



排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法の 検証（再評価）と高度化への提言

Re-evaluation of a Method for Monitoring Airborne Radioiodine Discharge and its
Contribution to Development of an Advanced Method

小嵐 淳 三上 智 宮内 亨 小沢 友康
横田 友和 中田 陽 秋山 聖光 百瀬 琢磨

Jun KOARASHI, Satoshi MIKAMI, Toru MIYAUCHI, Tomoyasu KOZAWA
Tomokazu YOKOTA, Akira NAKADA, Kiyomitsu AKIYAMA and Takumaro MOMOSE

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
放射線管理部

Radiation Protection Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

December 2010

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2010

排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法の
検証（再評価）と高度化への提言

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部

小嵐 淳⁺、三上 智⁺⁺、宮内 亨、小沢 友康^{*}、横田 友和^{*}、
中田 陽、秋山 聖光、百瀬 琢磨

(2010年9月28日受理)

より安定で信頼性が高く、効率的な排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法を確立することを目的とし、東海再処理施設で実施しているモニタリング手法の基礎となる捕集・測定技術及び放出評価法に関する試験・検討を行った。特に、(1) 活性炭含浸ろ紙と活性炭カートリッジを組み合わせたヨウ素捕集方法の捕集効率の評価と、そのサンプリング流量率依存性の解明、(2) 活性炭カートリッジに捕集されたヨウ素の放射能定量法の確立、(3) 活性炭カートリッジによるヨウ素捕集の適用限界の評価、(4) 排気中放射性ヨウ素の連続監視システムの構築を目指した。得られた結果に基づいてモニタリング手法を再評価し、現在のモニタリング手法の妥当性を検証するとともに、手法の高度化へ向けた技術的要件を提示した。

核燃料サイクル工学研究所：〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

+ 原子力基礎工学研究部門 環境・放射線科学ユニット、兼核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部

++ 大洗研究開発センター 安全管理部

* 検査開発株式会社

Re-evaluation of a Method for Monitoring Airborne Radioiodine Discharge and its Contribution to
Development of an Advanced Method

Jun KOARASHI⁺, Satoshi MIKAMI⁺⁺, Toru MIYAUCHI, Tomoyasu KOZAWA*,
Tomokazu YOKOTA*, Akira NAKADA, Kiyomitsu AKIYAMA and Takumaro MOMOSE

Radiation Protection Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories,
Tokai Research and Development Center,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken.

(Received September 28, 2010)

The current methodology for monitoring airborne radioiodine at the Tokai reprocessing plant (TRP) was reviewed, and some investigations were made to re-evaluate collection and measurement techniques in the methodology. The investigations focused particularly on: (1) *in situ* collection efficiency of an iodine sampler for ¹²⁹I and its dependence on sampling flow rate; (2) evaluation of ¹²⁹I and ¹³¹I activities collected in an activated charcoal cartridge; (3) ¹²⁹I collection capacity of an activated charcoal cartridge under reprocessing off-gas conditions; and (4) real-time monitoring system for ¹²⁹I in airborne effluent. The results obtained gave not only the validity of the TRP's monitoring method, but also technical aspects required for establishing a more reliable and effective monitoring method for radioiodine isotopes.

Keywords: Radioiodine (¹²⁹I and ¹³¹I), Reprocessing Plant, Radioactive Airborne Effluent, Activated Charcoal Filter and Cartridge, Reliable Monitoring Method

+ Division of Environment and Radiation Sciences, Nuclear Science and Engineering Directorate,
Concurrent: Radiation Protection Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
++ Health and Safety Department, O-arai Research and Development Center
* Inspection Development Company Ltd.

目 次

1. 緒言.....	1
2. 東海再処理施設における排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法.....	2
2.1 放射性ヨウ素の捕集方法.....	2
2.2 放射能測定及び放出量評価法.....	2
2.3 モニタリング手法の検出下限濃度.....	4
3. ヨウ素捕集効率とそのサンプリング流量率依存性.....	5
3.1 はじめに.....	5
3.2 試験方法.....	5
3.3 試験結果と各捕集材における捕集効率の評価.....	6
3.4 ヨウ素の捕集に係わるその他の留意点.....	7
4. CHC-50 に捕集されたヨウ素の放射能定量法.....	8
4.1 はじめに.....	8
4.2 試験方法.....	8
4.3 結果と考察.....	8
4.4 まとめ.....	9
5. ¹³¹ I の放出管理における放射能減衰補正.....	10
5.1 はじめに.....	10
5.2 ¹³¹ I の放射能減衰補正評価.....	10
5.3 ¹³¹ I 放射能の補正の現状と考察.....	11
6. 実環境におけるヨウ素捕集材の捕集性能評価と放出管理への反映.....	13
6.1 はじめに.....	13
6.2 試験方法.....	13
6.3 試験結果.....	14
6.4 考察とまとめ.....	15
7. 排気中放射性ヨウ素の連続監視システム.....	16
7.1 はじめに.....	16
7.2 連続監視システムの構築と試験方法.....	16
7.3 試験結果と考察.....	17
7.4 まとめ.....	18
8. 結言.....	20
参考文献.....	21

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Monitoring methodology for airborne radioiodine at the Tokai reprocessing plant	2
2.1 Radioiodine collecting method.....	2
2.2 Activity determination and release evaluation	2
2.3 Lowest detectable concentration of the method	4
3. Radioiodine collection efficiency and its dependence on sampling flow rate	5
3.1 Background and purpose.....	5
3.2 Materials and methods	5
3.3 Results and discussion.....	6
3.4 Other considerations.....	7
4. Activity determination of radioiodine collected in an activated charcoal cartridge	8
4.1 Background and purpose.....	8
4.2 Materials and methods	8
4.3 Results and discussion.....	8
4.4 Summary	9
5. A method for evaluating ¹³¹I activity collected in an activated charcoal cartridge	10
5.1 Background and purpose.....	10
5.2 A method for evaluating ¹³¹ I activity during sampling.....	10
5.3 Discussion and summary.....	11
6. <i>In situ</i> investigation on ¹²⁹I collecting capacity of an activated charcoal cartridge	13
6.1 Background and purpose.....	13
6.2 Materials and methods	13
6.3 Results	14
6.4 Discussion and summary.....	15
7. A real-time monitoring system for ¹²⁹I in airborne effluent	16
7.1 Background and purpose.....	16
7.2 Design and test of a real-time monitoring system	16
7.3 Results and discussion.....	17
7.4 Summary	18
8. Conclusions	20
References	21

図表リスト

- 図 2.1 東海再処理施設で使用しているヨウ素サンプラの捕集系統概略図
- 図 2.2 活性炭含浸ろ紙 (CP-20)
- 図 2.3 活性炭カートリッジ (CHC-50)
- 図 3.1 ヨウ素捕集効率のサンプリング流量依存性に関する試験概略図
- 図 3.2 ヨウ素捕集効率のサンプリング流量依存性
- 図 6.1 ヨウ素捕集材の性能試験の概略図
- 図 6.2 サンプリング空気量と、試験試料 (TS) 及びバックアップ試料 (BS) に捕集された放射能の関係
- 図 6.3 バックアップ試料 (BS) に捕集された ^{129}I 放射能の総放射能に対する比と、サンプリング空気量の関係
- 図 6.4 バックアップ試料 (BS) に捕集された ^{129}I 放射能の総放射能に対する比と、 ^{129}I 総放射能の関係
- 図 6.5 バックアップ試料 (BS) に捕集された ^{129}I 放射能の総放射能に対する比と、通過積算水分量の関係
- 図 7.1 NaI 検出器による正味計数率と捕集材に捕集された ^{129}I 放射能の関係
- 図 7.2 NaI 検出器の正味計数率から推定されるヨウ素捕集部に捕集された ^{129}I 放射能範囲
- 図 7.3 再処理施設のせん断・溶解運転時に得られた NaI 検出器、Ge 検出器及び、 ^{85}Kr モニターの指示値の変動例

- 表 4.1 活性炭カートリッジ (CHC-50) に対する放射能測定結果
- 表 6.1 ^{129}I サンプリング期間中の温度・相対湿度の変動範囲
- 表 6.2 ^{129}I サンプリング期間とサンプリング日数
- 表 7.1 NaI 検出器を用いた連続監視システムの試験結果

This is a blank page.

1. 緒言

原子力発電に伴って、原子炉内では核分裂や核分裂生成物の壊変により、多種の放射性ヨウ素同位体が生成され、その一部は原子炉運転中に環境中へ放出される。これらのヨウ素放射性同位体のうち、半減期や核分裂収率などの観点から原子力発電施設に起因する環境影響を評価する上で特に重要となる同位体はヨウ素 131（以下、「 ^{131}I 」という。：半減期 8.02 日）である^(1,2)。

一方、原子炉から取り出された使用済燃料中に生成している放射性ヨウ素同位体のうち、短半減期の同位体は再処理施設内における使用済燃料の冷却保管期間中に壊変・減衰する。これに対して、長半減期のヨウ素 129（以下、「 ^{129}I 」という。：半減期 1.57×10^7 年）は、使用済燃料が再処理されるまで残り続けるため、 ^{129}I が再処理施設から環境中へ放出される主要な放射性ヨウ素同位体となる。そのため、再処理施設においては ^{129}I の放出量の監視・管理や放出に伴う環境への影響に特に注意する必要がある⁽¹⁻⁵⁾。

現在、原子力エネルギーの利用に伴って環境中に放出される ^{129}I はごくわずかである。しかし、 ^{129}I は一度環境中へ放出されると、半減期が非常に長いことから、半永久的に生物圏に存在し、食物連鎖を通じて人体に取り込まれ、甲状腺に濃縮して長期的な被ばくをもたらす可能性があり、放射線安全の観点で重要な核種といえる⁽⁶⁻¹¹⁾。

以上のことから、再処理施設からの放射性ヨウ素、特に ^{129}I の放出に対して、その放出量を的確かつ継続的にモニタリングすることが重要である。本報告では、①東海再処理施設において実施している排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法について概説する。②そのモニタリング手法の基礎となる放射性ヨウ素の捕集方法、放射能測定方法、放出評価方法等に係わる検討・再評価を行うことにより、モニタリング手法の妥当性を検証する。③検討結果に基づき、より信頼性が高く、効率的なモニタリング手法の開発・確立に資することのできる知見を提供する。

2. 東海再処理施設における排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法

2.1 放射性ヨウ素の捕集方法

空気中の放射性ヨウ素を捕集する方法としては、活性炭捕集材を用いる方法（固体捕集法）や、アルカリ溶液（たとえば、NaOH 等）のスクラバを用いる方法（液体捕集法）がある。活性炭の吸着現象を利用する固体捕集法については、実験室における各種条件下での実験において高い捕集効率が得られることが示されている⁽¹²⁾。日本規格協会では、活性炭ヨウ素捕集材の捕集効率は、温度 25 ± 5 °C、相対湿度 80 ± 10 %の試験用気体（ヨウ化メチル： CH_3I を混合した空気）を通気速度 0.4 m s^{-1} 以上で30分間通気する試験において、90%以上であることを規定している⁽¹³⁾。一方、化学反応を利用する液体捕集法は、活性炭による固体捕集法と比較して、捕集効率が悪く、取り扱いや放射能測定が煩雑になり、日常及び緊急時のモニタリングには適さない^(14,15)。放射性ヨウ素を効率よく捕集できること、捕集した放射性ヨウ素を定量するための測定が容易であることなどから、空気中の放射性ヨウ素のモニタリングには、活性炭捕集材を用いた固体捕集法が広く適用されている。しかし、活性炭を用いて放射性ヨウ素を捕集する場合でも、その捕集効率は、(1)ヨウ素の物理的・化学的な性状、(2)サンプリング対象気体の組成や雰囲気条件（例えば、ヨウ素の質量濃度、活性炭に対して活性な水蒸気や不純ガスの存在量など）、(3)サンプリング時間や表面速度（サンプリング流量と捕集材の開口部面積との関係）などに依存し、実フィールドにおける捕集効率は一般的には実験室における捕集実験の結果と比較して著しく低下し、同時に再現性も悪くなる⁽¹⁵⁻¹⁷⁾。そのため、固体捕集材を用いた放射性ヨウ素の捕集においては、使用状況や使用環境を考慮して捕集材を選定し、適応現場における捕集効率を評価した上でサンプリング条件を決定する必要がある。

再処理施設から大気中へ放出される放射性ヨウ素は、元素状ヨウ素 (I_2) やヨウ化メチル (CH_3I) をはじめ、化学的に多種多様な形態（無機形、有機形）をとる⁽¹⁸⁾。このような多様な化学形態の放射性ヨウ素を効率よく捕集することを目的として、東海再処理施設では、活性炭含浸ろ紙（以下、「CP-20」という。）と活性炭カートリッジ（以下、「CHC-50」という。）を併用することにより、気体廃棄物中の放射性ヨウ素を捕集している。図 2.1 に東海再処理施設で使用しているヨウ素サンプラの捕集系統概略図を示す。CP-20（図 2.2）は、セルローズ・アスベストの基材ろ紙に粉末のヤシガラ活性炭を重量割合 45%で含浸させたものであり、CHC-50（図 2.3）は、円筒状カートリッジに活性炭の粉末を充填したものである。有機ヨウ素成分に対する捕集効率を向上させるために、両捕集材中の活性炭には重量割合で 10%のトリエチレンジアミン（TEDA）を添着している^(12,15)。また、両捕集材間及びヨウ素サンプラ内の捕集材設置部と各捕集材間においてサンプリング空気のリークが生じないように、各捕集材には図に示すようなゴムパッキン（ネオプレンゴム）が取り付けられている。東海再処理施設における気体廃棄物中ヨウ素のサンプリング流量及びバッチサンプリング期間は、それぞれ 70 l min^{-1} 、1 週間である。

活性炭以外のヨウ素の固体捕集材として、銀ゼオライトや銀アルミナがある。これらの捕集材は、放射性希ガスであるキセノン (Xe) の吸着が極めて少ないために、事故時における放射性希ガスとヨウ素の混合気体中からヨウ素を選択的に捕集するために有用であるが、活性炭と比較して高価であるために、多量の試料を要する定常的なモニタリングには適さない⁽¹⁹⁾。

2.2 放射能測定及び放出量評価法

(1) 放射能測定

1 週間にわたる排気筒空気のバッチサンプリング後に、CP-20 及び CHC-50 を回収し、それぞれ Ge(Li)半導体検出器（以下、「Ge 検出器」という。）を用いたγ線スペクトロメトリーによる放射

性ヨウ素の放射能測定を行っている。なお、ヨウ素サンプラでは、サンプリング期間中においても、定量性には欠けるものの、捕集材に捕集された放射性ヨウ素からの放射線を NaI(Tl)シンチレーション検出器（以下、「NaI 検出器」という。）を用いて連続的に測定し、ヨウ素の異常放出等を迅速に捉えることができる（図 2.1、詳細は「7. 排気中放射性ヨウ素の連続監視システム」参照）。

(2) 捕集材における捕集放射能の定量

厚みのある CHC-50 に捕集された放射性ヨウ素の放射能を定量する際には、放射性ヨウ素から放出されるγ線のエネルギーが低く（¹²⁹I：39.6 keV）、捕集材による自己遮蔽効果が問題となることや、CHC-50 内で放射性ヨウ素が深さ方向（サンプリング空気の流入口側から流出口側）に分布を持って捕集されていることを考慮する必要がある。東海再処理施設では、CHC-50 の表側（サンプリング空気の流入口側）及び裏側（サンプリング空気の流出口側）に対して、それぞれ Ge 検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによる ¹²⁹I 放射能の測定を行い、それらの放射能測定値の平均値を用いて CHC-50 に捕集された ¹²⁹I 放射能を見積もっている（本手法の妥当性に関する実験的検討を「4. CHC-50 に捕集されたヨウ素の放射能定量法」に示す）⁽²⁰⁾。一方、CP-20 については、厚さが 2 mm と薄いために、自己遮蔽効果や捕集材中での対象核種の深さ方向における分布の影響は小さいと考えられるので、表側での測定のみによって捕集された放射能を定量している。

サンプリング期間中に捕集材によって捕集された ¹²⁹I の総放射能は、基本的には CP-20 及び CHC-50 に捕集された放射能の和であり、¹²⁹I 放射能の各測定値を用いて次の式によって評価している。

$$A = A_F + \frac{A_{\text{front}} + A_{\text{back}}}{2} \quad (2-1)$$

ここで、A は捕集された ¹²⁹I の総放射能[Bq]、A_F は CP-20 の放射能測定値[Bq]、A_{front} 及び A_{back} はそれぞれ CHC-50 の表側、裏側における放射能測定値[Bq]である。

(3) 平均濃度及び放出量の評価法

サンプリング期間中の空気中の ¹²⁹I の平均濃度 C [Bq cm⁻³-air]は、式(2-1)によって見積もられた捕集材中の ¹²⁹I 放射能 A [Bq]を用いて、

$$C = A \cdot \frac{100}{E} \cdot \frac{1}{U} \quad (2-2)$$

によって算出される。ここで、E は捕集材（CP-20 と CHC-50 の両捕集材）によるヨウ素の実効的な捕集効率[%]である。また、U は対象期間中に捕集材に導入された排気筒空気の総量[cm³]であり、サンプリング流量 f [cm³ s⁻¹]とサンプリング期間 T_s [s]の積によって表される。ただし、評価対象核種が ¹³¹I の場合は、その半減期が短い（8.02 日）ことを考慮し、サンプリング開始から測定開始時までの期間における放射能の減衰を補正する必要がある。具体的には、測定結果 A_S [Bq]（ここで、A_S は A_F、A_{front} 及び A_{back} のいずれかである）に対して、減衰補正を行った放射能 A_{Corr} [Bq]は、

$$A_{\text{Corr}} = A_S \times \frac{\lambda \cdot T_s}{1 - \exp(-\lambda \cdot T_s)} \times \frac{1}{\exp(-\lambda \cdot T_c)} \quad (2-3)$$

である。ここで、T_c はサンプリング終了から測定開始までの時間[s]、λは ¹³¹I の壊変定数[s⁻¹]、λ = ln2/T_h（T_h は ¹³¹I の半減期[s]）である（¹³¹I に対する放射能減衰補正に係る検討を「5. ¹³¹I

の放出管理における放射能減衰補正」に述べる)。

対象期間中に排気筒から放出される放射性ヨウ素の放射能 Q [Bq]は、

$$Q = C \cdot V \quad (2-4)$$

によって評価でき、式中の V は期間中に排気筒から放出された気体廃棄物の総排気量[cm³]である。

2.3 モニタリング手法の検出下限濃度

¹²⁹IはCP-20とCHC-50の両捕集材で捕集される。定常モニタリングの条件下では、Ge検出器による¹²⁹I分析値の検出下限値は両捕集材とも<3 Bq/sample(測定時間:3,000秒)である。また、¹³¹I分析値のそれは半減期、測定時間及び測定対象試料数などの関係からばらつきはあるものの<1 Bq/sampleである。サンプリング流量、期間及び捕集材(CP-20とCHC-50の併用)のヨウ素捕集効率を考慮すれば、式(2-2)より、本手法における排気中¹²⁹I及び¹³¹Iの検出下限濃度はそれぞれ 9×10^{-9} Bq cm⁻³、 3×10^{-9} Bq cm⁻³と見積もられる。

一方、東海再処理施設から大気中への¹²⁹I及び¹³¹Iの放出管理において、それぞれ 3.7×10^{-8} Bq cm⁻³の濃度(以下、「報告上の検出下限濃度」という。)を十分に測定できることが求められている。したがって、本手法は、この報告上の検出下限濃度を十分な精度で測定することが可能な手法である。Ge検出器による測定においては、測定装置のコンディションや周辺環境の変化等によって検出限界計数率が若干変動し、それに伴って検出下限値も変動する。¹³¹Iの場合は上述のように変動要因はさらに多くなる。定常的な放射線管理の実施においては、このような測定における検出下限値の変動を毎回厳密に定量することが放出評価において必ずしも必要であるとは限らない。そこで、東海再処理施設における排気中ヨウ素の放出管理においては、測定における検出下限値の変動を考慮し、その最大値を下回ることがない一定の検出下限値を設け、より効率的な放射線管理を実現している。具体的には、¹²⁹Iに対しては5 Bq/sampleを、¹³¹Iに対しては4 Bq/sample(以下、「管理上の検出下限値」という。(それぞれ上記の検出下限値よりも高い。))を検出下限値として用いて、式(2-2)より一定の検出下限濃度(1.6×10^{-8} Bq cm⁻³、 1.3×10^{-8} Bq cm⁻³)を算出している。これらの検出下限濃度は、ともに、報告上の検出下限濃度(3.7×10^{-8} Bq cm⁻³)を十分に下回っている。

このような管理手法により、ヨウ素放出評価における煩雑さを排除した上で、報告上の検出下限濃度よりも十分に低い¹²⁹I及び¹³¹I濃度の測定を可能にしている。

3. ヨウ素捕集効率とそのサンプリング流量率依存性

3.1 はじめに

活性炭を用いたヨウ素捕集における捕集効率は、ヨウ素の物理的・化学的性状、雰囲気条件及びサンプリング条件などによって大きく変化することが考えられる。また、捕集効率は、式(2-1)～(2-4)に示されるように、排気中の放射性ヨウ素の濃度及び放出量を評価するために欠くことのできないパラメータのひとつである。そのため、ヨウ素捕集材について、それを適用する環境・条件下におけるヨウ素捕集効率を評価しておく必要がある。そこで、実際に再処理施設から放出される排気を対象に、ヨウ素捕集効率の評価及び、そのサンプリング流量率依存性を把握するための試験を実施した⁽²⁰⁾。

3.2 試験方法

東海再処理施設の主排気筒内から空気をサンプリングし、**図 3.1**に示す CP-20 及び CHC-50 の組み合わせで構成された試験用捕集部に空気を通過させた。試験用捕集部は、CP-20 と CHC-50 を併用した評価対象のヨウ素捕集部の後段に、バックアップ用の CP-20 や CHC-50 を組み合わせ配置した構造とした。試験 1 では、バックアップとして CP-20 と CHC-50 をひとつずつ、試験 2 では、CHC-50、CP-20、CHC-50 の順に 3 つの捕集材を、試験 3 では、CHC-50 のみを使用した。試験に用いた CP-20 及び CHC-50 には、それぞれ重量割合で 10% の TEDA が添着されており、定常的なモニタリングで使用しているものと同様のものである（「2. 東海再処理施設における排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法」参照）。サンプリング期間は 1 週間とし、サンプリング流量を $40.6 \sim 75.0 \text{ l min}^{-1}$ の範囲で設定し、合計 31 回のヨウ素捕集試験を実施した。

サンプリング後に各捕集材を回収し、CP-20 に対しては表側のみ、CHC-50 に対しては表側と裏側の両面について、Ge 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによる ^{129}I 放射能の測定を行った。

CP-20、CHC-50 及び、評価対象のヨウ素捕集部（CP-20 と CHC-50 の併用）の捕集効率は、以下の式により評価した。

$$\eta_F = \frac{A_{F,1}}{\sum A_{F,i} + \sum (A_{\text{front},i} + A_{\text{back},i})/2} \times 100 \quad (3-1)$$

$$\eta_C = \frac{(A_{\text{front},1} + A_{\text{back},1})/2}{\sum A_{F,i} + \sum (A_{\text{front},i} + A_{\text{back},i})/2} \times 100 \quad (3-2)$$

$$\eta_T = \eta_F + \eta_C \quad (3-3)$$

ここで、 η_F 、 η_C 及び η_T は、それぞれ、評価対象の CP-20、CHC-50、CP-20+CHC-50 のヨウ素の捕集効率[%]、式中の $A_{F,1}$ 、 $A_{\text{front},1}$ 及び $A_{\text{back},1}$ [Bq] はそれぞれ評価対象の CP-20、CHC-50 表側及び裏側における放射能測定値、 $A_{F,i}$ [Bq]、 $A_{\text{front},i}$ [Bq] 及び $A_{\text{back},i}$ [Bq] はそれぞれ評価対象も含めた空気流入口から i 個目の CP-20、CHC-50 表側及び裏側における放射能測定値である。

3.3 試験結果と各捕集材における捕集効率の評価

(1) ヨウ素捕集部（CP-20 と CHC-50 の併用）によるヨウ素の捕集効率

試験 1 (n=2) より、バックアップの CP-20 にはヨウ素が捕集されなかった（厳密には、捕集されたヨウ素の放射能が測定の検出下限値未満である）。試験 2 (n=6) においてもバックアップの CP-20 にはヨウ素が捕集されなかった。また、最後部の CHC-50（バックアップの 2 個目）に捕集される ^{129}I はほとんどなく、検出されたとしても測定における検出下限値をわずかに超える程度であった。試験 2 全体で捕集された ^{129}I を 100% とすれば、バックアップにある最後部の CHC-50 に捕集された ^{129}I は 0.0~3.2%（平均 1.1%）であった。最後部の CHC-50 で捕集されずにさらに後段へ流出する ^{129}I は、3 段目の CHC-50 で捕集される量よりも少ないと考えられる。このことから、評価対象捕集部（CP-20 と CHC-50 の組み合わせ）を通過して、かつバックアップとして設置した最初の CHC-50 で捕集されないヨウ素はわずかであるとみなすことができるので、評価対象となる捕集部の後段に CHC-50 のみを設置した試験 3 (n=23) によっても十分な精度でヨウ素捕集効率を評価することが可能であると考えられる。

図 3.2 にヨウ素捕集効率試験の結果を示す。CP-20 と CHC-50 を併用した評価対象捕集部のヨウ素捕集効率は、90.0~100% の範囲であり、平均 94.8 ± 2.9 (1std)% であった（ただし、各測定における検出下限値未満の値は 0 Bq とした）。なお、試験中における 1 週間の平均温度及び平均相対湿度の変動範囲はそれぞれ 22~35 °C、16~40 % であった。

これまで、東海再処理施設において、試験対象とする捕集材の後段に 5 つの CHC-50 をバックアップとして設置し、評価対象捕集部（CP-20 と CHC-50 の組み合わせであり、今回用いた捕集材と同じものであるが、ヨウ素捕集材をセットしたホルダーは異なる）のヨウ素捕集効率を評価した結果が報告されている⁽²¹⁾。その結果によれば、評価対象捕集部のヨウ素捕集効率は約 70~90% の範囲（試験回数 n=15）であった。今回の試験では、過去に報告されている値と比較して高い捕集効率（90~100%）が得られた。しかし、今回の試験実施前に行った予備試験では、2 つの捕集部を並列に設置して同じ空気をサンプリングした際に、片方の捕集部においてバックアップの CP-20 や CHC-50 で ^{129}I が検出される結果が得られている。そのときの評価対象捕集部の捕集効率は 72.8% 及び 93.4% と見積もられ、低い捕集効率は過去に実施された試験の結果と良く一致している。バックアップのヨウ素捕集材において ^{129}I が相対的に多く捕集された原因としては、ヨウ素捕集材ホルダー内でのリークが考えられる。ヨウ素捕集材ホルダー内において、サンプリング空気が評価対象の CP-20 や CHC-50 の捕集面を通過せずに、後段のバックアップ捕集材へ流れ込むような事象が発生していれば、バックアップ捕集材へのヨウ素捕集量が相対的に多くなり、評価対象捕集部の捕集効率が低く見積もられることになる。予備試験での結果を受けて、本試験では、使用するヨウ素捕集材ホルダー内でリークが生じないように、(1) アタッチメント（CP-20 のろ紙部分を除いたもので、厚さ 5 mm のゴムパッキン）を 1 個余分にサンプリングホルダーに封入してホルダー内の深さ方向のスペースを埋めるとともに、(2) 各捕集材間にシリコングリースを塗ることによって、ホルダー内での各捕集材間の密着性を高めるような対策を施した。その結果、以後の試験において安定した高い捕集効率を得ることができるようになった。

(2) 評価対象捕集部の各捕集材におけるヨウ素の捕集割合

評価対象捕集部で捕集された ^{129}I 量を 100% としたとき、CP-20 及び CHC-50 で捕集された ^{129}I の割合は、それぞれ 7.8~44.0%（平均 $19.0 \pm 7.8\%$ ）、51.8~84.6%（平均 $75.8 \pm 7.1\%$ ）であった。ただし、CHC-50 のみのヨウ素捕集効率を把握するためには、CHC-50 のみを個別に用いた試験を行う必要がある。

(3) 評価対象捕集部の捕集効率のサンプリング流量率依存性

図 3.2 に示すとおり、東海再処理施設からの排気筒空気の 1 週間にわたるヨウ素サンプリングに対して、40~75 l min⁻¹ のサンプリング流量率範囲において、ヨウ素捕集効率の流量率依存性は認められず、安定して高い捕集効率（90%以上）が得られた。これは、最終的な濃度及び放出評価に求められる検出下限値を考慮した上で、このサンプリング流量範囲でヨウ素のサンプリングを行うことが可能であることを意味している。高流量によるサンプリングは、ヨウ素捕集材による圧力損失のために、サンプリングポンプやブロワに負担をかけることになる。今回の結果は、より適切かつ効率的なサンプリング条件を検討・確立していく上で有用である。

3.4 ヨウ素の捕集に係わるその他の留意点

他の核種に対するモニタリングと同様に、サンプリングライン内での空気のリークは、排気筒外空気の混入により平均濃度及び放出量を過小評価してしまう。そのため、ヨウ素のサンプリング装置においても、トリチウムや炭素 14 の捕集に係わる留意点で述べたような工夫、例えば、サンプリング空気の流入口と流出口の両方に流量計を配備するなど、を施しておいたほうが良いと考える^(22,23)。

ヨウ素捕集材は、対象とする排気筒空気の湿度のみならず窒素酸化物 (NO_x) の影響によって、特に有機形ヨウ素に対する捕集効率が低下する可能性がある⁽¹⁵⁾。そのため、サンプリング対象である気体廃棄物の空気組成を把握し、妨害要因となる不純ガスのヨウ素捕集効率への影響を評価しておくことが望ましい。

4. CHC-50 に捕集されたヨウ素の放射能定量法

4.1 はじめに

CHC-50 などの厚みのあるヨウ素捕集材に捕集された放射性ヨウ素の放射能を定量する際には、放射性ヨウ素から放出される γ 線のエネルギーが低く (^{129}I : 39.6 keV)、捕集材による自己遮蔽効果が問題となることや、CHC-50 内で放射性ヨウ素が深さ方向に分布を持って捕集されることを考慮する必要がある。しかし、定常的に発生する多量の測定試料に対して、個別に自己遮蔽効果やヨウ素の捕集材中の分布を考慮した放射能評価を行うことは、放射線管理を円滑に遂行する上では必ずしも最良であるとはいえない。そこでここでは、CHC-50 に捕集された放射性ヨウ素の放射能を簡便に見積もることのできる方法について検討した⁽²⁰⁾。

4.2 試験方法

^{129}I を含む空気を、サンプリング流量 70 l min^{-1} で 1 週間にわたって CHC-50 に通気させた。 ^{129}I を捕集した CHC-50 のサンプリング空気流入側 (表側) 及び流出側 (裏側) の両表面に対してそれぞれ γ 線スペクトロメトリーによる放射能の測定を行った。その後、カートリッジを開封し、充填されている活性炭を取り出して良く攪拌した。均質化された活性炭を新しいカートリッジに移し替えて再封入した。このようにして作成した均質化された CHC-50 について、再度、その表側及び裏側において γ 線スペクトロメトリーによる放射能測定を行った⁽²⁴⁾。

4.3 結果と考察

表 4.1 にカートリッジに充填されている活性炭を均質化する前後において CHC-50 の表側及び裏側で測定された ^{129}I 放射能を示す。サンプリング後の放射能測定 (均質化前) では、すべての CHC-50 において表側が裏側よりも高い測定結果が得られ、表側と裏側の ^{129}I 放射能比は 1.57~1.71 であった。このことから、本サンプリング条件では、ヨウ素は CHC-50 中で深さ方向に分布を持って捕集されており、試料回収時においてサンプリング空気の流入側において流出側よりも多くの ^{129}I が捕集されていることがわかる。一方で、カートリッジ内部の活性炭を混合・再充填した後 (均質化後) の測定では、すべての CHC-50 において表側と裏側の放射能比がほぼ 1 となり、CHC-50 内で ^{129}I の分布が均質化された。

均質化された 3 つの CHC-50 試料の表側及び裏側における放射能測定値の平均値は、それぞれ 46.5、44.4、13.0 Bq であった。これに対して、均質化前の表側及び裏側の放射能測定値の平均値は、それぞれ 47.8、43.3、12.1 Bq であった。均質化前後の放射能平均値の比 (均質化前の放射能平均値/均質化後の放射能平均値) は、0.93~1.03 の範囲であった。捕集された放射エネルギーが少ない試料 (試料 No.3) においては、均質化前後の平均値に 7%程度の差が認められたものの、捕集された放射エネルギーが比較的大きい他の 2 試料 (試料 No.1、2) については、平均値が約±3%程度で一致した。

試料 No.3 については、CHC-50 の表側と裏側における放射能測定値の和は 24.1 Bq であった。一方、東海再処理施設からの ^{129}I 放出に関する報告上の検出下限濃度は $3.7 \times 10^{-8} \text{ Bq cm}^{-3}$ であり、この濃度に相当する CHC-50 における表側及び裏側の放射能の和は約 37 Bq である (ただし、CP-20 に捕集された ^{129}I 放射能は管理上の検出下限値未満であるとしている。「2.3 モニタリング手法の検出下限濃度」参照)。試料 No.3 の表側と裏側の放射能の和は、排気中 ^{129}I の検出下限濃度に対応する CHC-50 の表側・裏側の放射能和よりも十分小さいことから、検出下限濃度以上の排気中 ^{129}I 濃度評価に対しては、CHC-50 中の ^{129}I 放射能の見積もりにおける誤差は、試料 No.3 で得られた見積もりの誤差 (7%) よりも小さいと考えられる。

以上の結果から、CHC-50 の表側と裏側での放射能測定値の平均値は、均質化された CHC-50 の放射能と良く一致しており、CHC-50 中に深さ方向に分布をもって捕集されたヨウ素の放射能を定量する際には、表側と裏側での放射能の測定を行い、それらの値の算術平均を用いる方法は、東海再処理施設における ^{129}I 放出管理を実施する上で有効であるといえる。

4.4 まとめ

東海再処理施設における排気中 ^{129}I のサンプリングに使用した CHC-50 について、その空気流入側（表側）及び流出側（裏側）で測定された ^{129}I 放射能を算術平均することにより、CHC-50 に捕集された ^{129}I 放射能を見積もることができることを示した。本手法はきわめて簡便であり、多量の測定対象試料が発生する定常的な ^{129}I 放出管理に適している。ただし、サンプリング条件や対象とするサンプリング空気の組成が異なる場合には、本手法の妥当性を実際に適用しようとする条件下において事前に検証しておく必要がある。

5. ^{131}I の放出管理における放射能減衰補正

5.1 はじめに

^{131}I をCHC-50等の捕集材を用いて捕集し、その捕集総量を評価する場合、 ^{131}I の半減期が約8日と比較的短いことから、捕集期間中の放射性壊変による減衰を補正する必要がある。現在、再処理施設では「発電用軽水型原子炉施設における放出放射性物質の測定に関する指針」⁽²⁵⁾の解説に示される減衰補正を行っている。これは、サンプリング期間中に一定割合で ^{131}I が捕集される状況を想定した方法である。しかし、 ^{131}I の放出が定常的でなく、サンプリング期間初期に ^{131}I が相対的に多く捕集される場合には、この減衰補正法では捕集総量を過小評価することになるため、放出パターンによる補正評価式の変更について検討した。

5.2 ^{131}I の放射能減衰補正評価

(1) 捕集材中の ^{131}I 放射能の時間変化

捕集材を用いて ^{131}I を捕集する場合、捕集材中の ^{131}I 放射能[Bq]の時間変化量は、

$$\frac{dA(t)}{dt} = Q(t) - \lambda \cdot A(t) \quad (5-1)$$

によって表される。ここで、 $Q(t)$ は単位時間当たりに捕集材に流入する ^{131}I の放射能[Bq s⁻¹]であり、時間とともに変化する関数として表わされる。 λ [s⁻¹]は ^{131}I の壊変定数である。

(2) サンプリング開始時にすべての ^{131}I が捕集される場合の補正評価

極端なケースとして、サンプリング開始時にすべての放射能 A_T [Bq]が捕集材に捕集され、その後、 ^{131}I の流入がない場合を仮定すると、サンプリング時刻 $t=0$ での捕集材中の ^{131}I 放射能は A_T [Bq]であり、その後、捕集材中の放射能は ^{131}I の半減期に従いサンプリング期間中に減衰していく。サンプリング開始時にすべての放射能が捕集された場合のサンプリング期間中の捕集材中 ^{131}I 放射能の時間変化は、式(5-1)に基づいて、

$$A(t) = A_T \cdot \exp(-\lambda \cdot t) \quad (5-2)$$

と表される。サンプリング時間を T_S [s]とすると、サンプリング終了時の捕集材中の ^{131}I 放射能 A_S [Bq]は、

$$A_S = A(T_S) = A_T \cdot \exp(-\lambda \cdot T_S) \quad (5-3)$$

となる。よって、サンプリング開始時にすべての放射能が捕集材に捕集された場合において、サンプリング終了後の ^{131}I 放射能から捕集された ^{131}I 放射能を算出する補正評価式は、式(5-3)より、

$$A_T = A_S \cdot \frac{1}{\exp(-\lambda \cdot T_S)} \quad (5-4)$$

となる。

(3) サンプリング期間中に一定割合で ^{131}I が捕集される場合の補正評価

総放射能[Bq]がサンプリング期間全体を通して一定の割合で捕集材に供給される状況を仮定する。捕集材に供給される単位時間当たりの放射能を P (=constant)とすると、サンプリング期間中の捕集材中 ^{131}I 放射能の時間変化は、式(5-1)より、

$$A(t) = \exp(-\lambda \cdot t) \cdot \frac{P}{\lambda} \cdot \{\exp(\lambda \cdot t) - 1\} \quad (5-5)$$

と表される。サンプリング期間を T_S [s]、サンプリング期間中に捕集された ^{131}I の総放射能を A_T [Bq]とすると、捕集材に供給される単位時間当たりの ^{131}I 放射能は、

$$P = \frac{A_T}{T_S} \quad (5-6)$$

の関係を満たし、サンプリング終了時の捕集材中の ^{131}I 放射能 A_S [Bq]は、

$$A_S = A(T_S) = \frac{A_T}{\lambda \cdot T_S} \cdot \{1 - \exp(-\lambda \cdot T_S)\} \quad (5-7)$$

となる。よって、サンプリング期間中に一定の割合で ^{131}I が捕集材に捕集された場合において、サンプリング終了後の ^{131}I 放射能から、捕集された ^{131}I 放射能を算出する補正評価式は、式(5-7)より、

$$A_T = A_S \cdot \frac{\lambda \cdot T_S}{1 - \exp(-\lambda \cdot T_S)} \quad (5-8)$$

となる。

(4) 1週間のサンプリングにおける補正係数の算出

捕集材に ^{131}I が捕集される際の2つのケースについて、補正評価式(5-4)及び(5-8)を導出した。それぞれの式は、サンプリング期間 T_S [s]が決まれば、サンプリング終了後の ^{131}I 放射能にある係数(以下、「補正係数」という。)を乗じることによって、捕集された ^{131}I 放射能を算出することができる。現在、東海再処理施設では、ヨウ素のバッチサンプリングの期間を1週間としている。サンプリング期間を1週間とした場合のそれぞれの式における補正係数を算出する。

サンプリング開始時にすべての放射能が捕集される場合、補正係数は1.83となり、補正評価式は、

$$A_T = 1.83 \times A_S \quad (5-9)$$

となる。一方、サンプリング期間中に一定割合で放射能が捕集される場合、補正係数は1.33となり、補正評価式は、

$$A_T = 1.33 \times A_S \quad (5-10)$$

となる。すなわち、サンプリング開始時にすべての放射能が捕集された場合と、サンプリング期間中に一定割合で放射能が捕集された場合では、サンプリング終了後の放射能から評価される捕集放射能が1.4倍異なることになる。

5.3 ^{131}I 放射能の補正の現状と考察

現在、東海再処理施設では、「発電用軽水型原子炉施設における放出放射性物質の測定に関する指針」⁽²⁵⁾に基づいて ^{131}I 放射能の補正を行っている。これは、サンプリング期間中に一定の割合で ^{131}I が捕集材に捕集された場合を想定しており、式(5-8)、(5-10)に相当している。しかし、この方法では、サンプリング初期に ^{131}I が大量に捕集された場合には、放射能評価値が過小評価することになる。最も安全側の評価は、サンプリング開始時に全量捕集されたと仮定して補正評価する方法であり、これは上述の式(5-4)、(5-9)に相当する。1週間のサンプリング期間に対しては、安

全側の放射能評価値は、上記指針に基づいた評価値の約1.4倍の値となる。したがって、サンプリング開始初期に連続監視しているモニター指示値が通常と異なって著しく上昇しているような場合には、安全側の¹³¹I放射能の補正評価を行うことを考慮する必要がある。

6. 実環境におけるヨウ素捕集材の捕集性能評価と放出管理への反映

6.1 はじめに

CP-20 と CHC-50 の 2 種類の捕集材を重ねて使用することにより、大流量 (70 l min^{-1}) で長期間 (1 週間) にわたるサンプリングに対しても 90% 以上の高い捕集効率が得られることを明らかにし⁽²⁰⁾、現状において適切な放射性ヨウ素の放出管理が行われていることを示した (「3. ヨウ素捕集効率とそのサンプリング流量率依存性」参照)。

JIS Z4336 (放射性よう素サンプラ)⁽¹³⁾に規定されるヨウ素捕集材の性能基準は、低流量・短時間サンプリングを基本としているため、大流量かつ長期間サンプリングに対する捕集効率に関する知見は不足しており、これらの知見は、特に放出モニタリングや環境モニタリングにおけるヨウ素捕集材の性能把握の観点から極めて重要である。

一般に、CHC-50 等の吸着層にヨウ素等の吸着質を含む空気を通気すると、活性炭は流入側から吸着飽和に達し、ある時間経過後に流出側から吸着質が吸着されずに漏出し始める (この点を破過点という)。等温、乾燥状態等の条件下での実験や理論的計算により、ヨウ化メチルの TEDA 添着活性炭に対する吸着特性は Langmuir 式に適合することが報告されている⁽²⁶⁾。しかし、実規模の再処理施設からの排気等、実フィールドの環境は、排気中ヨウ素濃度、排気中に共存する物質、温湿度の変動などの点で、実験室レベルで検討されている条件や理論式的前提とは大きく異なる。そのため、個々のヨウ素捕集材の捕集性能の経時的変化や各種サンプリング環境の捕集性能への影響については明らかになっておらず、現状において上記の手法の適用限界は定かではない。そこで、ここでは、大流量・長期間サンプリングに対する更なる知見を得ることを目的として、実際に再処理施設から放出される排気中 ^{129}I を対象として、サンプリング空気量、捕集された放射エネルギー、捕集材を通過した水分量をパラメータとして、捕集材のヨウ素捕集性能の評価を行う。

6.2 試験方法

(1) サンプリング及び各捕集材の放射能評価

使用済燃料の再処理運転 (05-1、05-2 及び 06-1 キャンペーン (運転単位)) 期間中に、主排気筒から排気中 ^{129}I を捕集した。捕集方法を図 6.1 に示す。前段に配置した CP-20 及び CHC-50 の組合せを試験試料 (以下、「TS」という。) とし、後段に配置した CP-20 及び 2 つの CHC-50 の組合せをバックアップ試料 (以下、「BS」という。) として試験用捕集部にセットした。これらの多段に設置したヨウ素捕集材 (TS 及び BS) に主排気筒から分岐した排気を 50 l min^{-1} の流量率 (一定) で、一定期間 (約 1 日間) サンプリングした。各捕集材は 1 日ごとに試験用捕集部から取り外し、Ge 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによる ^{129}I の放射能測定を行った。測定後、すべての捕集材は再度試験用捕集部にセットし、排気筒からの排気を引き続きサンプリングした。試験用捕集部に戻す際には通気の方法が変わらないように CP-20 や CHC-50 の向きに注意した。この捕集及び測定の手続きを繰り返し行った。サンプリング期間中の試験用捕集部の流入側の温度及び相対湿度を表 6.1 に示す。試験に用いた CP-20 及び CHC-50 には、それぞれ重量割合で 10% の TEDA が添着されており、定常的なモニタリングに使用しているものと同様のものである (「2. 東海再処理施設における排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法」参照)。表 6.2 にキャンペーンごとのサンプリング期間等を示す。なお、06-1 キャンペーン時の試験では、同時期に 2 つの試験用捕集部を並列に設けた。また、各捕集材に捕集された放射能の評価は式(2-1)、(2-3)により行った。

(2) CP-20 と CHC-50 の捕集割合評価

TS の各捕集材を流入側から順に TS-1(CP-20)、TS-2(CHC-50)、BS も同様に流入側から順に BS-1(CP-20)、BS-2(CHC-50)及び BS-3(CHC-50)とし、それぞれに捕集された放射エネルギーを A_{TS-1} 、 A_{TS-2} 、 A_{BS-1} 、 A_{BS-2} 及び A_{BS-3} 、すべての捕集材に捕集された総捕集放射エネルギー(Bq)を A とすると、各捕集材での捕集割合 η_i [%]は、

$$\eta_i = \frac{A_i}{A} \times 100 \quad (6-1)$$

と表わされる。ここで、 i は TS-1、TS-2、BS-1、BS-2、BS-3 のいずれかである。

(3) 通過水分量の算出

試験用捕集部に流入した空気の 1 日ごとの平均温度と相対湿度から、(6-2)式により、1 日当たりの通過水分量を算出した。これをサンプリング期間中にわたって積算することで、サンプリング期間中に捕集材を通過した水分量を見積もった。

$$M = \rho(T) \cdot \frac{H}{100} \cdot U \quad (6-2)$$

ここで、 M は通過水分量[g]、 $\rho(T)$ はサンプリング空気の温度における飽和蒸気圧[g m⁻³]、 H はサンプリング空気の相対湿度[%]、 U はサンプリング空気量[m³]である。

6.3 試験結果

(1) サンプリング空気量と捕集試料間の捕集割合の関係

サンプリング空気量と、TS 及び BS に捕集された ¹²⁹I 放射能の関係を図 6.2 に示す。

05-1 キャンペーンでは、TS については、空気量が約 1,000 m³ に達したときに捕集放射能が約 75 Bq に達し、その後、捕集放射能が減少した。TS での捕集放射能の減少に先立って、サンプリング空気量が約 800 m³ 付近から、BS において捕集放射能が増加する傾向が認められ、空気量が約 1,000 m³ を超えた付近から放射能が急激な増加を示した。TS における捕集放射能の減少は、捕集材に一度捕集された ¹²⁹I が離脱していることを示唆している。BS における初期の捕集放射能の緩やかな増加は、TS において捕集できなかった ¹²⁹I の流入によるものであると考えられる。一方、後の急激な捕集放射能の増加は、TS と BS での捕集放射能の変化の対応性から、TS から離脱した ¹²⁹I、もしくは、TS によって捕集しきれなかった ¹²⁹I が BS に流入してきたことによると考えられる。

05-2 キャンペーンでは、TS では空気量が約 1,200 m³、捕集放射能が 100 Bq を超えても捕集放射能が増加傾向を示し、BS については空気量が約 700 m³ 付近から緩やかな増加傾向 (05-1 キャンペーンにおける初期の緩やかな増加と同程度の傾き) を示した。05-1 キャンペーンの結果とは対照的に、TS による捕集放射能の低下は認められなかったものの、サンプリング空気量が 1,200 m³ を超えた付近から、TS における捕集放射能の増加割合が低下しており、これに伴う BS における捕集放射能の増加割合の上昇が認められた。

06-1 キャンペーンでは、同時にサンプリングを行った No.1、No.2 共に、TS については空気量が約 1,200 m³ に達した付近で捕集放射能が約 90 Bq に達し、その後、サンプリング空気量の増加に伴い捕集放射能が減少した。BS については、空気量が約 900 m³ から捕集放射能が増加傾向を示した。両者 (No.1 と No.2) の TS と BS の捕集放射能の変動傾向は極めて類似していることから、使用した捕集材間の捕集性能の違いは小さいと推察される。

総放射能 (TS (= TS-1 + TS-2) + BS (= BS-1 + BS-2 + BS-3)) に対するバックアップ試料に捕集さ

れた放射能 (BS/総放射能比) とサンプリング空気量の関係を図 6.3 に示す。総放射能を試験試料に流入した放射能と、また、BS [Bq] を試験試料から流出した放射能と見なすと、BS/総放射能比は、サンプリング空気量に対するヨウ素捕集部の破過状況を表す曲線 (破過曲線) に相当するといえよう。サンプリング空気量に対する破過曲線は、05-1 キャンペーンでの結果を除いて良く一致しており、サンプリング空気量が 800 m³ を超えた付近から、BS に捕集される ¹²⁹I の割合が増加したが、TS が吸着飽和に達した点が不明確であった。05-1 キャンペーンでは、TS は、より少ないサンプリング空気量で破過点に達していると考えられる。

(2) 総捕集 ¹²⁹I 放射エネルギーと捕集試料間の捕集割合の関係

BS/総放射能比と、TS 及び BS に捕集された ¹²⁹I の総放射エネルギーの関係を図 6.4 に示す。総放射エネルギーに対する BS/総放射能比は、05-1、06-1 及び 06-2 の各キャンペーンでは、80 Bq から 100 Bq 付近で破過点を迎えたと思われる。これに対し、05-2 キャンペーンでは、捕集放射エネルギーが 50 Bq と 120 Bq の間でのデータ取得頻度が低かったこともあり、この範囲において全体的な BS/総放射能比の上昇傾向がみられるものの、他と比べて吸着飽和に達した点が不明確であった。

(3) 通過積算水分量と捕集材間の捕集割合の関係

BS/総放射能比と通過積算水分量の関係を図 6.5 に示す。

05-1 キャンペーンにおいて、通過水分量が 4,000 g 程度までは BS/総放射能比に上昇傾向はなく、6,000 g までは緩やかな増加傾向を示し、6,000 g を超えた付近で増加率が大きく、すなわち、TS における捕集能力が低くなった。同様に、他のキャンペーンにおいても、通過積算水分量の増加にしたがって BS/総放射能比も上昇した。各キャンペーンのサンプリング期間中の温度・相対湿度に違いはあるものの (表 6.2)、すべての試験において、通過積算水分量が約 4,000 g を超えた点から TS の捕集能力が低下しはじめるという同様の傾向を示した。

6.4 考察とまとめ

サンプリング空気量、捕集放射エネルギー、通過積算水分量のいずれの要因も、相互に関連性が高く、今回の実環境における試験結果からは、捕集材の捕集性能に支配的に影響を及ぼす要因を特定することは困難であった。サンプリング空気の温度や相対湿度 (通過積算水分量がよい指標となりうると考えられる) が、捕集材のヨウ素捕集能力に影響を及ぼすことが知られており⁽¹²⁾、これが、サンプリング空気量と捕集材の捕集性能との間の関連性が不明確であった原因であると考えられる。

一方、通過積算水分量を指標としてヨウ素捕集材の破過傾向をみると、TS の捕集割合の低下のはじまりがほぼ同じ通過積算水分量で生じており、通過水分量が捕集材の捕集性能の経時変化に「見かけ上」強く影響を及ぼしていると推察される。捕集放射エネルギーや有機ヨウ素・無機ヨウ素の混在比、その他の混在気体の影響等が複雑に影響を及ぼしあっていること、さらには、放出率の時間的変化がヨウ素捕集材の捕集効率に影響を及ぼしうることが容易に想定できることから、どの要因がヨウ素捕集性能の低下に対して支配的な影響を与えるかを明らかにするために、さらに個別的な実験的検討が必要である。

7. 排気中放射性ヨウ素の連続監視システム

7.1 はじめに

「2. 東海再処理施設における排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法」で概説したとおり、東海再処理施設では、排気中放射性ヨウ素を CHC-50 等の捕集材を用いてサンプリングし、1 週間ごとに捕集材を交換・回収し、Ge 検出器を用いて捕集材に捕集された放射能を測定することにより、放射性ヨウ素の放出量及び放出濃度を評価している。この方法によって、精度の高い ^{129}I 放出量評価を実現しているが、一方で、1 週間のバッチサンプリングが終了し、捕集材を回収、分析するまでは、サンプリング期間中の ^{129}I 放出量やその変動を把握することができず、仮に ^{129}I の異常放出が生じた場合、それを早期に検知することができない。そのため、バッチサンプリング期間中においても ^{129}I の放出量が把握できる、連続監視システムの開発が強く望まれている。

ここでは、ヨウ素サンプラに NaI 検出器を併設することで、サンプリング期間中に捕集材に捕集された ^{129}I からの放射線を連続的に測定するシステム（図 2.1 参照）及び、それによって得られた放射線計数率を ^{129}I 放出量の推定に利用する方法を検討した⁽²⁷⁾。さらに、Ge 検出器を導入した新たなリアルタイムモニタリングシステムを提案し、その基礎性能試験を行うことで、リアルタイムモニタリングの実現可能性を検討した^(27,28)。

7.2 連続監視システムの構築と試験方法

(1) NaI 検出器を用いた連続監視システムの試験方法

ヨウ素サンプラのヨウ素捕集部に、NaI 検出器を図 2.1 に示す位置で配置した。サンプリングされた排気筒空気は、CP-20、CHC-50 の順に通過してヨウ素が捕集される。本試験で用いた CP-20 及び CHC-50 は、定常的なモニタリングに使用しているものと同じであり、重量比で 10% の TEDA が添着されている。サンプリングは、流量 70 l min^{-1} で 1 週間にわたり実施した。

サンプリング終了後、ヨウ素捕集材を回収し、Ge 検出器による γ 線スペクトロメトリーにより ^{129}I 放射能を測定した。「2. 東海再処理施設における排気中放射性ヨウ素のモニタリング手法」で示したように、厚みのある CHC-50 については、表側、裏側の両方で放射能測定を行い、その測定値の平均値を CHC-50 に捕集された ^{129}I 放射能とした⁽²⁰⁾。

サンプリング期間中、ヨウ素捕集部の空気流入口側に設置した NaI 検出器により、ヨウ素捕集部に捕集された ^{129}I からの放射線計数率を得た。NaI 検出器に接続したパルス波高分析器の窓設定により、29.8 keV のエネルギーを選択的に測定した。本手法の実際の適応現場におけるバックグラウンド計数率は、10 cpm 程度であった。

(2) Ge 検出器を用いた連続監視システムの試験方法

NaI 検出器は、常温での使用で高い検出効率が得られることから、放射線モニタリングに広く利用されている⁽²⁹⁾。しかし、この検出器は、エネルギー分解能が高くないため、様々な放射性核種が混在する再処理排気に対し、 ^{129}I からの放射線を選択的に測定することが困難であると考えられる。そこで、NaI 検出器に代わり、高純度 Ge 検出器（液体窒素による冷却）を用いた試験を実施した^(27,28)。試験方法は、基本的には、図 2.1 に示したものと同様のサンプリング構成で行い、NaI 検出器に代わり、高純度 Ge 検出器を採用した。ただし、Ge 検出器を用いたシステムでは、ヨウ素捕集部は CHC-50 のみとした。Ge 検出器では、 ^{129}I からのエネルギー 29.8 keV の γ 線を測定するために、約 27.8～31.8 keV のエネルギー領域を設定した。

7.3 試験結果と考察

(1) NaI 検出器を用いた ^{129}I の異常放出の迅速検出と放出量推定

表 7.1 に、1 週間のバッチサンプリング終了時における NaI 検出器による放射線計数率と、ヨウ素捕集材の ^{129}I 放射能測定値の関係 ($n=5$) を示す。これらはいずれも、再処理施設で使用済燃料のせん断・溶解が行われていない期間に得られた結果である。NaI 検出器による放射線計数率は、ヨウ素捕集材を新しいものに交換した直後（バックグラウンド計数率：約 10 cpm）から、1 週間の期間で 60~140 cpm に増加した。これらのヨウ素捕集材に対して γ 線スペクトロメトリーにより定量された ^{129}I 放射能は、8.5~23 Bq の範囲であり、 ^{129}I 捕集量が少なかった試験 No.5 を除き、ヨウ素捕集部、つまり、CP-20+CHC-50 に捕集された全 ^{129}I のうちの約 70%が、CHC-50 に捕集されていた。この結果は、捕集された ^{129}I のうち約 20%が CP-20 に、>70%が CHC-50 に捕集されたという「3. ヨウ素捕集効率とそのサンプリング流量率依存性」で示した結果⁽²⁰⁾とよく一致している。

図 7.1 に、NaI 検出器の正味の計数率 (R_{net} [cpm]) と、ヨウ素捕集材に捕集された ^{129}I 放射能 (A_T [Bq]) の関係を示す。ヨウ素捕集部全体で捕集された ^{129}I 放射能と R_{net} の間の強い相関関係 ($R^2 = 0.90$) が認められたが、特に CP-20 の ^{129}I 放射能と R_{net} の間の相関関係 ($R^2 = 0.48$) は若干低かった。これは、検出器に対する 2 つのヨウ素捕集材の位置関係と、両捕集材における不均等な放射能分配によるものであると考えられる。回帰直線から、次の関係式を導くことができる。

$$A_T = \frac{R_{\text{net}}}{60} \cdot \frac{100}{E_{\text{unit}}} \quad (7-1)$$

ここで、 E_{unit} は、NaI 検出器を用いた連続監視システムの見かけの検出効率を表わし、今回の結果から、 $E_{\text{unit}} = 9.3\%$ と見積もられた。この関係式は、 R_{net} の現場測定により、バッチサンプリング期間中の任意の時点で、ヨウ素捕集部に捕集された ^{129}I を推定できる簡便な手段を与えているといえる。

正味の計数率は、次のモデルによっても説明できると考えられる。

$$R_{\text{net}} = A_F \cdot \frac{E_F}{100} \cdot 60 + A_C \cdot \frac{E_C}{100} \cdot 60 \quad (7-2)$$

ここで、 E_F と E_C は、それぞれ、CP-20 と CHC-50 に対する NaI 検出器の見かけの検出効率[%]である。ただし、この簡略化されたモデルでは、CHC-50 の深さ方向における放射能の分布（表 7.1 における A_{Cf}/A_{Cb} ）を考慮しておらず、それによる NaI 検出器の検出効率への影響を考慮していない。また、CHC-50 から放出された放射線が、CHC-50 と NaI 検出器の間に位置する CP-20 を通過する際に受ける影響を考慮していない。

2 組の試験データセット (R_{net} 、 A_F 、 A_C) が得られた時、以下に示す、式(7-2)に基づく連立方程式の解により、 E_F と E_C を算出することができる。

$$E_F = \frac{A_{C2} \cdot R_{\text{net}1} - A_{C1} \cdot R_{\text{net}2}}{A_{F1} \cdot A_{C2} - A_{F2} \cdot A_{C1}} \cdot \frac{100}{60} \quad (7-3)$$

$$E_C = \frac{A_{F1} \cdot R_{\text{net}2} - A_{F2} \cdot R_{\text{net}1}}{A_{F1} \cdot A_{C2} - A_{F2} \cdot A_{C1}} \cdot \frac{100}{60} \quad (7-4)$$

ここで、($R_{\text{net}1}$ 、 A_{F1} 、 A_{C1}) 及び ($R_{\text{net}2}$ 、 A_{F2} 、 A_{C2}) は、それぞれ NaI 検出器の正味計数率[cpm]、CP-20 の ^{129}I 放射能[Bq]、CHC-50 の ^{129}I 放射能[Bq]の試験データセットである。これらの式と、

表 7.1 に示す 5 つの試験データセットを用いて、 E_F と E_C を、それぞれ、 $17.3 \pm 1.3(1\sigma)\%$ 、 $6.6 \pm 0.4(1\sigma)\%$ と見積もることができ、図 2.1 のように配置した NaI 検出器は、CP-20 に捕集された ^{129}I に対して、CHC-50 に捕集された ^{129}I に対するよりも約 3 倍検出効率が高いと評価された。ここで、ヨウ素捕集部に捕集された全 ^{129}I 放射能に対する、CP-20 に捕集された ^{129}I 放射能の比を p ($= A_F/A_{\text{unit}}$) とすると、式(7-2)は、

$$A_{\text{unit}} = \frac{R_{\text{net}}}{p \cdot E_F + (1-p) \cdot E_C} \cdot \frac{100}{60} \quad (7-5)$$

と表すことができ、 p の値が得られれば、NaI 検出器の正味計数率から ^{129}I 放射能を推定できる。上述したように、また、「3. ヨウ素捕集効率とそのサンプリング流量率依存性」で示した結果から、CHC-50 に捕集される ^{129}I 放射能の捕集部全体に捕集される ^{129}I 放射能に対する比 (A_C/A_T) は概ね >0.7 であった。しかし、捕集放射能が少なかった試験 No.5 では、極端なケースであると考えられるが、 A_C/A_T は 0.48 と低かった。この極端なケースも考慮して、 p 値の取りうる範囲を $0 \sim 0.6$ と仮定すると、 R_{net} と、それに対応する捕集部における ^{129}I 放射能の範囲は、図 7.2 のように求められる。このように、 E_F と E_C をそれぞれ個別に評価できたことにより、NaI 検出器の計数率から ^{129}I 捕集量の推定値の幅を示すことができた。この推定式(7-5)と、式(2-2)及び(2-4)によって、1 週間のバッチサンプリング開始から任意の時点までの排気中 ^{129}I の平均濃度と総放出量を推定できる。

(2) Ge 検出器を用いた ^{129}I 連続監視システムの実現可能性

排気中 ^{129}I を捕集中に、捕集材からの放射線を NaI 検出器で連続的に測定する方法が、 ^{129}I の異常放出の迅速検出や、任意の時点までの放出量の推定に有用であることを示してきたが、この方法では、 ^{129}I からの放射線の選択的な測定に課題が残る。図 7.3 に、一例として、再処理施設のせん断・溶解運転時に得られた、このシステムにおける R_{net} 値と、同じ排気筒空気を対象としたクリプトン (^{85}Kr) モニターにおける指示値の変動を示す。 R_{net} 値は、せん断・溶解運転時に、排気筒内空気に多量に存在する ^{85}Kr からの放射線の影響を受けて変動していることがわかる。この ^{129}I 連続監視システムは、 ^{85}Kr が混在する排気に対しては有効ではない、すなわち、使用済燃料再処理の主要な工程であるせん断・溶解工程からの気体廃棄物中 ^{129}I の連続監視には適さないが、例えば、低レベル・高レベル液体廃棄物貯蔵施設や、焼却施設、ガラス固化処理施設などからの ^{85}Kr の混在がない気体廃棄物に対しては有効であると考えられる。図 7.3 には、同時期に行った Ge 検出器を用いた連続監視システムの試験結果も示している。Ge 検出器を用いたシステムは、混在する ^{85}Kr の影響を受けることなく、捕集材に捕集された ^{129}I 放射能の時間的増加を捉えている。本試験結果は、NaI 検出器に代わって Ge 検出器を用いることで、 ^{85}Kr による干渉を取り除いた、排気中 ^{129}I の連続監視システムの実現可能性を示している。

7.4 まとめ

バッチサンプリング期間中に、捕集材に捕集された ^{129}I からの放射線を、NaI 検出器によって連続的に測定することにより、対象とする放射性気体廃棄物中の ^{129}I 濃度の急激な増加や、放出量の増加を迅速に検出し、その放出量を推定できることを示した。

しかし、NaI 検出器に基づくシステムでは、対象とする排気試料に混在する ^{85}Kr からの放射線の影響を大きく受けるために、その適用範囲が限定される。この問題点を克服すべく、NaI 検出器に代わり、エネルギー分解能の高い高純度 Ge 検出器を使用したシステムを試験し、 ^{85}Kr が混在する放射性気体廃棄物に対しても有効な ^{129}I 連続監視システムが実現可能であることを示した。

本システム及びそれに基づく ^{129}I リアルタイムモニタリング手法は、 ^{129}I の放出管理技術の向上と、再処理施設の円滑な運転に貢献できる。

8. 結言

東海再処理施設における排気中ヨウ素のモニタリング手法について概説するとともに、その基礎となる試験・調査結果及び関連する検討事項についてまとめた。得られた知見は以下のとおりである。

- (1) 東海再処理施設から放出される気体廃棄物の 1 週間にわたるヨウ素サンプリングについて、 $40\sim 70\text{ l min}^{-1}$ のサンプリング流量率範囲において、CP-20 と CHC-50 を組合せたヨウ素捕集方法による捕集効率、サンプリング流量率に依存せずに 90%以上であることを確認した。一方で、 70 l min^{-1} の高流量率によるサンプリングは、ヨウ素捕集材による圧力損失のために、サンプリングポンプやブロワに負担をかけることになる。したがって、最終的な濃度や放出評価に求められる検出下限値及び、今回の試験結果を考慮して、さらに適切かつ効率的なサンプリング条件を検討していく必要がある。
- (2) 東海再処理施設における排気中ヨウ素のサンプリングに使用した CHC-50 については、CHC-50 の空気流入側及び流出側で測定されたヨウ素放射能を算術平均することにより、CHC-50 に捕集されたヨウ素放射能を見積もることができることを示した。
- (3) 現在、東海再処理施設では、「発電用軽水型原子炉施設における放出放射性物質の測定に関する指針」に基づく ^{131}I 放射能の補正法を採用している。これは、サンプリング期間中に一定の割合で ^{131}I が捕集材に捕集された場合を想定したものである。しかし、この方法では、サンプリング初期に ^{131}I が大量に捕集された場合には、捕集放射能を過小評価することになる。したがって、最も安全側の評価は、サンプリング開始時に全量捕集されたと仮定して補正評価する方法であることを示した。 ^{131}I が、サンプリング開始初期に相対的に多く放出される可能性がある場合には、本報告で示した ^{131}I 放射能の補正評価法を適用する必要がある。
- (4) 大流量・長期間サンプリングに対するヨウ素捕集材の ^{129}I 捕集性能の経時的变化や、各種のサンプリング環境の捕集性能への影響についての現場試験を実施した。試験結果からは、捕集材の捕集性能に支配的に影響を及ぼす要因を特定することは困難であった。捕集放射能や有機ヨウ素・無機ヨウ素の混在比、その他の混在気体の影響等が複雑に影響を及ぼしていること、さらには、放出率の時間的变化がヨウ素捕集材の捕集効率に影響を及ぼしうるものが容易に想定できることから、どの要因がヨウ素捕集性能の低下に対して支配的な影響を与えるかを明らかにするために、さらに個別的な実験的検討が必要である。
- (5) バッチサンプリング期間中に、捕集材に捕集された ^{129}I からの放射線を、NaI 検出器によって連続的に測定することにより、対象とする放射性気体廃棄物中の ^{129}I 濃度の急激な増加や、放出量の増加を迅速に検出し、その放出量を推定する手法を示した。さらに、NaI 検出器に代わり Ge 検出器を用いることにより、 ^{85}Kr ガス混在下においても、排気中 ^{129}I のリアルタイムモニタリングが実現可能であることを示した。

本報告で示した各種試験・検討結果は、現存の排気中ヨウ素モニタリング手法の妥当性を明らかにした。また、将来のより高信頼性・高効率のモニタリング手法の確立に資するものである。

参考文献

- (1) 佐伯 誠道: 環境放射能 - 挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価 -, ソフトサイエンス社, (1984).
- (2) UNSCEAR: Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York, (2000).
- (3) Shinohara, K.: "Measurement and behavior of ^{14}C and ^{129}I in the environment", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 260, p. 265-271, (2004).
- (4) Shinohara, K.: "Assessment of radiological effects on the regional environment due to the operation of the Tokai Reprocessing Plant", J. Environ. Radioact., Vol. 72, p. 299-322, (2004).
- (5) Koarashi, J., Mikami, S., Nakada, A., Akiyama, K., Kobayashi, H., Fujita, H., Takeishi, M.: "Monitoring methodologies and chronology of radioactive airborne releases from Tokai reprocessing plant", J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 5, p. 462-465, (2008).
- (6) Parry, S. J.: "Determination of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in environmental samples using neutron activation analysis", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 248, p. 137-141, (2001).
- (7) López-Gutiérrez, J. M., García-León, M., Schnabel, Ch., Suter, M., Synal, H. -A., Szidat, S.: "Wet and dry deposition of ^{129}I in Seville (Spain) measured by accelerator mass spectrometry", J. Environ. Radioact., Vol. 55, p. 269-282, (2001).
- (8) Collins, C. D., Gravett, A. E. and Bell, J. N. B.: "The deposition and translocation of methyl iodine by crops", Health Phys., Vol. 87, p. 512-516, (2004).
- (9) Handl, J., Pfau, A. and Huth, F. W.: "Measurements of ^{129}I in human and bovine thyroids in Europe - Transfer of ^{129}I into the food chain -", Health Phys., Vol. 58, p. 609-618, (1990).
- (10) Van Middlesworth, L.: " ^{129}I and ^{137}Cs fission products in thyroids of animals, 1984-1991", Health Phys., Vol. 64, p. 52-58, (1993).
- (11) Van Middlesworth, L. and Handl, J.: " ^{129}I , ^{131}I and ^{127}I in animal thyroids after the Chernobyl nuclear accident", Health Phys., Vol. 73, p. 647-650, (1997).
- (12) Naritomi, M., Yoshida, Y. and Fukuda, S.: "Method for improving the collecting performance of iodine samplers under high relative humidity", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 10, p. 292-300, (1973).
- (13) 日本規格協会: 放射性よう素サンプラ, Z 4336, JIS ハンドブック 放射線 (能), 39, (2004).
- (14) 放射性ヨウ素安全専門委員会: 放射性ヨウ素の環境安全, 財団法人 原子力安全研究協会, (1972).
- (15) 成富 満夫, 福田 整司: "放射性浮遊ヨウ素サンプリングにおける各種添着活性炭カートリッジ及びろ紙の捕集性能", 日本原子力学会誌, Vol. 14, p. 531-539, (1972).
- (16) 成富 満夫, 福田 整司: "放射性浮遊ヨウ素に対する活性炭含浸ろ紙の捕集特性", 日本原子力学会誌, Vol. 13, p. 174-181, (1971).
- (17) 吉田 芳和, 成富 満夫: "放射性ヨウ素のモニタリング", 保健物理, Vol. 9, p. 233-241, (1974).
- (18) Haller, W. A. and Perkins, R. W.: "Organic iodine-131 compounds released from a nuclear fuel chemical processing plant", Health Phys., Vol. 13, p. 733-738, (1967).
- (19) Cline, J. E.: "Retention of noble gases by silver zeolite iodine samples", Health Phys., Vol. 40, p. 71-73, (1981).
- (20) Koarashi, J., Akiyama, K., Asano, T., Kobayashi, H.: "A practical method for monitoring ^{129}I concentration in airborne release", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 267, p. 155-159, (2006).
- (21) 高崎 浩司, 石松 信彦, 星 勉: 私信, (1995).

- (22) 小嵐淳, 横田友和, 小沢友康, 井坂圭輔, 三上智, 秋山聖光, 小林博英, 水谷朋子, 檜山佳典: “排気中トリチウムモニタリング手法の検証 (再評価) と高度化への提言”, JNC TN8410 2005-004, (2005).
- (23) 小嵐淳, 井坂圭輔, 横田友和, 小沢友康, 三上智, 秋山聖光, 小林博英, 水谷朋子, 檜山佳典: “排気中 ^{14}C モニタリング手法の検証 (再評価) と高度化への提言”, JNC TN8410 2005-005, (2005).
- (24) Sakurai, T., Takahashi, A., Ye, M., Kihara, T., Fujine, S.: “Trapping and measuring radioiodine (Iodine -129) in cartridge filters”, J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 34, p. 211-216, (1997).
- (25) 原子力委員会: 発電用軽水型原子炉施設における放出放射性物質の測定に関する指針, (1978).
- (26) Cho, W. J., Chang, S. H.: “Study on the Removal Efficiency of TEDA Impregnated Charcoal Bed for Methyl iodide under Dry Condition”, J. Korean Nucl. Soc., Vol. 16, p. 80-88, (1984).
- (27) Koarashi, J., Mikami, S., Akiyama, K., Takeishi, M.: “Rapid detection and estimation of an unexpected atmospheric release of ^{129}I ”, Jpn. J. Health Phys., Vol. 43, p. 366-370, (2008).
- (28) Mikami, S., Koarashi, J., Miyauchi, T., Akiyama, K., Kobayashi, H.: “Airborne radioiodine monitoring at Tokai reprocessing plant”, Proc. 2nd Asian and Oceanic IRPA Cong. Radiological Protection, (2006).
- (29) Knoll, G.: Radiation Detection and Measurement, Third edition, New York, (2000).

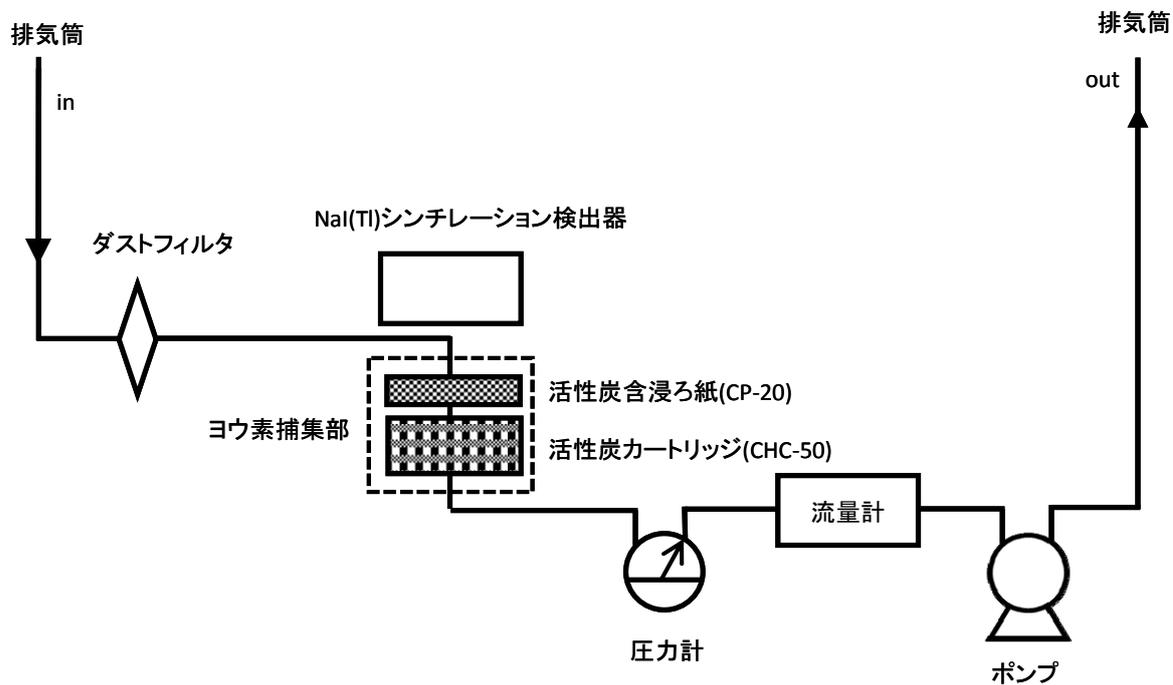
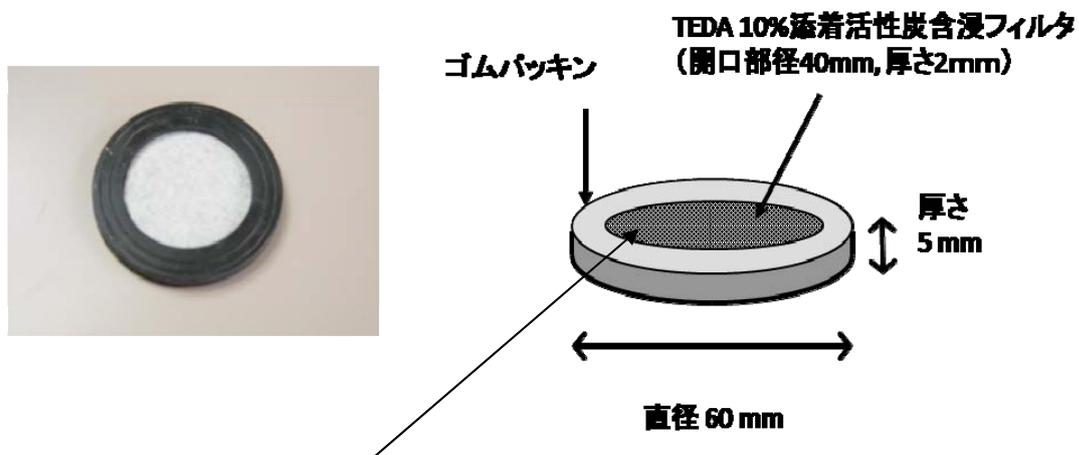


図 2.1 東海再処理施設で使用しているヨウ素サンプラの捕集系統概略図



基材ろ紙 (セルローズ・アスベスト) に粉末ヤシガラ活性炭 (活性炭平均粒径 75~100 μm) を充填

図 2.2 活性炭含浸ろ紙 (CP-20)

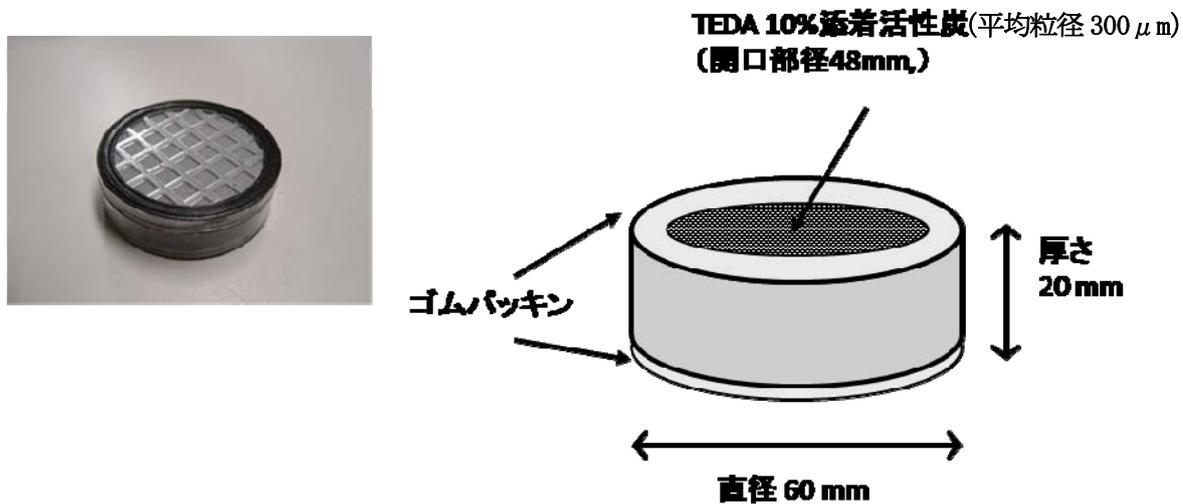


図 2.3 活性炭カートリッジ (CHC-50)

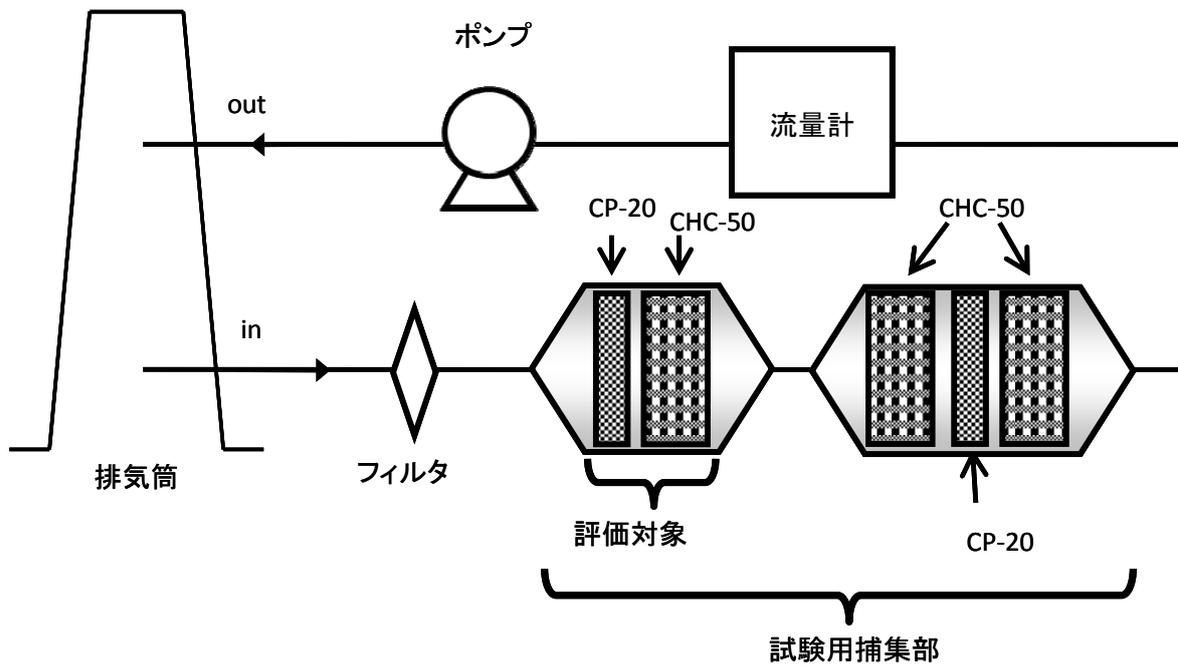
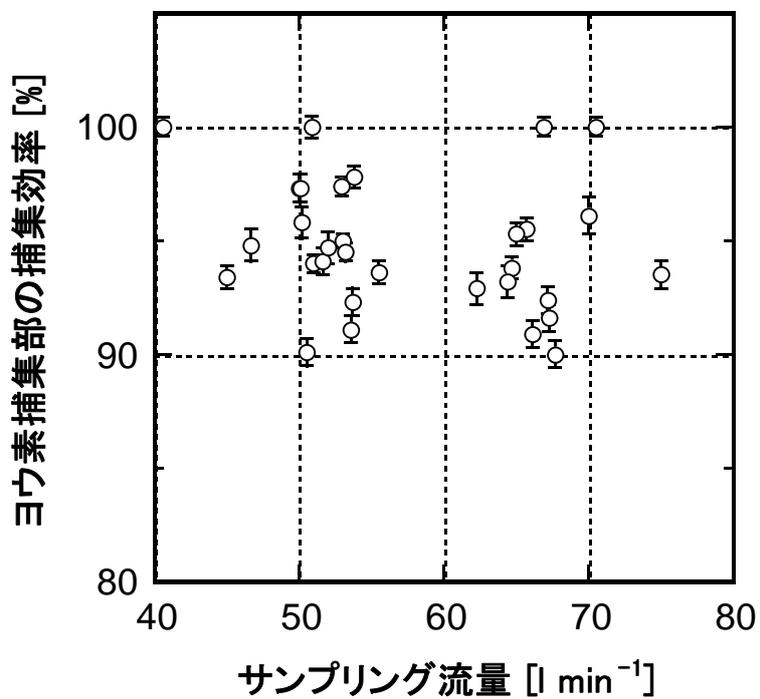


図 3.1 ヨウ素捕集効率のサンプリング流量依存性に関する試験概略図



(エラーは測定誤差(1σ)に基づく誤差の伝搬より評価)

図 3.2 ヨウ素捕集効率のサンプリング流量依存性⁽²⁰⁾

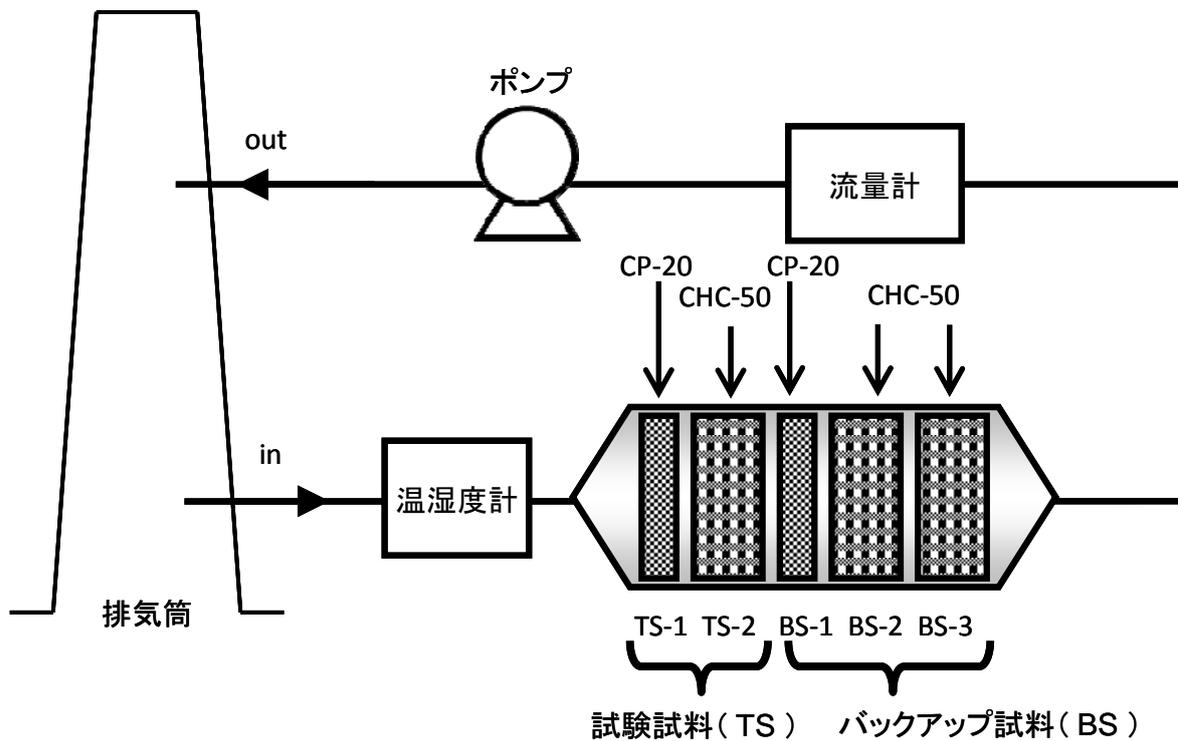


図 6.1 ヨウ素捕集材の性能試験の概略図

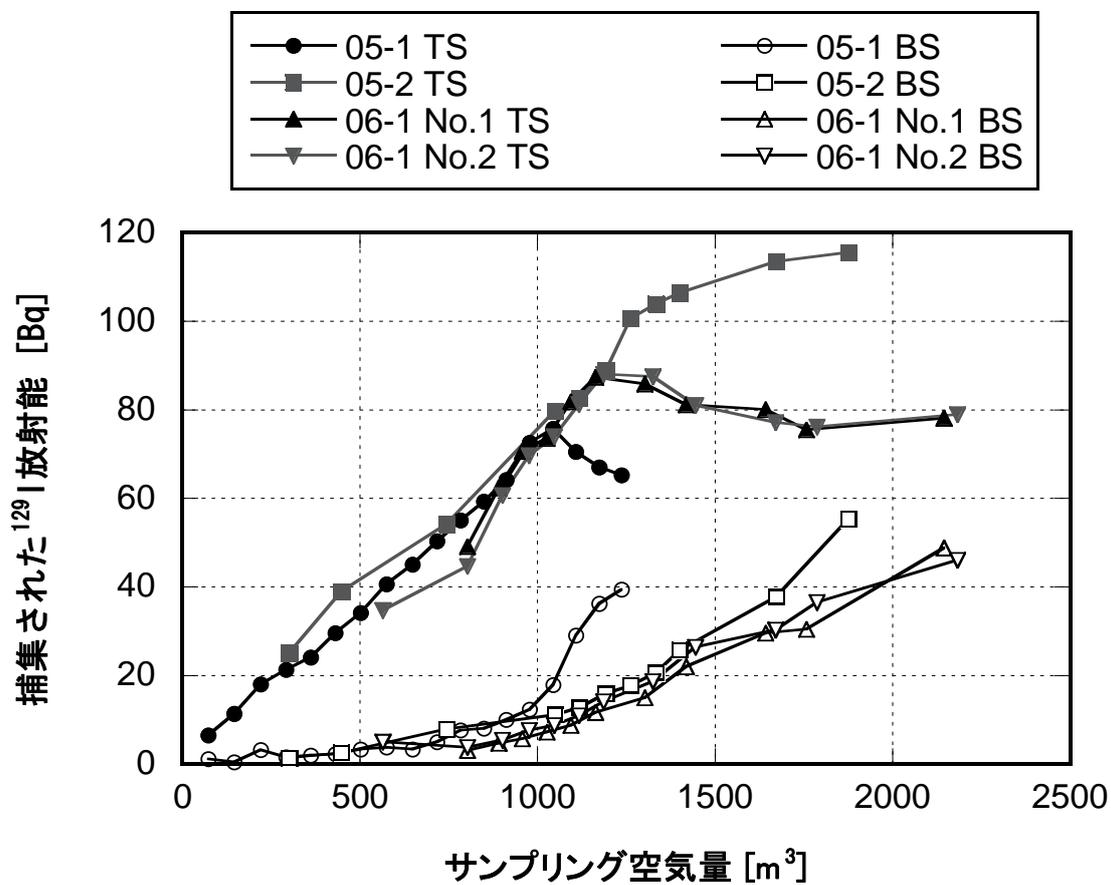


図 6.2 サンプルング空気量と、試験試料 (TS) 及びバックアップ試料 (BS) に捕集された放射能の関係

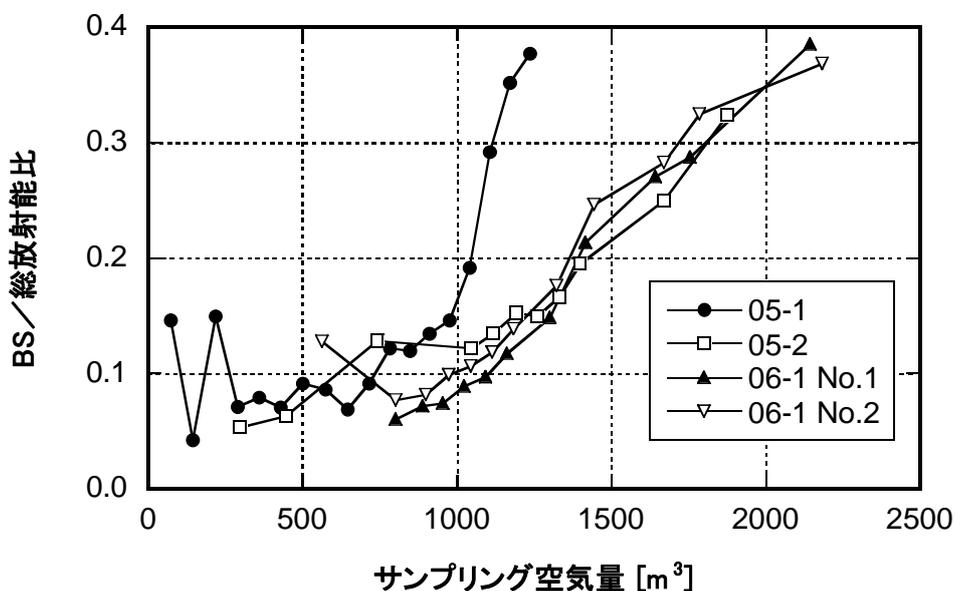


図 6.3 バックアップ試料 (BS) に捕集された ^{129}I 放射能の総放射能に対する比と、サンプリング空気量の関係

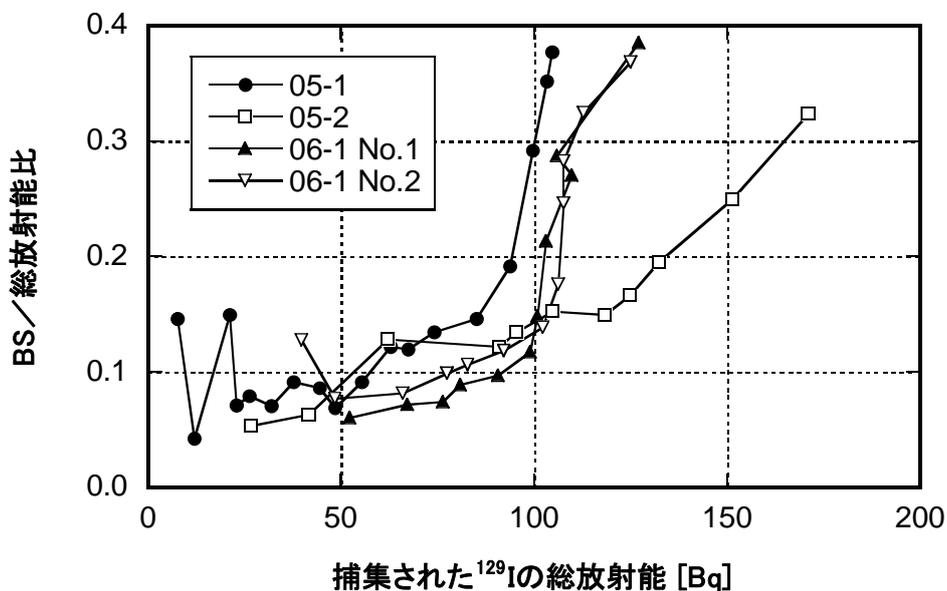


図 6.4 バックアップ試料 (BS) に捕集された ^{129}I 放射能の総放射能に対する比と、 ^{129}I 総放射能の関係

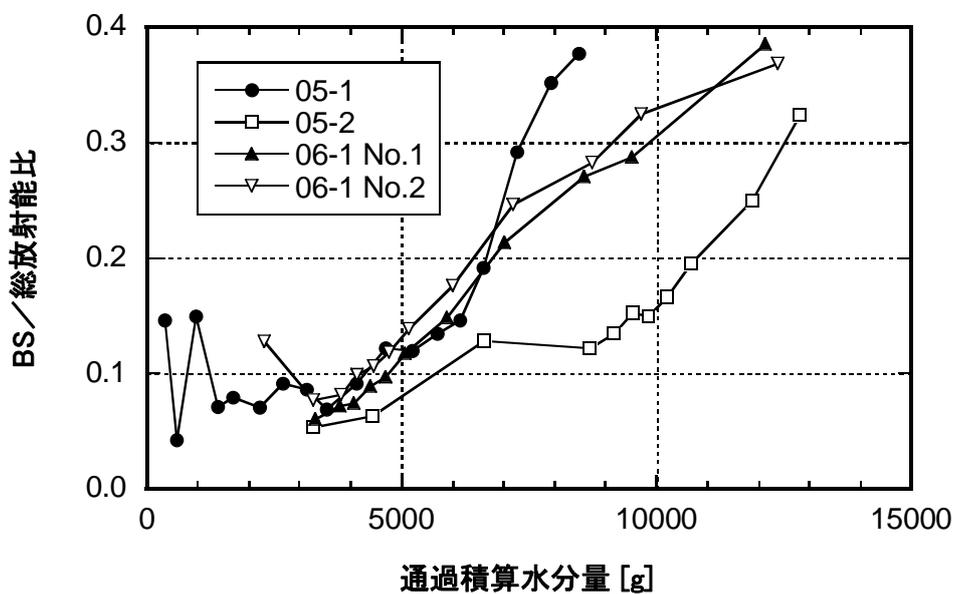


図 6.5 バックアップ試料 (BS) に捕集された ^{129}I 放射能の総放射能に対する比と、通過積算水分量の関係

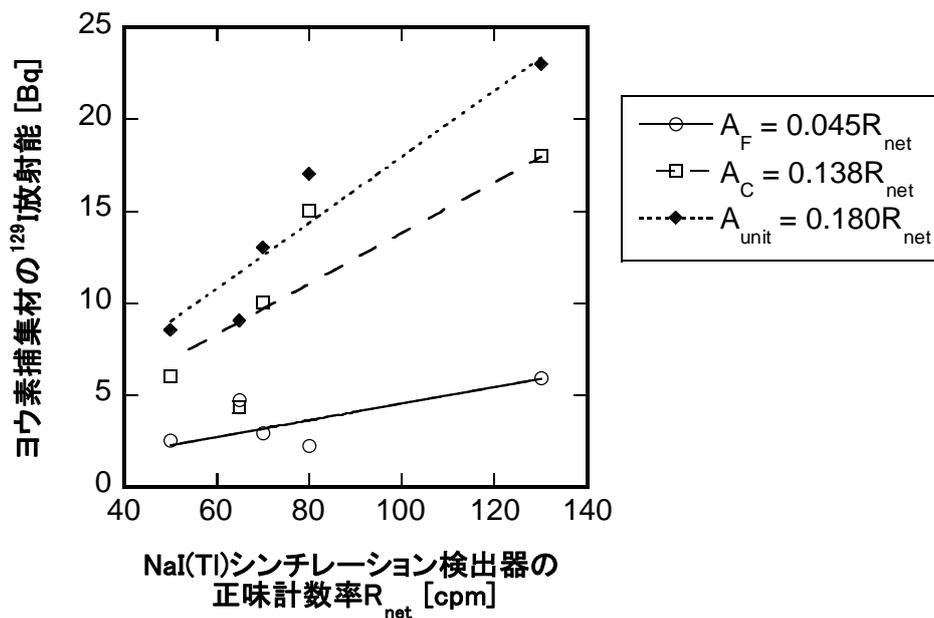
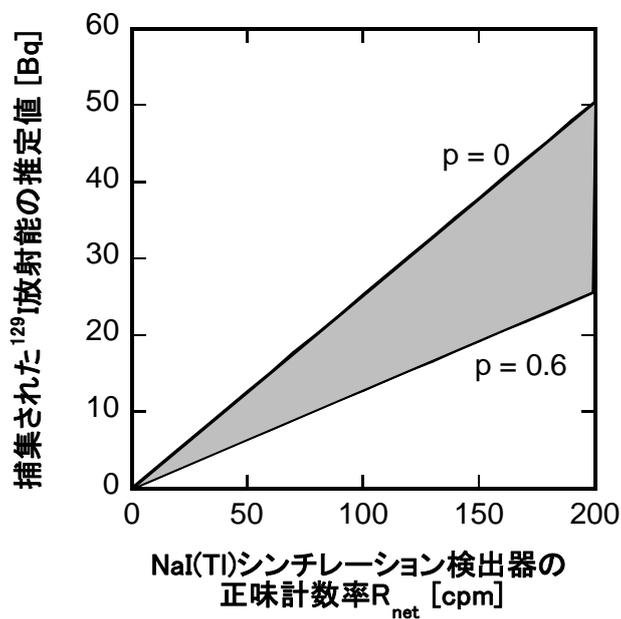
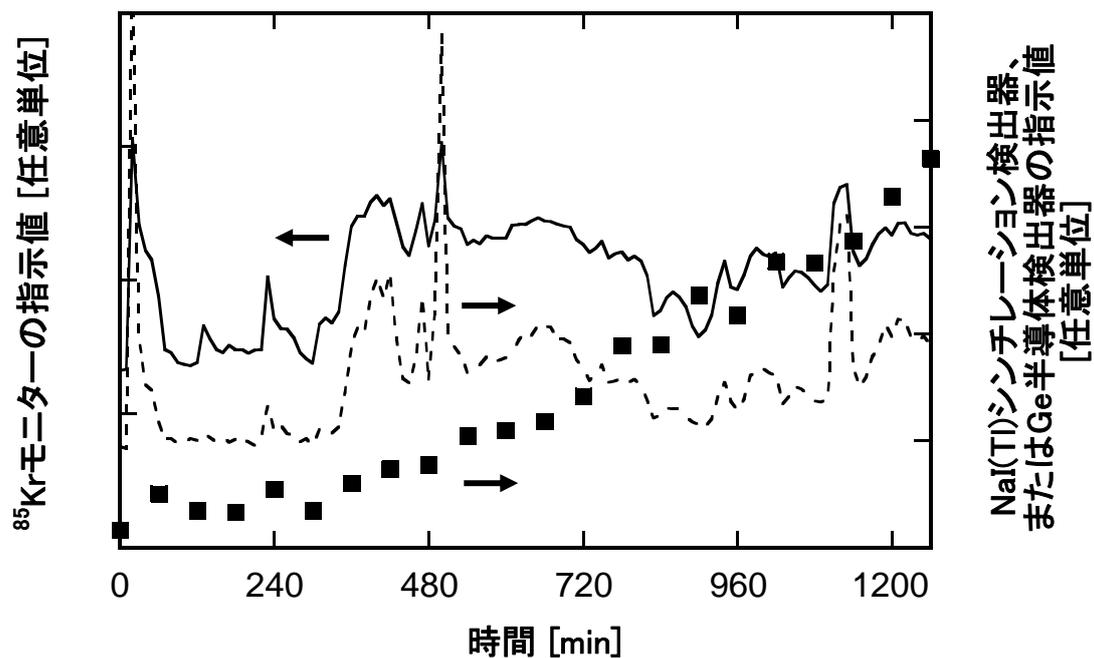


図 7.1 NaI 検出器による正味計数率と捕集材に捕集された ^{129}I 放射能の関係⁽²⁷⁾



(パラメータ p は、CP-20 で捕集された ^{129}I 放射能の捕集部全体で捕集された ^{129}I 放射能の比である。)

図 7.2 NaI 検出器の正味計数率から推定されるヨウ素捕集部に捕集された ^{129}I 放射能範囲⁽²⁷⁾



(実線： ^{85}Kr モニター、破線：NaI 検出器、四角：Ge 検出器)

図 7.3 再処理施設のせん断・溶解運転時に得られた NaI 検出器、Ge 検出器及び、 ^{85}Kr モニターの指示値の変動例⁽²⁷⁾

表 4.1 活性炭カートリッジ (CHC-50) に対する放射能測定結果⁽²⁰⁾

試料 No.	捕集後 (均質化前)				均質化後				均質化前後の平均値の比
	流入側 (Bq)	流出側 (Bq)	平均値 (Bq)	流入側/流出側	流入側 (Bq)	流出側 (Bq)	平均値 (Bq)	流入側/流出側	
1	58.5	37.0	47.8	1.58	47.4	45.5	46.5	1.04	1.03
2	52.9	33.7	43.3	1.57	45.1	43.7	44.4	1.03	0.98
3	15.2	8.9	12.1	1.71	13.0	13.0	13.0	1.00	0.93

表 6.1 ¹²⁹I サンプルング期間中の温度・相対湿度の変動範囲

	サンプルング期間	温度 (°C)	相対湿度 (%)
05-1	キヤンペーン 2005.3.9 ~ 2005.5.26	26 ~ 30	13 ~ 34
05-2	キヤンペーン 2005.10.17 ~ 2005.12.9	19 ~ 30	17 ~ 40
06-1	キヤンペーン No.1・No.2 2006.2.9 ~ 2006.4.17	22 ~ 28	8 ~ 46

表 6.2 ¹²⁹I サンプルング期間とサンプルング日数

	サンプルング期間	サンプルング日数
05-1	キヤンペーン 2005.3.9 ~ 2005.5.26	18
05-2	キヤンペーン 2005.10.17 ~ 2005.12.9	26
06-1	キヤンペーン No.1 2006.2.9 ~ 2006.4.17	33
06-1	キヤンペーン No.2 2006.2.9 ~ 2006.4.17	32

表 7.1 NaI 検出器を用いた連続監視システムの試験結果⁽²⁷⁾

試験 No.	サンプリング終了時の NaI 検出器計数率 [cpm] ^a	捕集材の放射能 [Bq]					放射能比	
		CP-20 (A _F)	CHC-50 流入側 (A _{Cr})	CHC-50 流出側 (A _{Cb})	CHC-50 (A _C)	CHC-50 ^b 全捕集放射能 ^c (A _T)	A _{Cr} /A _{Cb}	A _C /A _T
1	140	5.9	20	15	18	23	1.33	0.78
2	80	2.9	15	4.9	10	13	3.06	0.77
3	90	2.2	19	10	15	17	1.90	0.88
4	60	2.5	7.3	4.6	6.0	8.5	1.59	0.71
5	75	4.7	6.1	2.4	4.3	9.0	2.54	0.48

^aNaI 検出器による適用現場でのバックグラウンド計数率は 10 cpm 程度である。

^bCHC-50 の放射能は、サンプリング空気の流入側と流出側で測定された放射能の平均値として評価できる⁽²⁰⁾。

^c全放射能は CP-20 と CHC-50 の放射能の和である。

国際単位系 (SI)

表1. SI基本単位

基本量	SI基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
放射線量	ルクス	lx	lm/m ²	m ² cd
放射線種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についての、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI組立単位		
	名称	記号	SI基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ¹ kg s ⁻²
電荷密度	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ³ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値	
		SI単位による値	SI単位による値
分	min	1 min=60s	
時	h	1 h=60 min=3600 s	
日	d	1 d=24 h=86 400 s	
度	°	1°=(π/180) rad	
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad	
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad	
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²	
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³	
トン	t	1 t=10 ³ kg	

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm ² =(10 ⁻¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベベル	B	
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm ⁻² =10 ⁻⁴ cd m ⁻²
ファ	ph	1 ph=1 cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal=1 cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≐ (10 ³ /4π) A m ⁻¹

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「≐」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 f=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1メートル系カラット=200 mg=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

