シリカゲルを用いた排気トリチウム量の計測

山本峯澄^{*1}, 清木義弘^{*1}, 水書利雄^{*1}

(1972 年 8 月 15 日受理)

Measurement of Tritium in Exhausted Air Using Silicagel

Hozumu YAMAMOTO, ^{*1} Yoshihiro SEIKI, ^{*1} Toshio MIZUGAKI^{*1}

I 緒 言

排気空気中のトリチウム濃度は、水蒸気凝集法によって測定していたが、この方法はドライアイスなど寒剤が必要なこと、連続捕集が困難なこと、排気の温湿度を測定しなければならないことなどの欠点があった。この欠点を補う方法として、排気中のトリチウムをシリカゲルに長期間にわたって吸着させ、吸着した水分を加熱して脱着し、脱着した水のトリチウム濃度を液体シンチレーションカウンタで計測することによって、排気トリチウムの平均濃度と排出量を求める方法を試験した。

シリカゲルを用いて空気中トリチウム濃度を計測する方法は、これまでも報告されているが¹⁻³⁾、ここでは長期間サンプリングするうえでの吸着性能と、測定試料水中トリチウム濃度から、サンプリングトリチウム量を簡便に求める方法について報告する。

II シリカゲルの吸着性能

温度 20°C から 50°C におけるシリカゲルの水分吸着性能の試験に用いた装置を Fig. 1 に示す。トリチウムを含む水溶液 (約 500 $\mu\text{Ci/ml}$) をバブリングさせて、トリチウムを含む空気 (水蒸気分圧 10.5 mmHg)^{*2} を発生させ、一定の温度に保たれた箱内のシリカゲル吸着塔に流入させた。吸着塔の前後には電離箱 (1.5 l) を設置し、

吸着塔前後のトリチウム濃度を測定して、シリカゲルの水蒸気透過率を求めた。また、一定時間ごとに吸着塔の重量を計測して、シリカゲルに吸着した水量を求めた。試験したシリカゲルは、和光純薬工業 K K 製 5~20 メッシュ (中粒) で、吸着塔に 370 g 充填して使用した。

Fig. 1 Apparatus for measuring the penetration of water vapor through adsorbent.

吸着塔雰囲気温度を 20°C, 30°C, 40°C, 50°C に維持し、トリチウム含有空気を流量率 6 l/min で流通させたときの水蒸気透過率を求めた。Fig. 2 は水蒸気透過率が、それぞれ 1% と 10% になるときの水分吸着率 (吸湿剤単位重量あたりの吸着水量)、および飽和水分吸着率を温度の関数として示したものである。吸湿剤単位重量あたりの吸着水分量は、一般にサンプリングする空気の相対湿度の上昇とともに増加する傾向がある^{4,5)}。また原子炉炉室内の温湿度は、年間を通じてそれぞれ 15~30°C, 30~90% の範囲にあるので、排気筒からのサンプリングにおいて、1% の水蒸気透過率まで使用するとすれば、Fig. 2 から吸湿剤の 15% 以上の水蒸気を吸

^{*1} 日本原子力研究所保健物理安全管理部; 茨城県那珂郡東海村 (〒319-11)

Div of Health Physics and Safety, Japan Atomic Energy Research Institute; Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken.

^{*2} 20°C における相対湿度 60%。

Fig. 2 Weight percentage of the adsorbed water in silica gel at various penetration rates.
Flow rate: 6 l/min, partial pressure of the vapor: 10.5 mmHg.

着できることがわかる。

トリチウムを含まない水蒸気を、水蒸気透過率が高くなるまで十分に吸着させ、ついでトリチウムを含む水蒸気を流入させたとき、トリチウム透過率（シリカゲルの出口と入口におけるトリチウム濃度の比）は、この時点における水蒸気透過率より低い値になった。これは、トリチウム水蒸気がシリカゲルを通過する間に、吸着されていた水分と置換するものと考えられ⁶⁾、このことから水蒸気を吸着し、吸着能力の低下したシリカゲルに、突然高濃度のトリチウム水蒸気を含む空気が流入しても、トリチウムは十分シリカゲルに吸着されることがわかった。

III 吸湿シリカゲルからの水採集方法

シリカゲルからの採水に使用した装置を **Fig. 3** に示す。水蒸気を吸湿した吸着塔を水蒸気捕集系から取りはずし、吸着塔周囲にリボンヒータ (200 W) をまいて加熱し、同時に乾燥した空気を吸着塔の下方から上方に流通させて、シリカゲルから脱着した水蒸気を冷却器に導

Fig. 3 Apparatus for sampling of the water adsorbed in silica gel.

き、凝集させて水試料を得た。

乾燥した空気の流量率と凝集する水量との関係は、冷却水の温度と冷却器の性能に依存するが、上記の加熱条件では流量率 2~8 l/min の範囲が効率よく採水できた。これ以下の流量率では水蒸気が冷却器に流入せず、これ以上では水蒸気の凝集効率が下がる。最初の水滴が試料ビンに得られるのは、加熱後 10~15 分であった。

サンプリングする空気中のトリチウム濃度が時間とともに変化する場合、吸湿したシリカゲル中のトリチウム濃度がシリカゲルの位置（入口からの距離）により異なり、採水されるトリチウム濃度も、加熱開始時間経過とともに変化的ことが考えられる。これを調べるために、使用量の 1/4 のシリカゲルにトリチウムを含む水蒸気を吸着させ、これを **Fig. 4** に示す位置、すなわち①下方、②中間、③上方にそれぞれ設置し、他の 3/4 はトリチウムを含まない水蒸気を同重量比だけ吸着させたシリカゲルを詰めて、水分を採水した。また、これらのシリカゲルを均一に攪拌した場合についても、水分を脱着させた。このとき採集される水のトリチウム濃度は、**Fig. 4** のように加熱時間とともに変化するが認められた。しかし、攪拌した場合は、どの時点の水試料のトリチウム濃度も同一であった。あらかじめ吸着水分重量を脱着前に計測し、またシリカゲルを攪拌して採水すれ

Fig. 4 Variation of the tritium concentration in water samples with heating time.

ば、吸着している水分を完全に採水しなくても、採水した最初の1滴のトリチウム濃度を測定することにより、吸着した全トリチウム量が求められることがわかった。

IV 結 言

現在、この方法を用いて原研重水炉の排気筒から排出されるトリチウムの量を測定しているが、ドライアイスを使用した水蒸気凝集法から求めた値と、ほぼ一致することが認められている。シリカゲルを370g使用し、流量率100~200 cm³/minで流通させたとき、1カ月連続の排気中トリチウムのサンプリングが可能である。シリカゲルから吸着水分を採水する場合、シリカゲルを採水前に攪拌して採水すれば、全吸着水分を採水する必要がなく、一部の水を採水することで、吸着含水分量を推定することができることがわかった。他の核種と混合して排出される場合、および低濃度のトリチウムが排出されている場合に、長期間にわたる連続したトリチウムの排出量を測定するには、本方法はより簡便、確実に感度のよい方法である。

本報告をまとめるにあたり、ご指導いただきました日本原子力研究所、放射線管理課長、吉田芳和博士および同課長代理国分守信氏に感謝します。

参 考 文 献

- 1) R. V. OSBORNE ; Studies and techniques in tritium Health Physics at CRNL, Canadian Rep. AECL-2699 (1967).
- 2) J. H. OSLOOND *et al.* ; A tritium air sampling method [for environmental and nuclear plant monitoring, Abstracts for the tritium symposium 34, No. 66 (1971).
- 3) J. C. DALY *et al.* ; Tritium moisture in the atmosphere surrounding a nuclear fuel reprocessing plant, *Radiological health data and reports*, 9, 341 (1968).
- 4) T. L. THOMAS ; 6th World petrol. cong. (Frankfurt), Part 3, No. 16 (1963).
- 5) "Chemical Engineers' Handbook" (3rd Edition), p. 880 (1950), McGraw-Hill Book Co.
- 6) R. G. AUNE *et al.* ; LBL-2 (1971).

会費払込のお願い

当協議会の会費は、前納制になっておりますので昭和47年度分、およびそれ以前の年度の会費を未納の方は、至急お払込みくださいますようお願いいたします。

現在、会費の納入を遅滞されている方が大分おり事業運営上非常に支障をきたしております。都合上退会される方は、退会手続をとるようお願いいたします。

会 費	正会員	1,500 円
	準会員	1,000 円

なお振込口座番号は東京 24488 (払込料金は当協議会負担) です。