Na₂O エアロゾル雰囲気では非常に安定である。

これらの結果から、プール火災において放出されるヨウ素の性状は次のように考えられる: ①ヨウ素の大半は NaI(一部 NaIO₃)の形で Na エアロゾルに含まれ、エアロゾルと挙動をとにする。②元素状ヨウ素が生じたとしてもそれは Na₂O エアロゾルと反応して Na エアロゾルと挙動をとにする。③有機ヨウ素は、その生成割合は小さいが Na₂O エアロゾルと反応しないので、エアロゾル粒子から遊離した状態で長

* $\log S^0$ (ppm) = $8.72 - 4,650/T$ (°K), 500°K: 0.8ppm, 800°K: 810ppm.

時間浮遊する。その一部は排気系の汚過装置を通過して環境へ放出される可能性がある。

充分な量の酸素と水蒸気が存在するような事故的な雰囲気において起こるスプレイ火災では、Na 冷却材中に溶解している F.P. のすべてがエアロゾルとして浮遊することが考えられるので、非常にきびしい空気汚染になると予想される。しかし、このようなスプレイ火災によって生ずる浮遊ヨウ素の挙動についての報告はなく、次に述べる低濃度の Na 蒸気が燃焼したとき生ずる浮遊ヨウ素についての報告⁽³¹⁾しかない。

(2) Na 蒸気の漏洩により生ずる

浮遊ヨウ素の性状

原子炉運転中および保守作業時には、カバー・ガスが空气中に漏洩することがしばしばあると考えられる。このような場合、Na 蒸気は空气中の酸素、水蒸気と激しく反応する。その反応によって生ずる浮遊ヨウ素の性状は次に示すようにプール火災の実験によって観察される性状とはかなり異なっている。第4図⁽³¹⁾は、25°~400°C の Na 蒸気(低温の場合は凝縮粒子)を0.1~1 mg Na/sec の割合で約1 m³の空気雰囲気(温度25°C, 相対湿度40%)に噴出させ、生成したエアロゾルを約100sec 間同じ雰囲気において熟成させた後、May pack サンプラを用いて性状分析した結果を示したものである。このような条件では Na エアロゾルから遊離したガス状ヨウ素が生成される。その生成割合は噴出する Na 蒸気温度によって著しく異なり、100°C 付近で最大(約60%)となる。ガス状ヨウ素は、その

第4図 遊離ヨウ素の割合に及ぼす Na(NaI) 蒸気温度の影響⁽³¹⁾

大部分が May pack の活性炭汚紙および銀網に捕集され、無機ヨウ素であると考えられるが、最大2%は活性炭ベットの捕集される成分で有機ヨウ素の可能性はある。蒸気温度100°C 付近においてガス状ヨウ素の生成が特に多くなる理由は今のところ明らかでない。

3. モニタリング技術

以上の報告から得られる浮遊ヨウ素の性状は、Na エアロゾルを伴う粒子状ヨウ素が大部分であり、一部がガス状ヨウ素になると考えられる。このような組成を有する空気汚染のモニタリングには繊維汚紙(HE-40)と活性炭汚紙(CP-20)、あるいは HE-40 汚紙と粒状活性炭カートリッジ(ChC-50)を組み合わせ使用したエアサンプラが使用される⁽³²⁾。

第2表⁽³¹⁾は、IV-2-(2)項で述べたガス状ヨウ素の割合が比較的大きいエアロゾル(第4図参照)に対するエアサンプラ(HE-40および CP-20汚紙を使用)の捕集効率を示したものである。このサンプラの捕集効率は Na エアロゾルに対して100%、ヨウ素に対して99%である。本実験に用いたヨウ素は第4図から明らかのように無機ヨウ素が主成分であるので、エアサンプラの捕集効率はエアロゾルの発生および雰囲気条件にあまり影響されなかった。

第2表 Na エアロゾル中のヨウ素に対する
エアサンプラの捕集効率⁽³¹⁾

Na 蒸気 温度(°C)	雰囲気	相対湿度 (%)	捕 集 効 率 (%)		
			全 体	繊維汚紙 HE-40	活性炭 汚紙 CP-7
25~400	Ar	乾燥	>99	>99	<1
25	空気	40	99	96	3
		80	99	98	1
300	空気	40	99	70	29
		80	99	94	5

(注) NaI エアロゾル(粒径: 0.6 μmMMD, σ_g : 2.0)は100%HE-40汚紙に捕集された。

Na エアロゾルが沈着してガス状ヨウ素のみが浮遊する場合、あるいは汚過装置によって Na エアロゾルと挙動をとにする粒子状ヨウ素などが除去された後には、有機ヨウ素を含んだ捕集し難い性状のヨウ素が主成分となると考えられる。したがって、排気系モニタリングのようにこれら性状のヨウ素に対しても充分な捕集性能をもつことが要求される場合には、活性炭汚紙あるいは活性炭カートリッジにトリエチレンジアミン(TEDA)などの薬品を添着したものを用いる

か、エアサンプラの前に空気加熱装置を付け約80°Cに加熱する方法が用いられる。このようなサンプラの捕集効率は雰囲気条件とくに湿度に左右されなくなり、再現性のある濃度評価ができる⁽³²⁾。

第2表に示されるように、ヨウ素の大半が放射性ナトリウムと一緒に HE-40 濾紙に捕集されると、ヨウ素放射能の検出感度は低下し、定量は非常に複雑になる。このような場合、Na とヨウ素を分離して別々に捕集できれば、ヨウ素放射能の検出、定量は全β線の計測で行うことができ非常に簡便になる。この分離捕集の1つの方法として、著者らはサンプラの前につけたアーク放電によりヨウ素を含む Na エアロゾルを分解し、Na とヨウ素をサンプラの HE-40 濾紙と CP-20 活性炭濾紙にそれぞれ捕集することを試みた⁽³³⁾。この場合、Na は100% HE-40 濾紙に、ヨウ素の80~90%は Na から分離して CP-20 活性炭濾紙に捕集される。したがって、活性炭濾紙に捕集される放射能を計測すれば、エアロゾル中に含まれる各種ヨウ素放射能 (¹³¹I~¹³⁵I) の高感度な検出ができ、定量も著しく容易になる。さらに、この方法は空気汚染の日常管理において要求される簡便さ、迅速性などの点で優れている。

V. ヨウ素以外の F.P. および腐食生成物による空気汚染のモニタリング

熔融ナトリウム中の Cs の挙動に関する実験および熱力学的考察から、Cs は熔融ナトリウム中では単体の金属として存在し⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾、Na 温度500°Cにおける相対移行率は約60であることが報告されている⁽³⁰⁾。この値は NaI の相対移行率(0.3~1.0)に比べると著しく大きく、少量の Na の蒸発に伴って多量の Cs の蒸発があることを示している。したがって、Na 冷却材などの漏洩とそれに続く燃焼によって生ずる空気汚染には放射性セシウムが含まれる可能性が非常に大きい。Cs を溶解した Na を燃焼させる小規模実験において、Cs は Na エアロゾルと挙動をとともにすることが報告されている⁽²⁷⁾⁽³⁰⁾。このように Na₂O 粒子に凝集した Cs は、エアサンプラの HE-40 濾紙により100%の効率で捕集される。また、Na エアロゾルから遊離した揮発性の Cs が生ずる場合でも、その Cs はエアサンプラの HE-40 濾紙の後に装着される活性炭濾紙あるいはカートリッジに効率よく捕集される。このことは軽水炉燃料を切断したとき放出される放射性セシウムのサンプリングにより立証されている⁽³⁴⁾。

その他の主な F.P. および腐食生成物は、熱力学的

考察から Na 冷却材中において酸化物として存在する可能性が大きい⁽³⁾。したがって、冷却材が漏洩して生ずる空気汚染において、これらの F.P. および腐食生成物は揮発性であり、Na エアロゾルに凝集した粒子として挙動すると考えられる。このような放射性エアロゾルは前にも述べたようにエアサンプラの繊維濾紙に効率よく捕集される。

VI. あとがき

LMFBR における Na 冷却材またはカバー・ガス漏洩時の Na エアロゾルおよび F.P. とくにヨウ素の挙動とその空気汚染モニタリング技術について述べた。

LMFBR における平常運転時および保守作業時の空気汚染モニタリング技術には、従来軽水炉などにおけるモニタリングのために開発されてきた技術がほぼ適用できる。しかし LMFBR の空気汚染は放射能強度および質量濃度の大きい Na エアロゾルを伴うので、それに対する考慮を払うことと、さらに放射性ナトリウムエアロゾルからのヨウ素の分離捕集など、新しい技術の導入についても考慮する必要があると考えられる。

以上述べてきたことは実験結果に基くものである。モニタリング方式の確立には LMFBR 運転開始後の現場の経験を反映させて行くことがさらに必要である。

一 参 考 文 献 一

- (1) FIRST, M.W.: *Nucl. Safety*, 13[1], 37 (1972).
- (2) HEINE, W.F., HART, R.S.: *Health Phys.*, 21, 449 (1971).
- (3) 原安協報告: ナトリウム中における核分裂生成物等のふるまいに関する調査評価, (1974).
- (4) CLOUGH, W.S.: *AERE-R-5848*, (1968).
- (5) TADMOR, J.: *Nucl. Safety*, 14[4], 324 (1973).
- (6) 多田 浩: “有害物管理のための測定法”, 第1部無機編(上), (1967), 労働科学研究所出版部.
- (7) KOONTZ, R.U., et al.: *Proc. 9th AEC Air Cleaning Conf.*, 848 (1966).
- (8) 村田幹生, 他: 本会昭46保健物理分科会予稿集, p12 (1971).
- (9) KEILHOLTZ, G.W., BATTLE, C.C. Jr.: *ORNL-NSIC-37*, (1969).
- (10) ETTINGER, H.J., GARLAND, J.A.: *AERE-R-6460*, (1970).
- (11) CLOUGH, W.S., GARLAND, J.A.: *AERE-R-6460*, (1970).
- (12) MURATA, M., NARITOMI, M., YOSHIDA, Y.: *J Nucl. Sci. Technol.*, 11[2], 65 (1974).
- (13) 成富満夫, 他: 本会昭47年会要旨集, I 3, (1972).
- (14) 成富満夫, 他: 保物協第8回研究発表会要旨集, (1973).
- (15) CASTLEMAN, A.W. Jr.: *IAEA Symp.*, SM-85/26,

- (1967).
- (66) CLOUGH, W.S.: *J. Nucl. Energy*, 21, 225 (1967).
- (67) CLAAR, T.D.: *Reactor Technol.*, 13, 124 (1970).
- (68) KUNKEL, W.P.: *NAA-SR-11766*, (1966).
- (69) EGGLETON, A.E. Jr.: *AERE-R-4887*, (1967).
- (70) POLLOCK, B.D., et al.: *ANL-7520*, Part 1, 549 (1968).
- (71) CASTLEMAN, A.W., Jr.: *Nucl. Safety*, 11[5], 379 (1970).
- (72) 村田幹生, 他: 本会昭48年会要旨集, G13, (1973).
- (73) LAUBEN, G.N.: *NAA-SR-9700*, (1964).
- (74) MOREWITZ, H.A., et al.: *Conf. Int. sur la Surete des Reacteurs a Neutrons Rapides*, W/5, (1967).
- (75) BARMASH, L., et al.: *Proc. 11th AEC Air Cleaning Conf.*, 373 (1970).
- (76) KITANI, S., et al.: 11th Int. Congr. on Confinement of Radioactivity and the Use of Nuclear Energy, Societe Francaise De Radioprotection (Versailles), (1974).
- (77) KAWAHARA, S., et al.: *Proc. Int. Conf. Fast Reactors for Safe and Reliable Operation*, Vol. 3, (1973).
- (78) LAUBEN, G.N., LARSON, C.L.: *Proc. 9th AEC Air Cleaning Conf.*, (1966).
- (79) DESCAMPS, CI., et al.: 文献(74)と同じ.
- (80) CLOUGH, W.S., FRASER, A.: *J. Nucl. Energy*, 27, 1 (1973).
- (81) NARITOMI, M., MURATA, M., YOSHIDA, Y.: *Proc. 3rd Int. Congr. IRPA*, (1973).
- (82) 成富満夫, 福田整司: 空気清浄, 10[2], 79 (1972).
- (83) NARITOMI, M., MURATA, M., YOSHIDA, Y.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 11[8], 345 (1974).
- (84) 山本峯澄, 他: 保健物理, 4[1], 32 (1969).

○第10回熱測定討論会○

主催 熱測定研究会, 共催 本会ほか

と き 11月28日(木)~30日(土)

ところ 全共連ビル(東京都千代田区平河町2-7)

研究発表 (76件) ①熱測定および温度測定, ②熱分析

特別講演

11月28日

- (1) 熱分析による Al 合金の時刻析出。(東北大)平野賢一
(2) Recent Research in Chemical Thermodynamics.
(Lethbridge 大) L G. Hepher

11月29日

- (3) 結晶性高分子の熱的性質。(東工大)河合 徹
(4) Thermal Properties of Transition Metal Coordination Compounds.

(Houston 大) W.W. Wendlandt

10周年記念講演「日本における熱測定の曙」

11月30日

- (5) 反応熱測定の最近の進歩。(阪大)崎山 稔
(6) 酵素の構造転移の熱測定。(群馬大)滝沢俊治

参加費 要旨集代金3,000円を添え11月15日までに下記へ。

懇親会 11月29日(金) 18:00~ (於 6階マツヤサロン)

(参加希望者は会費(2,000円)を添えて下記へ)

展示会 期間中会場で実演。

申込先 (〒113)東京都文京区湯島1-5-31(第1金森ビル内)

熱測定研究会 (Tel. 03-815-3988)

○日本工学会第33回見学会○

日 時 11月15日(金) 13:30~15:30

見学会 CVS 東村山プロジェクト実験場

定 員 50名 申込期限 10月31日(木)

申込方法 往復はがき(1枚に1名記入のこと)に第33回見学会申込と
題記(1)郵便番号, (2)住所, (3)氏名, (4)年令, (5)勤務先名称
及び役職名, (6)所属の学協会名を, 返信用表紙に通信先,

郵便番号を記入, 申込先へ送付すること。(電話による申
込は受付けません)

申 込 先 (〒104)東京都中央区銀座8-5-4 日本鉱業会館内
日本工学会 (Tel. 03-574-6176)

○第7回高温材料技術講習会○

「セラミックス産業とエネルギー」

主催 窯業協会, 本会ほか協賛

と き 12月4日(水)~6日(金)

ところ 日本都市センター別館講堂

(東京都千代田区平河町2 Tel. 03-265-8211)

内 容

12月4日 エネルギーの現状と将来

5日 高温燃焼技術の今後の開発と省エネルギー

6日 セラミックス材料の将来の指向

パネルディスカッション

12月6日 セラミックス産業の将来ビジョンとエネルギー

定 員 150名, 申込締切 11月20日(水)

受講料 テキスト1部を含む22,000円, 学生10,000円

申込先 (〒160)東京都新宿区百人町2-22-17

窯業協会 (Tel. 03-362-5232)

○第5回核燃料工学短期講座○

内 容 本講座は原子核燃料に関する全般的な知識を比較的短時間に
に習得, 理解させる。

期 間 11月19日(火)~12月7日(土)

応募資格 大学理工科系卒業程度の学力があると認められる者, また
は高校卒業後, 原子力に関連ある職場において2~3年の
実務経験を有する者を対象とする。

募集人員 20名程度

受 講 料 28,000円

申込要領 所定の入所申込書に必要な事項を記入のうえ,
10月15日(火)までに下記あてに申込む。

申込・問合せ先 (〒319-11)茨城県那珂郡東海村

原研東海原子炉研修所 (Tel. 02928-2-5667)