原研の再処理施設に設置したガスモニタの性能

佐藤 信之* 南 賢太郎* 大西 武*

Performance of Gas Monitor Employed at Fuel Reprocessing Test Plant of JAERI

By Nobuyuki SATO, Kentaro MINAMI and Takeshi ONISHI

The first Japanese fuel reprocessing test plant has been constructed at the JAERI since 1962 and this plant is scheduled to be in operation in the near future.

The radioactive gases released from the plant are mainly iodine and krypton. Iodine is monitored by a special instrument with a charcoal filter paper and charcoal cartridges. This paper describes performance of a gas monitor designed to measure krypton-85.

In order to measure krypton-85 which emits 0.7MeV β -rays, a gas sampler having a volume of 3.4 ℓ was used with a bundle of two side window type GM tubes.

The minimum detectable amounts of this gas monitor obtained by calculation and experiment were of $2 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ and $6 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ respectively.

1. 緒 言

再処理施設の稼動により放出される放射性ガスは、おもに使用済燃料被覆材の溶解終了時および燃料溶解時に発生し、それらの中に含まれるものはガス状の核分裂生成物と揮発性の核分裂生成物である。これらの放射性ガスの排気にあたってはガス濃度の連続モニタリングを行なうことが必要である。

日本原子力研究所の再処理施設は近くプラント規模で稼動する予定であり、施設から放出される放射性ガスの種類の検討を行なったところ ^{85}Kr が排気にあたって問題となる核種であった。

^{85}Kr は β 線を放出するので検出器としてはシンチレーション、電離箱、GM 管等を用いることができるが筆者らは日常の放射線管理の面を考慮して保守および取扱いの容易な GM 管方式によるガスモニタを製作したのでその概要と検出感度について報告する。

2. 排気される放射性ガス

施設で使用される燃料は JRR-3 で使用した燃料を対

象としており、燃料の形態はアルミニウム被覆天然金属ウランである。JRR-3 の運転条件 および 燃料の冷却期間は次に示す通りである。

熱出力	10MW
燃料要素	アルミニウム被覆天然金属ウラン
平均中性子束	$5.8 \times 10^{12} \text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$
燃 焼 度	700MDW/ton
運転時間	420days
冷却期間	160days

原研の再処理施設の運転は 50kg の使用済燃料を 1 バッチとして順次に 8 バッチ溶解し、全体で 400kg の燃料を 1 工程分とする。FP, Pu, U の分離および Pu の精製はすべて溶媒抽出法により行なわれる。

1 バッチ当りの溶解工程における所要時間は約 24 時間である。したがって溶解工程中放出される放射性ガスは 1 バッチ毎に 24 時間連続的に排気されるものとして濃度を求めればよく、先にのべた条件の燃料溶解工程中に放出される放射性ガスの種類、量および濃度に関して調べ

* 日本原子力研究所保健物理安全管理部 (Japan Atomic Energy Research Institute)

てみると **Table 1** に示す結果となる¹⁾。

Table 1 Radioactive gases released from one batch (50kg) of the spent fuel during the reprocessing

Isotope	Quantities of the Radioactive gases. 1 batch, 50kg (Ci)	Radioactive concentration of the released gases ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)
^{85}Kr	1.6×10^1	4×10^{-5}
^{129}I	3.4×10^{-5}	8.5×10^{-11}
^{131}I	2.6×10^{-3}	6.5×10^{-9}

施設の排気流量率は $1.7 \times 10^{10} \text{cm}^3/\text{hr}$ であるから放出される放射性ガス濃度は **Table 1** 第3列の如くなる。 Xe は160日の冷却期間中にほとんど減弱し、また ^{129}I は無視できるので、問題になる核種としては ^{85}Sr と ^{131}I を考えれば十分である。

ヨウ素のモニタリングは大切であるが、ヨウ素は別系統で活性炭カートリッジおよび活性炭含浸濾紙を使用してモニタリングするので再処理施設のガスモニタとしては ^{85}Kr を測定の対象とすればよい。またガスモニタの検出感度としては放出される濃度 $4 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ および ^{85}Kr の最大許容空气中濃度の $3 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ などを考えると、約 $10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度であればよいことがわかる。

3. 試作ガスモニタの概要

^{85}Kr はおもに最大エネルギー 0.7MeV の β 線を放出するので検出器としてはサイドウィンド型 GM 管で窓厚 $30 \text{mg}/\text{cm}^2$ の LIONEL 106 を、検出感度をあげる

目的で2本並列につないで用いた。これらの GM 管を内容積 3.4l のステンレス容器（ガスサンプラ）の中に入れ厚さ 8cm の鉛で遮蔽した。**Fig. 1** に検出部の断

Fig. 1 Cross section of the gas sampler

Fig. 2 Block diagram of the gas monitor installed at the fuel reprocessing plant

面を示す。**Fig. 2** は測定系のブロックダイアグラムである。検出器とレートメータ間は 50m であり 5C-2V ケーブルで信号を送っている。信号伝送には電流方式を採用したので高圧と信号は同一ケーブルで共用することができた。

4. 検 出 感 度

はじめに計算により検出感度を求め、次にその値が正しいかどうか ^{85}Kr ガスを用いて確めた。

4. 1 計算による検出感度

測定器の検出できうる限界計数率はバックグランド計数率 n_b と、その測定におけるタイムコンスタント τ_b および放射性ガスの測定におけるタムコンスタント τ_s によって定めることができる。^{2) 3)} すなわち正味計数率を n_n とし、その標準偏差を σ とするとき、 $n_n=3\sigma$ を満足するような放射性ガスからの計数率を検出できうる限界計数率と定める。そうすると n_n は次の式で求めることができる。

$$n_n = \frac{3}{2} \left\{ \frac{3}{2\tau_s} + \sqrt{\left(\frac{3}{2\tau_s} \right)^2 + 2n_b \left(\frac{1}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_b} \right)} \right\} \dots (1)$$

筆者らのガスモニタでは n_b が 30 cpm であり、 τ_b , τ_s はそれぞれ 100秒を選んだので、これらを (1) 式に代入して計算すると検出できうる限界計数率 n_n は 14 cpm となった。

Fig. 1 に示すサンプラを半径 $R_2 (=9\text{cm})$ の球と考えその中に半径 $R_1 (=2.6\text{cm})$ の球状の GM 管* があると考えて GM 管の位置における spherical intensity を次の式により求める。なお、これらの計算は放射性ガスの占める容積に対して GM 管の占める容積が十分小さ

いと考へ、サンプラおよび GM 管を同体積の球形とみなして計算の簡略化を行なった。

$$\begin{aligned} \phi_N &= \int_v \frac{ce^{-\mu_w t} \cdot e^{-\mu_a r}}{4\pi r^2} dv \\ &= \frac{c}{\mu_a} e^{-\mu_w t} (e^{-\mu_a R_1} - e^{-\mu_a R_2}) \dots \dots \dots (2) \end{aligned}$$

ただし C : ^{85}Kr の濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)

dv : 微小体積 ($dv=4\pi r^2 dr$)

r : 検出器と微小体積の距離

t : GM 管の β 線入射窓厚 (0.0185 cm)

μ_a : ^{85}Kr の β 線に対する空気の吸収係数 (0.039 cm^{-1})

μ_w : ^{85}Kr の β 線に対するアルミニウムの吸収係数 (81 cm^{-1})

次に GM 管の有効感度断面積を $S (=21 \text{ cm}^2)$ とすれば (2) 式とこれらの量より次のように 検出感度を求めることができる。

$$\phi_N S = n_n$$

ゆえに、

$$C = \frac{n_n \mu_a}{2.22 \times 10^6 S e^{-\mu_w t} (e^{-\mu_a R_1} - e^{-\mu_a R_2})} \dots \dots \dots (3)$$

(3) 式を用いて ^{85}Kr に対する最小検出量を計算すると約 $2 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ になる。

4. 2 ^{85}Kr による検出感度の実測

純粋な ^{85}Kr ガスを使用して検出感度を実測する場合のブロックダイアグラムを **Fig. 3** に示す。電離箱とデ

* LIONEL 106 で一番感度のよいところのみの大きさを、 $1.5 \text{ cm} \phi \times 9.0 \text{ cm}$ として GM 管 2 本の感度表面積を求めると 84 cm^2 となる。これを球状の GM 管とみなすと半径が 2.6 cm, 有効感度断面積が 21 cm^2 の GM 管となる。

Fig. 3 Schematic diagram of apparatus for calibrating the gas monitor using ^{85}Kr

テクタを **Fig. 3** のようなクロードサーキットにしてこの系に ^{85}Kr ガスを少量流し込みストロークポンプで十分攪拌し平衡状態に達した時点で振動容量電位計で濃度を決定し(4)、その時のレートメータの指示値から検出感度を求めた。

Fig. 4 は ^{85}Kr の濃度を構軸にとり、たて軸にはガスモニタの計数率をとったものである。この図から前に求

めた検出でき得る限界計数率を ^{85}Kr の濃度に換算し、最小検出量を求めてみると $6 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となる。

またこの $6 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度は検出感度の定義より誤差 33.3% で求められる値である。計算値は $2 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ であるからファクタ 3 の差がある結果となった。

Fig. 4 Counting rate obtained by the gas monitor vs. radioactive concentration of ^{85}Kr

4.3 サンプラの容積と検出感度

(1) 式を用いて無限大のサンブラが与える検出器の点における β 線フラックスを求め、この値と限られたサン

Fig. 5 Ratio of the β -ray flux at a position of the detector from ^{85}Kr filled in a definite volume to β -ray flux from ^{85}Kr in an infinite volume

ブラが与える β 線フラックスの比を調べてみると **Fig. 5** のようになる。図の横軸はサンブラの半径であり、たて軸は β 線フラックスの比である。この図からサンブラの半径は 80cm 程度の大きさであれば理想的であるが、比の変化をみると半径 20cm 程度までは急激に変化してそれより大きくなっても比は徐々にしか増さない。したがって遮蔽などの問題をかみ合せて考えれば半径 20cm 程度に選べば適当と思われる。筆者らは手持の装置を利用したのでサンブラとしては半径 9 cm の比較的小さいものとなった。このことが計算による検出感度と実測による検出感度に誤差が生じた原因であると推測される。

5. 結 論

再処理施設に設置されるガスモニタはおもに ^{85}Kr を測定の対象とすればよく、したがって安価で取扱の容易な GM 管方式が得策である。この場合検出感度としては $10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以下を期待できる。また検出感度は放

射性ガスを用いて実測しなくとも計算によりかなりよい近似で求められることが分った。

終りに臨み、この実験を行なうにあたりいろいろと便宜を与えられました再処理開発研究室木谷 進博士、高田準一氏、ならびに放射線管理課長代理加藤仁三氏とそのグループの方々に厚く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 再処理試験施設によるホット試験障害対策書
日本原子力研究所再処理開発研究室
 - 2) 南 : 水中検出器による漂砂の測定
Radioisotopes Vol. 14 No. 2 (1965)
 - 3) 南, 佐藤 : 検出感度の求め方
JAERI-memo (公開) 印刷中
 - 4) 加藤, 他 : 放射性ガス測定用電離箱のエネルギー特性
応用物理 Vol. 32 No. 6 (1963)
-