

再処理施設における排気中放射性よう素(^{129}I)
連続監視方法の開発

1995年3月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

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)
2001

再処理施設における排気中放射性よう素 (^{129}I) 連続監視方法の開発

実施責任者 石田順一郎*

要 旨

再処理施設から気体状放射性物質として放出される放射性よう素 (^{129}I) の連続モニタリング時には、使用済燃料のせん断・溶解時に放出される ^{85}Kr や自然界のRn等娘核種の存在が測定障害となっていたため、これまで放射性よう素の測定において迅速性、測定精度、装置のハンドリング等に重点をおいて各種手法を検討してきた

この度、NaI(Tl) シンチレーション検出器及びGe半導体検出器を用いた連続監視装置を開発した。前者は、既に、再処理施設の放射線管理体制の中に組み込まれ、迅速な監視評価に用いられており、また、後者については、現場での基礎特性試験を終了し実証装置の製作段階にある。

両者のシステム概要を、開発段階における各種特性試験結果も含め、

第I編 NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いた放射性よう素連続監視装置の開発

第II編 Ge半導体検出器を用いた放射性よう素連続監視装置の開発

として取りまとめ報告する。

これらの排気監視装置が、今後の再処理施設の安全・安定運転に寄与していくことを期待したい。

*安全管理部放射線管理第二課

目 次

第 I 編 NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いた放射性よう素連続監視装置の開発

第 II 編 Ge半導体検出器を用いた放射性よう素連続監視装置の開発

付録 付録A 排気モニタにおける ^{129}I の測定の問題点

付録B ガウス消去法 (例)

第 I 編

NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いた放射性よう素連続監視装置の開発

NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いた放射性よう素連続監視装置の開発

堀内 信治*、小倉 健***、石松 信彦**、
星 勉**

要 旨

放射性よう素は、再処理施設から大気中に放出される主要な放射性核種の一つである。放射性よう素の放出量は1週間連続でサンプリングした試料を回収し、それを別途測定することにより評価している。また、放射性よう素の放出状況を監視するためサンプリング中の試料をNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた放射性よう素モニタで連続的に監視している。

しかし、従来の放射性よう素モニタでは施設の運転（使用済燃料のせん断・溶解等）に伴って放出される ^{85}Kr の影響で連続監視が一時的に困難となるとともに、施設の運転とは関係なく存在する自然放射性核種である Rn-Tn娘核種に影響を受ける。このため、 ^{85}Kr を追い出したり、Rn-Tn娘核種の影響を減算する作業をしなければならなかった。

そこで、連続的にサンプリングしながら、煩雑な作業も必要とせず、 ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の影響を最小限に抑える放射性よう素連続監視方法を開発した。

測定はNaI(Tl)シンチレーション検出器を用い、波高信号にスムージング処理を施した後、スペクトル解析をする方法を選択した。

本開発では、下記の結果を得た。

- ① 本測定装置において、1時間測定で検出できる放射性よう素の最小値は、 ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響が最大の場合は約 $5.5 \times 10^{-4} \text{GBq}$ ($15 \mu\text{Ci}$ (放出量換算))であった。
- ② 本測定装置において1時間測定を実施した評価値と、試料を回収後半導体検出器(Ge)を用いた精密測定値との比較では測定誤差はほぼ20%以内の範囲であった。
- ③ 本測定方法はパソコンによる連続運転では特筆する不具合もなく、溶解・せん断等の ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響を最小限に抑えて測定でき、連続モニタとして十分運用できる。

なお、本報告書は1990年のQC活動のテーマとして開発されたものをまとめたものである。

また、1990年度下期SSK発表会で最優秀賞、1992年度事業団創意工夫賞を受賞している。

* 科学技術庁 原子力安全局に出向

** 検査開発 (株)

*** 現在、勝田市役所

目 次

要 旨	1
目 次	2
1. はじめに	3
2. シングルチャンネルアナライザを用いた放射性よう素連続測定法	4
2.1 測定原理	4
2.2 測定結果	6
3. マルチチャンネルアナライザを用いた放射性よう素連続測定法	8
3.1 測定原理	8
3.2 測定結果	9
4. まとめ	10
5. 今後の展開	11
6. 参考文献	12

図 表 目 次

図2.1 3チャンネル測定法(1)の測定範囲	13
図2.2 3チャンネル測定法(1)の検出限界	13
図2.3 3チャンネル測定法(1)の機器構成図	14
図2.4 捕集部断面図	14
図2.5 3チャンネル測定法(1)の測定結果	15
図2.6 ⁸⁵ Kr濃度によるスペクトルの変化	15
図2.7 3チャンネル測定法(2)の各エネルギー測定範囲	16
図2.8 3チャンネル測定法(2)の測定結果1	16
図2.9 3チャンネル測定法(2)の測定結果2	17
図2.10 3チャンネル測定法(2)とページ法の比較	17
図3.1 NaI(Tl)シンチレーション検出器で実測したスペクトル	18
図3.2 平滑化処理後のスペクトル例	18
図3.3 スペクトル解析法の機器構成図	19
図3.4 スペクトル解析法の処理フロー図	19
図3.5 スペクトル解析法と3チャンネル測定法(2)の測定値1	20
図3.6 スペクトル解析法と3チャンネル測定法(2)の測定値2	20
表2.1 3チャンネル測定法(2)の各測定範囲の計数と影響係数	5
表2.2 3チャンネル測定法(2)の測定結果2	6
表3.1 スペクトル解析法の測定結果	9

1. はじめに

再処理施設の排気中の放射性よう素（主として ^{129}I ）の測定及び監視は、オフガスの一部を活性炭等の吸着材に連続的にサンプリングさせ、吸着材に吸着した ^{129}I の放射線を排気モニタ（NaI(Tl)シンチレーション検出器）で連続測定監視するとともに、サンプリング後回収した吸着材を、半導体検出器等で精密測定を行い評価している。

排気中の ^{129}I の連続測定方法は、排気モニタ（NaI(Tl)シンチレーション検出器）のエネルギー信号のうち ^{129}I の放射線のエネルギー範囲（UL, LL）を選定して測定している。しかし、このエネルギー範囲には、再処理施設の運転中（使用済燃料のせん断・溶解等）に、排気中に多量に混在する ^{85}Kr から放出される放射線も同時に測定される。さらに、再処理施設の運転とは関係なく存在する自然放射性核種（Rn-Tn娘核種）の放射線もこの範囲に混入（付録Aに排気モニタにおける ^{129}I の測定の問題点を添付する）する。

これまで、排気中に ^{85}Kr が混在している間の ^{129}I の測定は、一時的に吸着材への排気のサンプリングを停止し ^{85}Kr を追い出した後に測定する方法（以後パーズ法）を、また、Rn-Tn娘核種の影響に関しては、排気モニタの α ダスト濃度からRn-Tn娘核種の影響を減算する方法等を考案している。

通常、再処理施設からの ^{129}I の放出はフィルタを介しているため、急激な放出率の変化はなく、上記の方法でも監視上の問題はない。しかし、評価方法が煩雑であるために、施設の不具合等で放射性よう素の放出率が変化した場合に、より迅速で有効な情報を工程側へ提供するとこの観点からは改善の余地が残されていた。

そこで、これらの課題を解決することを目的として連続測定法の開発を実施した。

なお、本開発において製作したシステムは、1991年度から実運用を開始し、 ^{129}I の放出管理は有効に機能している。

2. シングルチャンネルアナライザを用いた放射性用よう素連続測定方法

2.1 測定原理

シングルチャンネルアナライザを用いた放射性用よう素連続測定法(以後3チャンネル測定法)は、NaI(Tl)シンチレーション検出器と3台のシングルチャンネルアナライザを用いて、 ^{129}I 、 ^{85}Kr 、Rn-Tn娘核種をそれぞれ混在した状態で計数し、連立方程式を解いて ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の計数(以後妨害計数)を除去する方法である。

3チャンネル測定法は、妨害計数を計数するシングルチャンネルアナライザの測定範囲を二通り実施したので、3チャンネル測定法(1)、3チャンネル測定法(2)として紹介する。

3チャンネル測定法(1)は、妨害計数を計数するシングルチャンネルアナライザの測定範囲を、 ^{129}I の測定範囲の両側に挟むように設定し妨害計数を除去する。図2.1に3チャンネル測定法(1)のシングルチャンネルアナライザの測定範囲を示す。

放射性用よう素モニタで測定される ^{85}Kr の計数は最大で約二千cpm程度であり、 ^{129}I 、Rn-Tn娘核種及びBGは数十～数百cpmと一桁ないしは二桁低いため3チャンネル測定法(1)での ^{129}I の検出限界は、妨害計数を通常の放射能測定のBGとみなすと、放射能測定装置(スケーラ)の検出限界計数率の式⁽¹⁾が応用できる。

上記式で求めた3チャンネル測定法(1)の検出限界放出量を図2.2に示す。3チャンネル測定法(1)で1時間測定すると、妨害計数のない状態での5分間測定と同程度の検出下限値が得られる。

図2.3に3チャンネル測定法(1)の機器構成図を示す。検出器で得られた信号をそれぞれ波高分析器で3チャンネルに弁別しカウンタで計数する。

得られた計数を次式に代入することにより妨害計数を除去し、 ^{129}I の計数を得る。

$$^{129}\text{Iの計数} = \text{CH2} - (\text{CH1} + \text{CH3}) / 2 \quad \text{①}$$

捕集部は通気の空間の大きさによって ^{85}Kr の影響が大きく左右されるため、通気の空間を最小限(約 100cm^3)に小さくした。図2.4に捕集部の断面図を示す。

3チャンネル測定法(1)による測定結果(90-1キャンペーン)を図2.5に示す。6日間測定した中には、非常によく ^{129}I を評価している場合もあるが、妨害計数を除去しきれない場合も見られる。原因としては、 ^{85}Kr の濃度によって低エネルギー側(CH1)の計数が大きく変化することが考えられる。

図2.6に ^{85}Kr 濃度によって変化する ^{85}Kr のスペクトルを示す。濃度が高くなると低エネルギー側(CH1)の計数が他のチャンネルより相対的に増加し ^{129}I の評価値が変動する。

そこで3チャンネル測定法(2)として、妨害計数の測定範囲を、 ^{85}Kr のスペクトル変形の少ない高エネルギー側に変更した。図2.7に3チャンネル測定法(2)のシングルチャンネルアナライザの測定範囲を示す。CH1'は ^{129}I 、CH2'では ^{85}Kr 、CH3'ではRn-Tn娘核種を主に測定する対象とした。各チャンネルのエネルギーバンドは、CH1'は約22~38keV、CH2'は約47~60keV、CH3'は約67~85keVである。それぞれの核種は、上記の測定範囲で計数されるが、他の測定範囲にも計数される。その計数の比はほぼ一定で、主要核種の計数を1とする比率(以下影響計数)で表すことができる。

表2.1に各測定範囲の影響係数を示す(括弧内は1時間の計数例)。

表2.1 3チャンネル測定法(2)の各測定範囲の計数と影響係数

測定範囲 核種	CH1' 影響係数 (計数 (cph))	CH2' 影響係数 (計数 (cph))	CH3' 影響係数 (計数 (cph))
^{129}I (線源)	1 (26096.1)	0.0017 (387.4)	0.00046 (735.3)
^{85}Kr (線源)	1.735 (149485.0)	1 (86221.2)	1.241 (107297.2)
Rn-Tn (試料)	0.219 (3228.2)	0.194 (2771.4)	1 (13236.5)
BG	(487.9)	(343.9)	(723.5)

表 2. 1 の影響係数を用いて各測定範囲の計数を連立一次方程式で表すと次式となる。

$$aX + dY + gZ + BG1 = CH1' \text{ の計数} \quad \textcircled{2}$$

$$bX + eY + hZ + BG2 = CH2' \text{ の計数} \quad \textcircled{3}$$

$$cX + fY + iZ + BG3 = CH3' \text{ の計数} \quad \textcircled{4}$$

$$\left(\begin{array}{l} x \quad : \text{ }^{129}\text{Iの計数} \\ y \quad : \text{ }^{85}\text{Krの計数} \\ z \quad : \text{ Rn-Tnの計数} \\ a \sim i : \text{ 影響係数} \end{array} \right)$$

上記式を三元連立方程式としてガウス消去法⁽²⁾を用いて解き（計算式例を付録Bに別添する）、各測定範囲の計数を代入することで、¹²⁹Iの計数が求まる。

2. 2 測定結果

図 2. 8 に 3 チャンネル測定法(2)を用いて測定した、1 日毎 7 日間 (90-1 キャンペーン) の ¹²⁹I の測定結果 1 を示す。3 チャンネル測定法(2)を用いて測定した値は、試料回収後の半導体検出器 (Ge) を用いた精密測定値と同程度であり、妨害計数を除去できている。

図 2. 9 及び表 2. 2 に上記測定期間を含む約 1 ケ月間の 3 チャンネル測定法(2)の測定値と半導体検出器 (Ge) を用いた精密測定値を比較した測定結果 2 を示す。また参考として試料回収 1 日後の NaI (TI) シンチレーション検出器による 5 分測定 (以後試料回収 1 日後測定) の測定値を同様に示す。

表 2. 2 3 チャンネル測定法(2)の測定結果 2

	3 チャンネル測定法(2)	試料回収 1 日後測定
最大誤差 %	28.6	82.5
標準偏差	15.7	17.7

3チャンネル測定法(2)は、誤差が±30%以内に入っており、試料回収1日後測定と比較すると誤差のばらつきも小さい。 ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の影響をある程度除去できている。試料回収1日後測定は、Rn-Tn娘核種が減衰していないため、過大評価となっている。

図2.10に ^{129}I の放出率が変化した期間の、3チャンネル測定法(2)とページ法の測定例を示す。ページ法に比べ3チャンネル測定法(2)の測定値は回収後の精密測定の数値に近く、また、放出率の変化にも十分対応している。ページ法で全体的に大きく評価されているのはRn-Tn娘核種の影響である。

以上から ^{129}I の測定監視に3チャンネル測定法(2)は十分適用できると思われる。

また、3チャンネル測定法(2)の測定結果1(図2.8)の期間の放射性よう素が実際には濃度の変化がほとんどない状態で放出され、直線的に測定されていると仮定すると、サンプリング開始数時間(特に5/22)は、誤差が大きいことから ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の影響が最大の場合の検出限界はほぼ計算値の約 $5.5 \times 10^{-4} \text{GBq}$ ($15 \mu\text{Ci}$ 放出量換算)と同程度であると考えられる。

3. マルチチャンネルアナライザを用いた放射性よう素連続測定方法

3.1 測定原理

シングルチャンネルアナライザを用いた放射性よう素連続測定法は、計数をパソコンに手入力している。計数入力以外の演算は自動処理しているが、入力間違い等を考慮すると、完全自動化が望ましい。また、3チャンネル測定法(2)は影響係数の設定等の準備が煩雑であり、さらに、折角のエネルギー情報を十分活かしきれていない。

完全自動化と測定方法の簡略化及びエネルギー情報を活かした性能向上の方法として、マルチチャンネルアナライザを用いた放射性よう素連続測定法（以後スペクトル解析法）を検討した。スペクトル解析法は妨害核種を含むエネルギースペクトルから ^{129}I の計数のみを抜き取る測定法で、スペクトルに ^{129}I の放射線のピークが形成すれば有効な測定法である。

図3.1にNaI(Tl)シンチレーション検出器で実測した、 ^{85}Kr とRn-Tn娘核種及び ^{129}I の合計のスペクトルを示す。スペクトル解析の可能性はあるが、このままでは、スペクトル解析しても誤差が大きくなるので、平滑化処理を行う。

平滑化処理例のスペクトルを図3.2に示す。平滑化処理はピークの半値幅に相当するチャンネルをガウスフィルタ⁽³⁾を用いて処理を行い、放射性よう素の計数に比べ ^{85}Kr の計数が二桁程大きいことから感度よりも精度を優先して処理を2回繰り返した。

^{129}I ピーク中の ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の計数はピーク前後を直線的に存在するものとし、ピーク解析はコベル法⁽⁴⁾を採用した。

図3.3にスペクトル解析法の機器構成図を示す。NaI(Tl)シンチレーション検出器で測定したエネルギー信号（ ^{85}Kr とRn-Tn娘核種及び ^{129}I ）は多重波高分析器で弁別される。1時間測定した信号を多重波高分析器からパーソナルコンピュータに送り、平滑化処理を加え ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の計数を除去し、 ^{129}I のみの信号を取り出す。取り出した信号を放出量に換算し、表示部に放出量の変化をグラフとして表示するとともに、放出量をプリンタに印字する。

処理フローを図3.4に示す。

3.2 測定結果

図3.5にスペクトル解析法と3チャンネル測定法(2)を用いた1日間(92-2キャンペーン)の測定値の比較を示す。 ^{129}I の放出率が変化しなかったと仮定し、半導体検出器(Ge)を用いた精密測定値で求めた放出量に直線を引いた値を真値として比較すると、スペクトル解析法の方が誤差が小さい。

図3.6及び表3.1にスペクトル解析法と3チャンネル測定法(2)を用いた約3ヶ月間(92-2キャンペーン)の測定値を半導体検出器(Ge)を用いた精密測定値と比較した結果を示す。

表3.1 スペクトル解析法の測定結果

	スペクトル解析法	3チャンネル測定法(2)
最大誤差 %	19.7	29.8
標準偏差	11.1	13.4

スペクトル解析法の測定誤差は±20%以内に入っており、3チャンネル測定法(2)より誤差が少ない。

スペクトル解析法の検出限界は、 ^{85}Kr とRn-Tn娘核種の影響が最大の場合の測定値を用いても、3チャンネル測定法(2)の約 $5.5 \times 10^{-4} \text{GBq}$ ($15 \mu\text{Ci}$ 放出量換算)と同程度であった。

4. ま と め

本開発によって施設の運転（使用済燃料のせん断、溶解等）に伴って放出される ^{85}Kr や自然放射性核種であるRn-Tn娘核種の影響を、一時サンプリングを停止して試料を取り出したり、 ^{85}Kr を追い出したりして測定をするための煩雑な作業を要せずに、当初の目的である連続監視を可能とすることができた。

本測定方法の性能は、妨害核種の影響が最大の場合でも、検出限界放出量として約6GBq（15 μCi 放出量換算）、測定誤差は $\pm 20\%$ であり、通常の施設の運転での ^{129}I の連続監視として放射性よう素モニタを補助する機器としては十分の機能である。

5. 今後の展開

本測定方法は、通常の施設の運転での ^{129}I の連続監視の補助機器としては十分な機能を有するが、今後の高燃焼度燃料等の処理を控えて、より迅速に情報を提供することを目的とすると、測定時間の短縮が望まれる。開発方法としては半導体検出器 (Ge) を用いて上記方法を改善するのが早道と思われる。

6. 参考文献

- (1) PNC : 放管ハンドブック (再処理施設編) , 1990, 放射線管理第二課
- (2) 牧之内三郎, 鳥居達生 : 数値解析, 1970, オーム社書店
- (3) 野口正安 : ガンマ線スペクトロメトリー, 1970, 日刊工業新聞
- (4) 科学技術庁 : ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー (2訂) , 1991, 日本分析センター

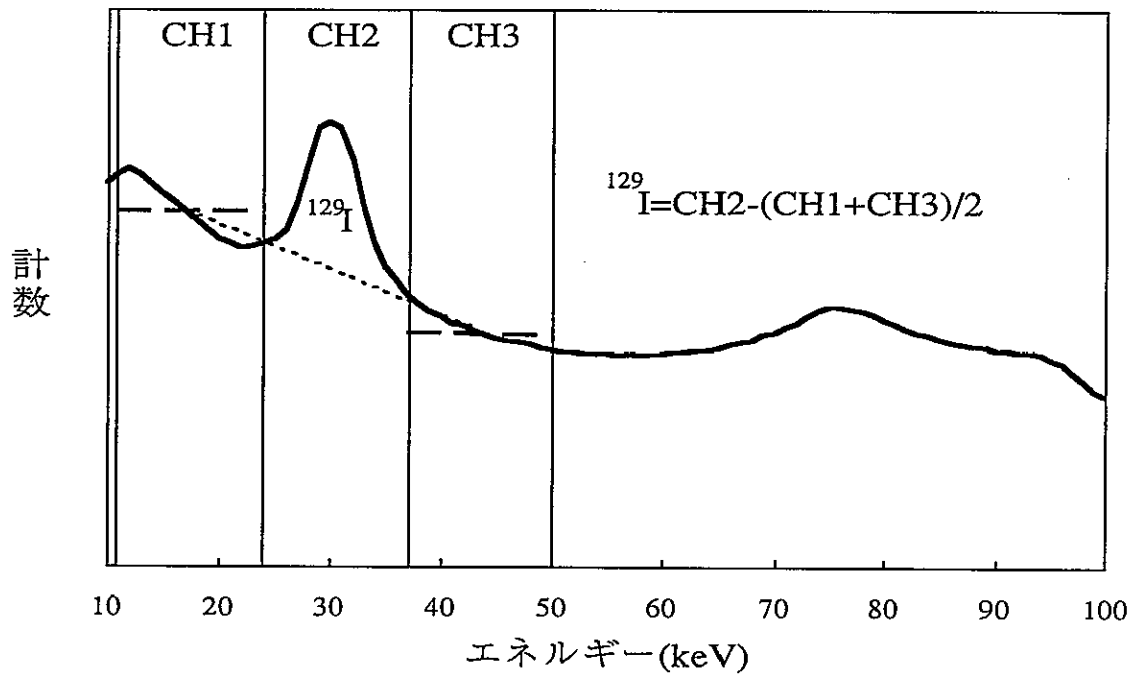


図2.1 3チャンネル測定法(1)の測定範囲

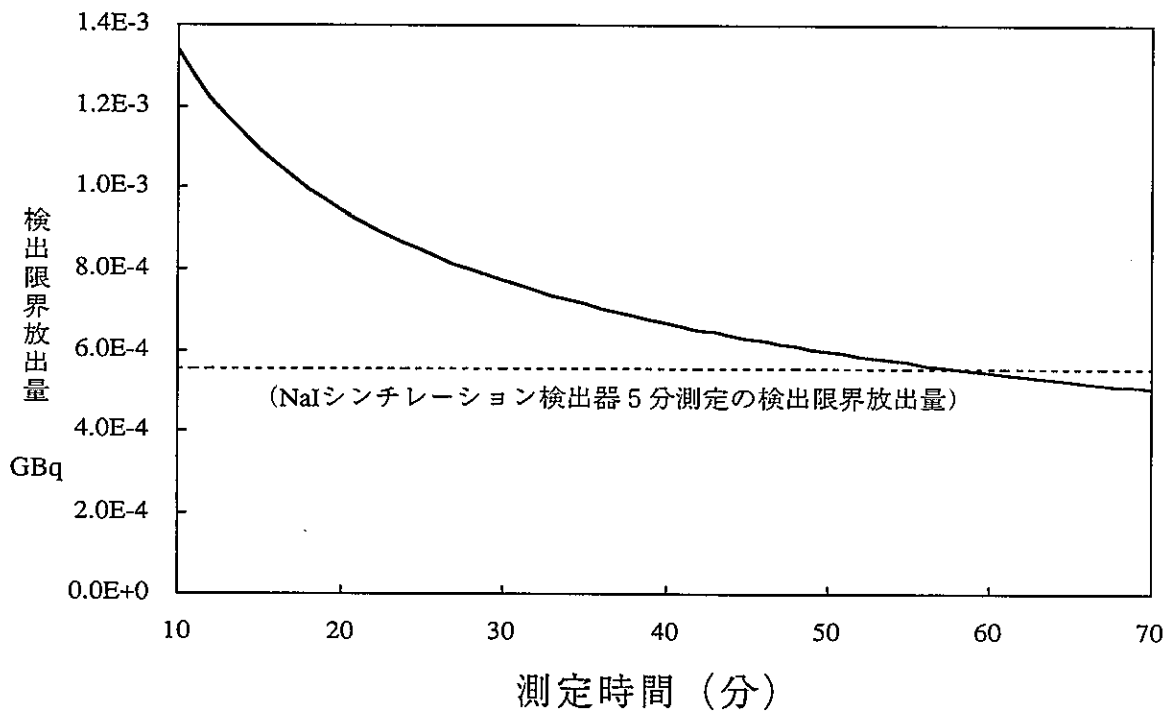


図2.2 3チャンネル測定法(1)の検出限界(放出量換算)

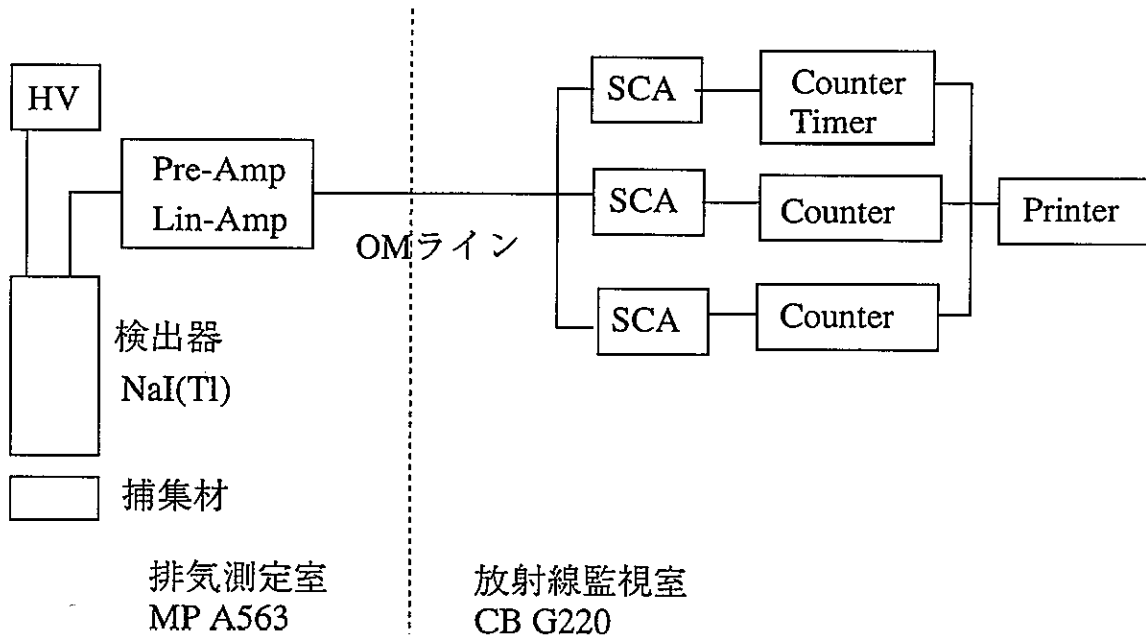


図2.3 3チャンネル測定法（1）の機器構成図

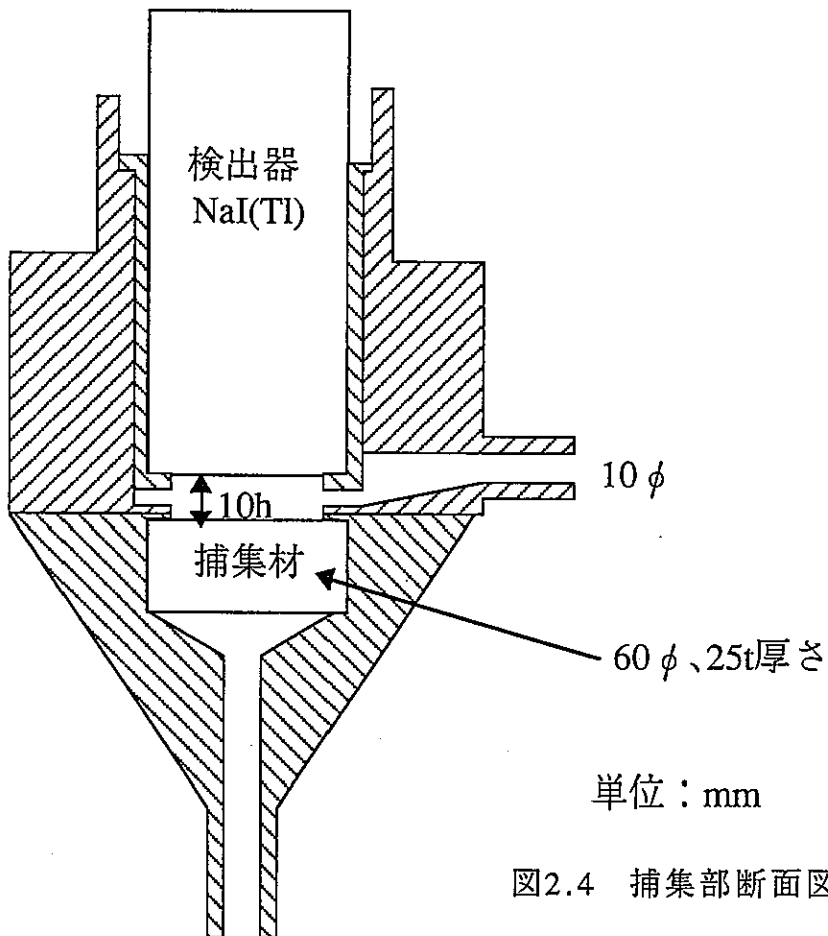


図2.4 捕集部断面図

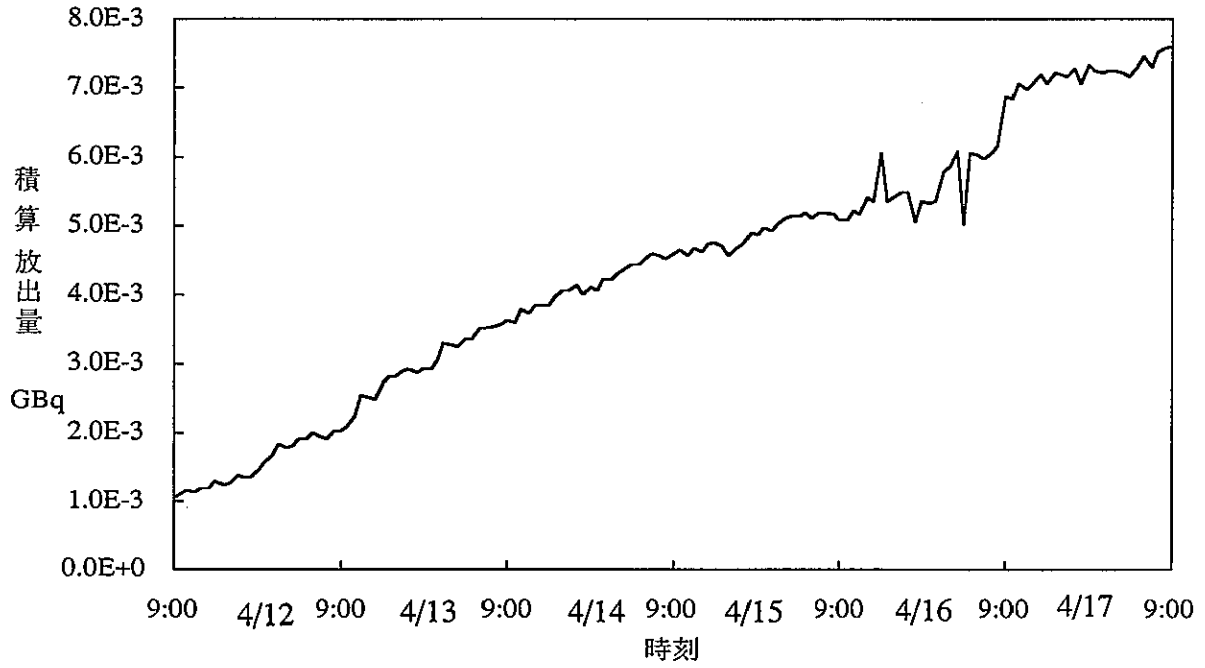


図2.5 3チャンネル測定法(1)の測定結果
(平成2年4月12日~17日)

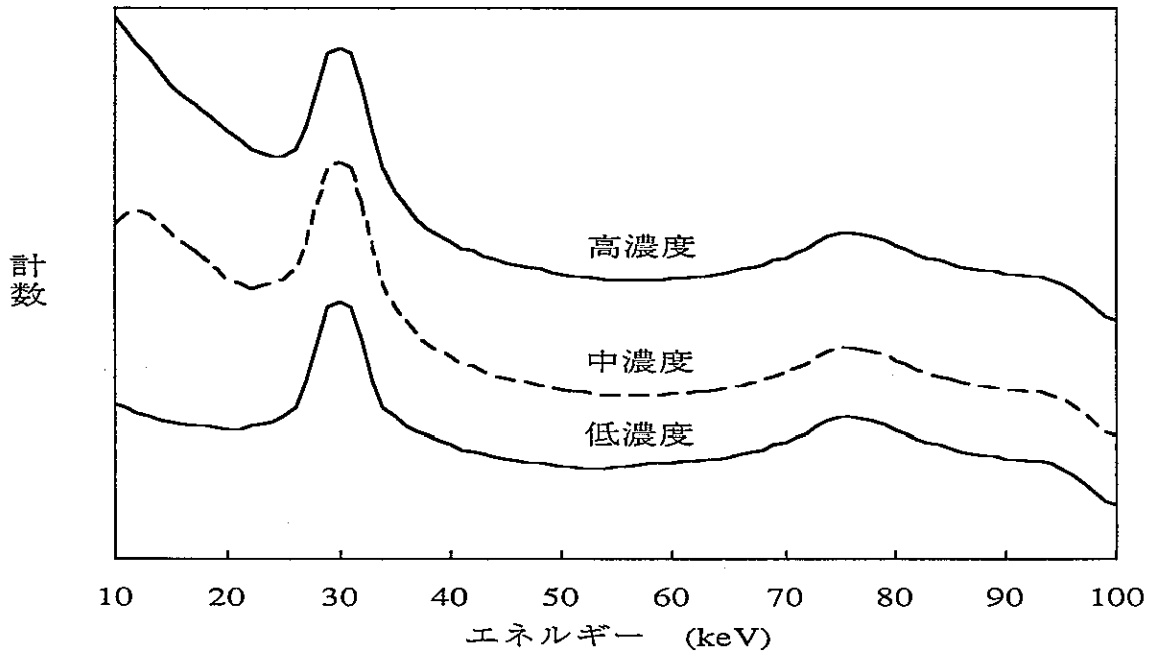


図2.6 ^{85}Kr 濃度によるスペクトルの変化

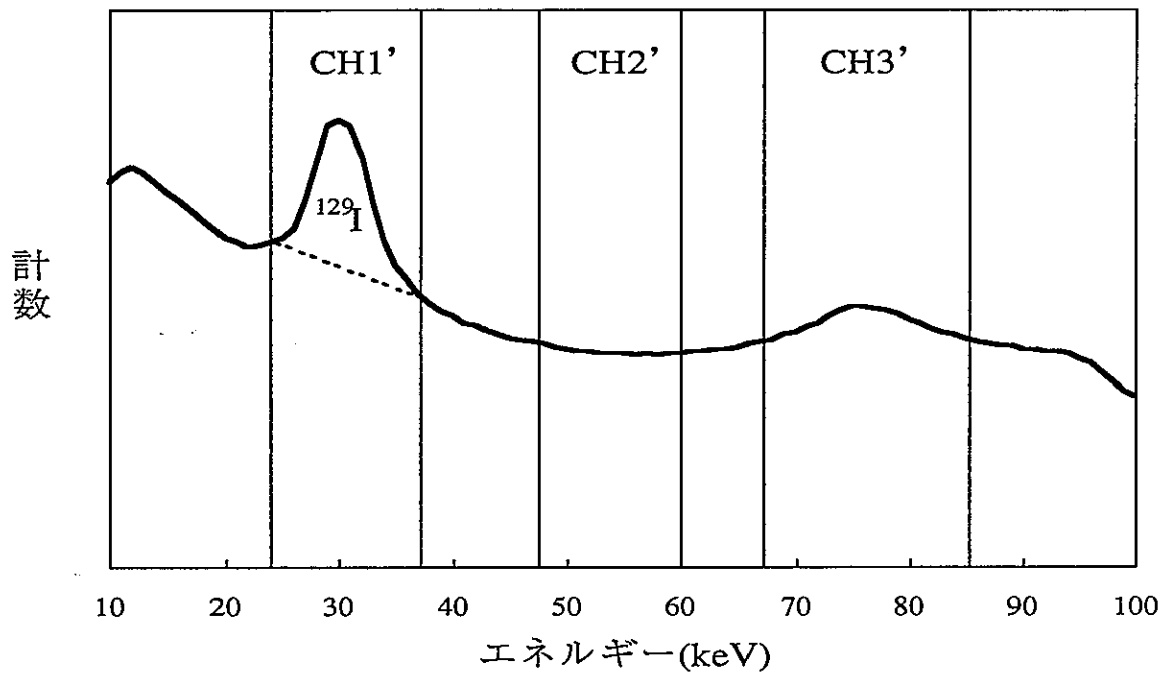


図2.7 3チャンネル測定法(2)の測定範囲

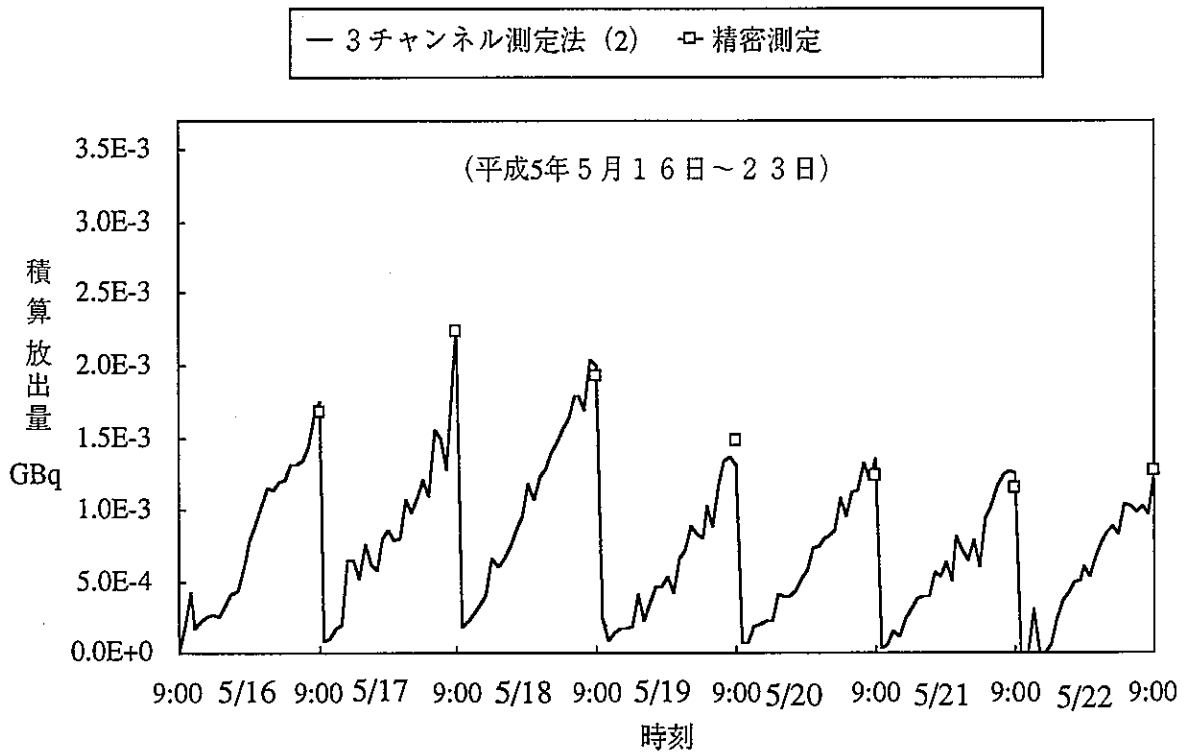


図2.8 3チャンネル測定法(2)の測定結果1

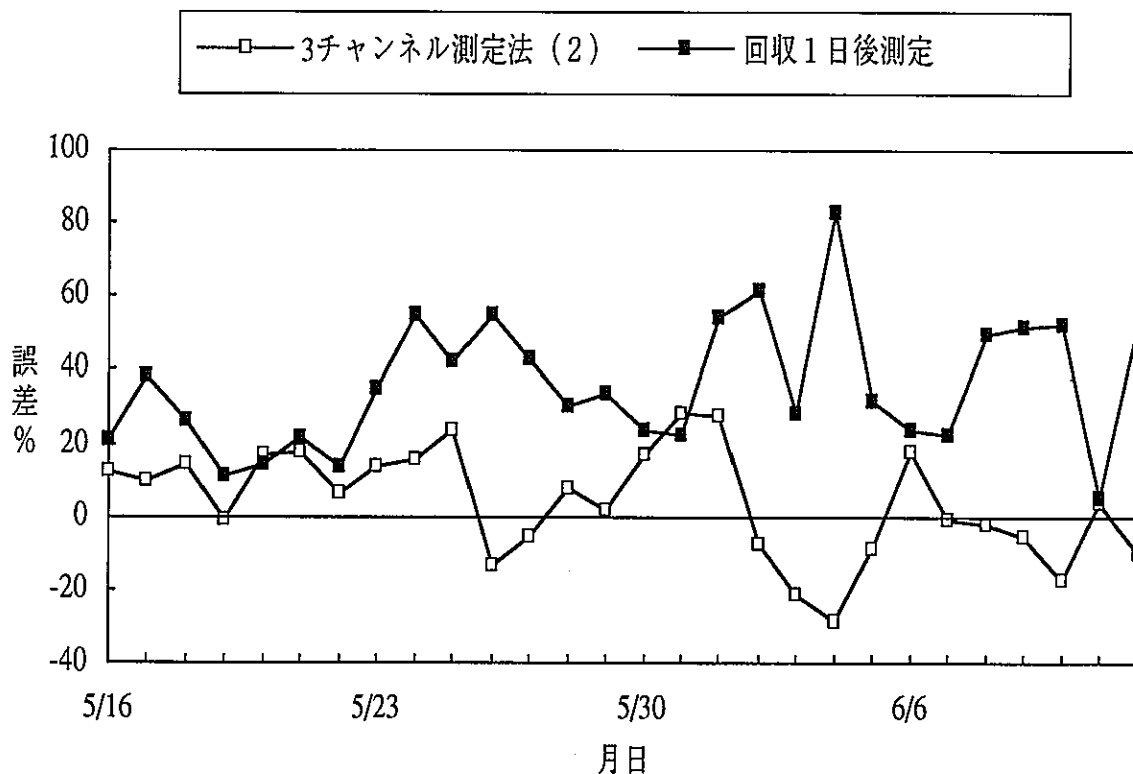


図2.9 3チャンネル測定法 (2) の測定結果 2

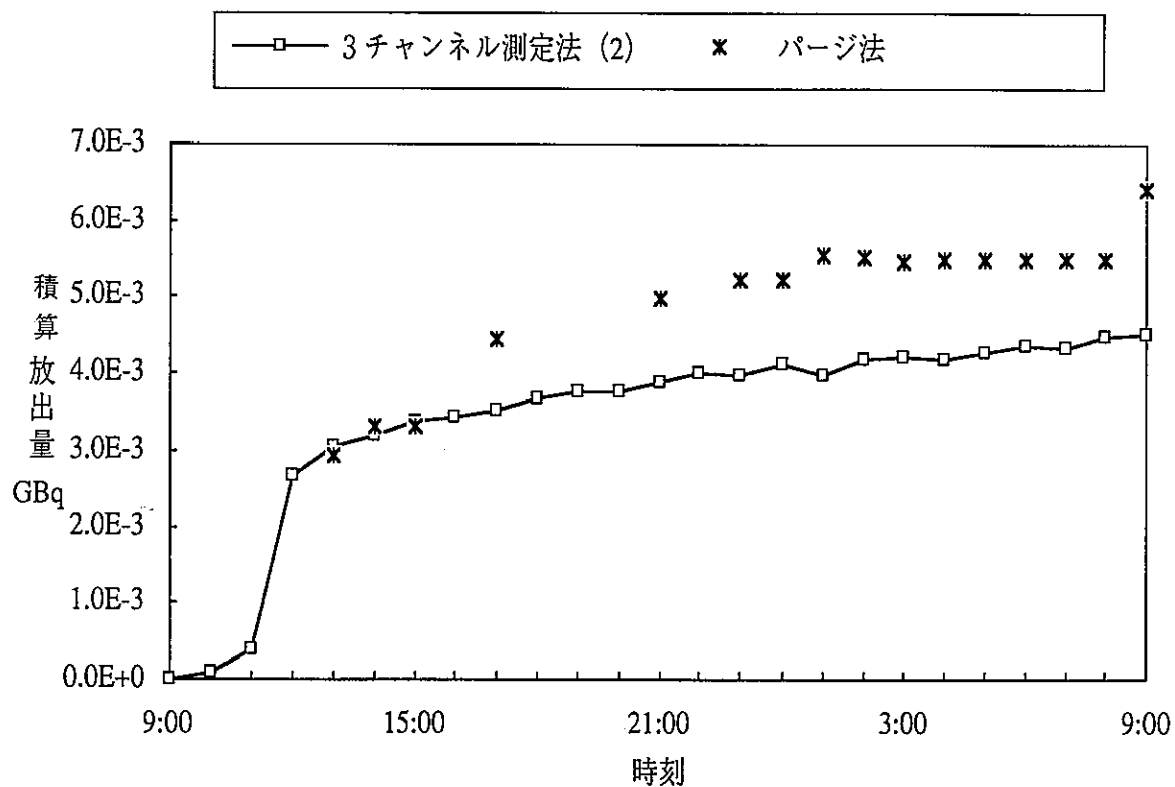


図2.10 3チャンネル測定法 (2) とパージ法の比較

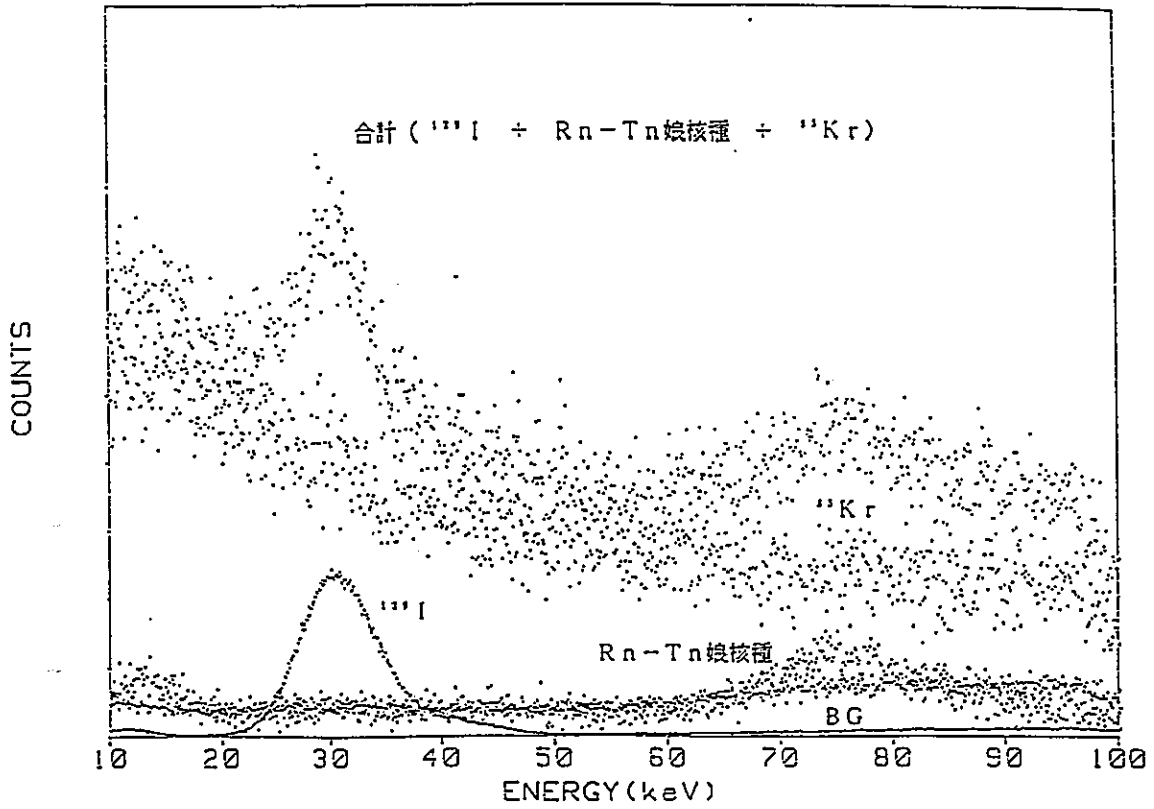


図3.1 NaI(Tl)シンチレーション検出器で実測したスペクトル

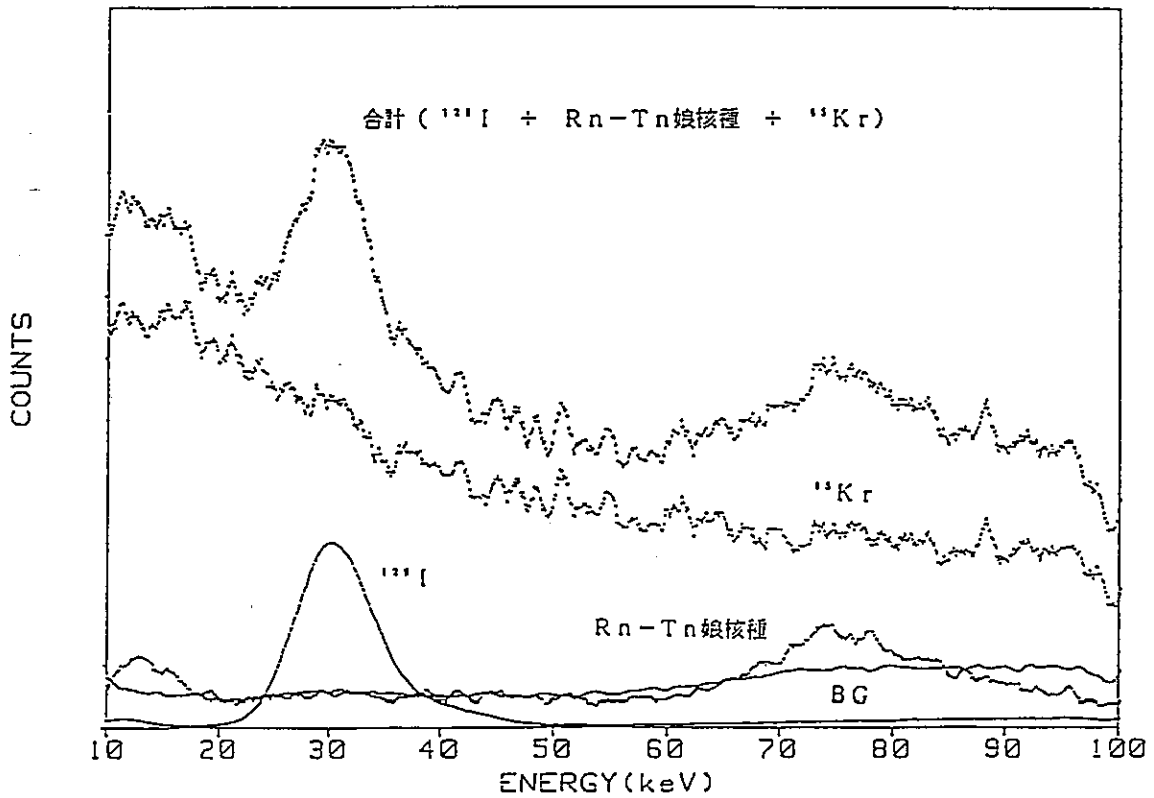


図3.2 平滑化処理後のスペクトル例

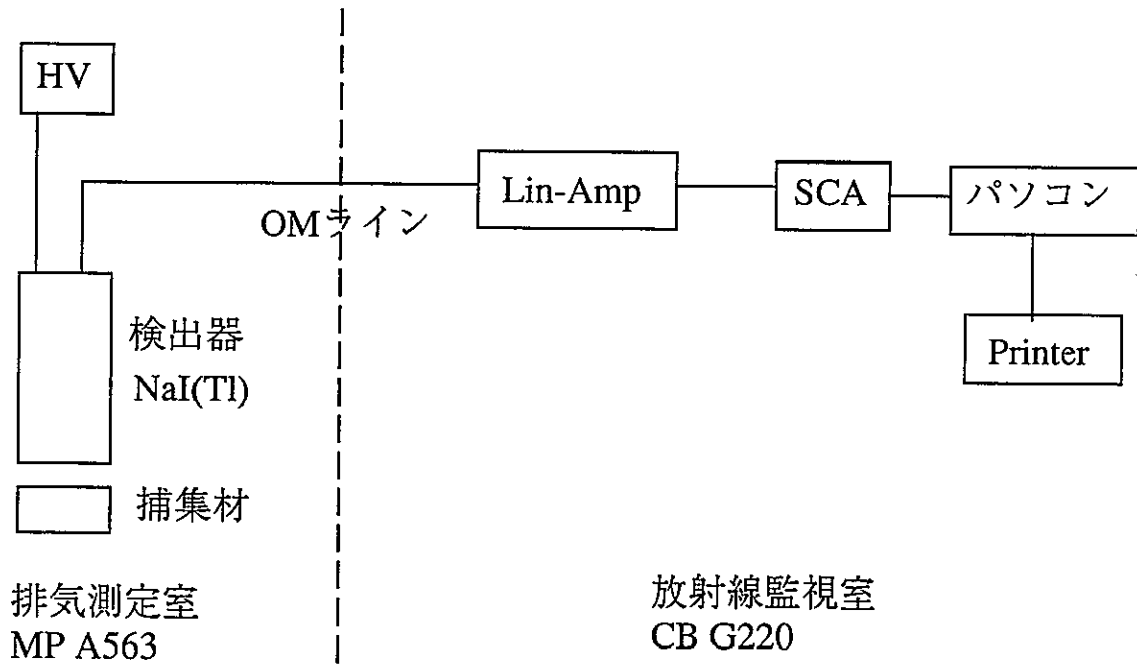


図3.3 スペクトル解析法の機器構成図

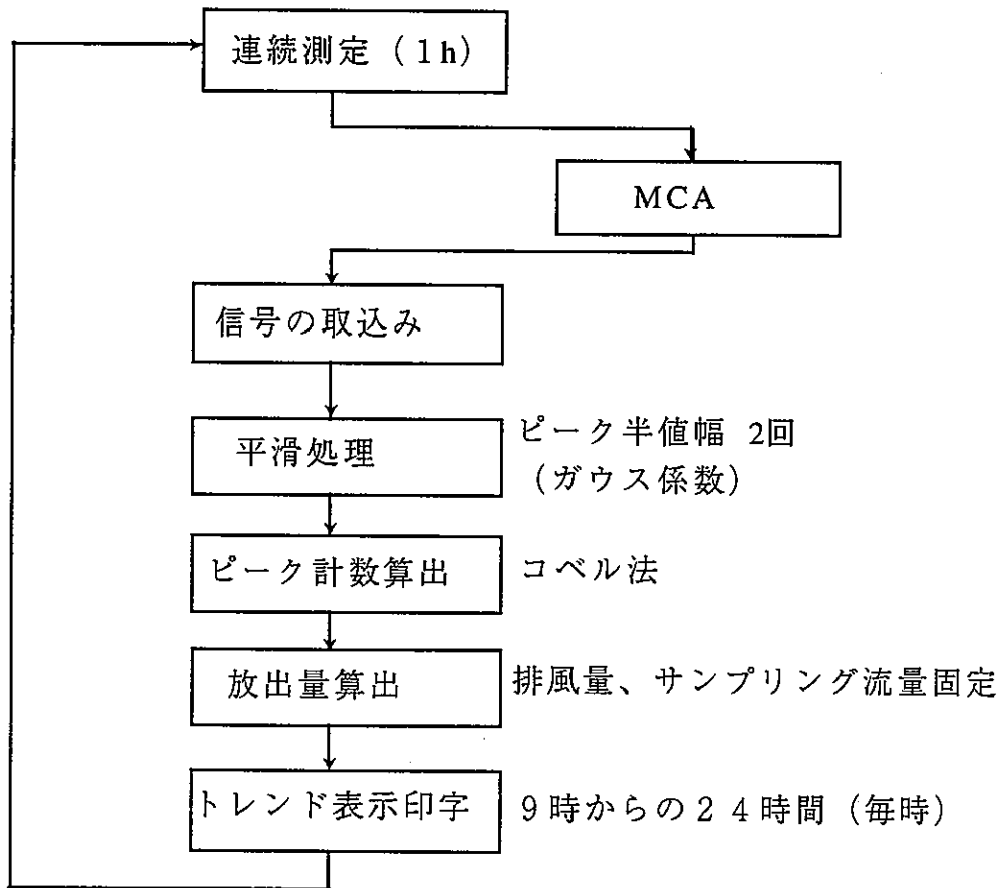


図3.4 スペクトル解析法の処理フロー図

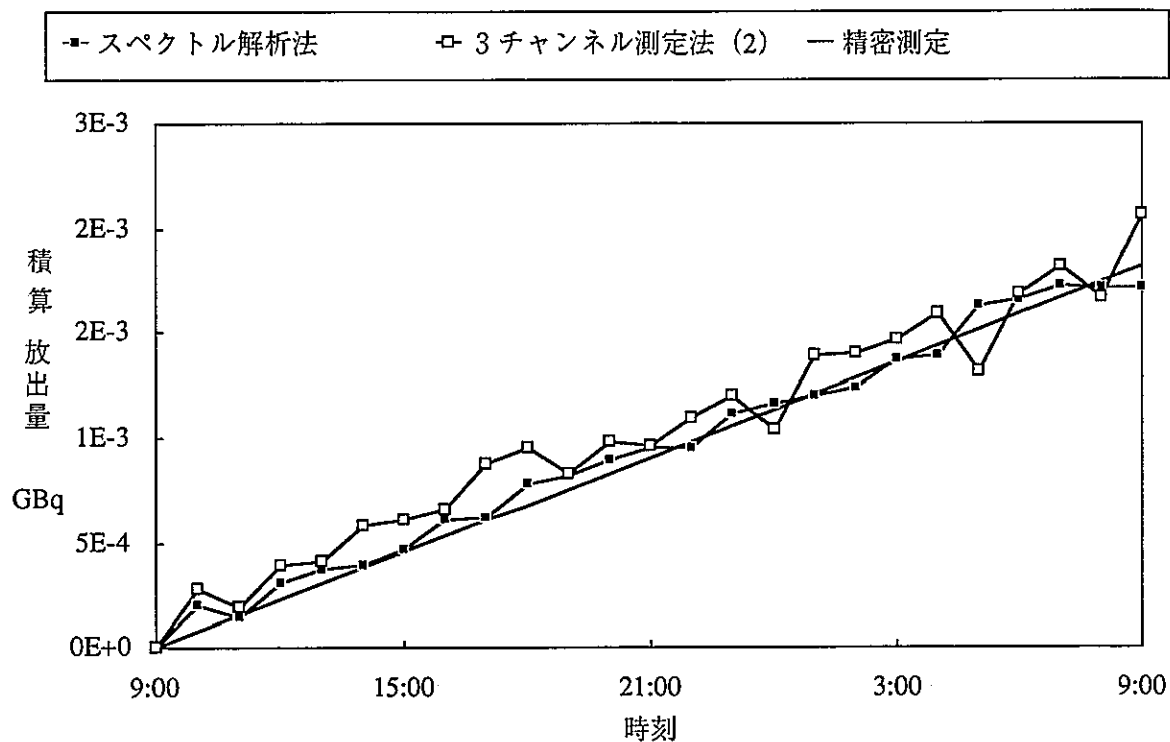


図3.5 スペクトル解析法と3チャンネル測定法(2)の測定結果1

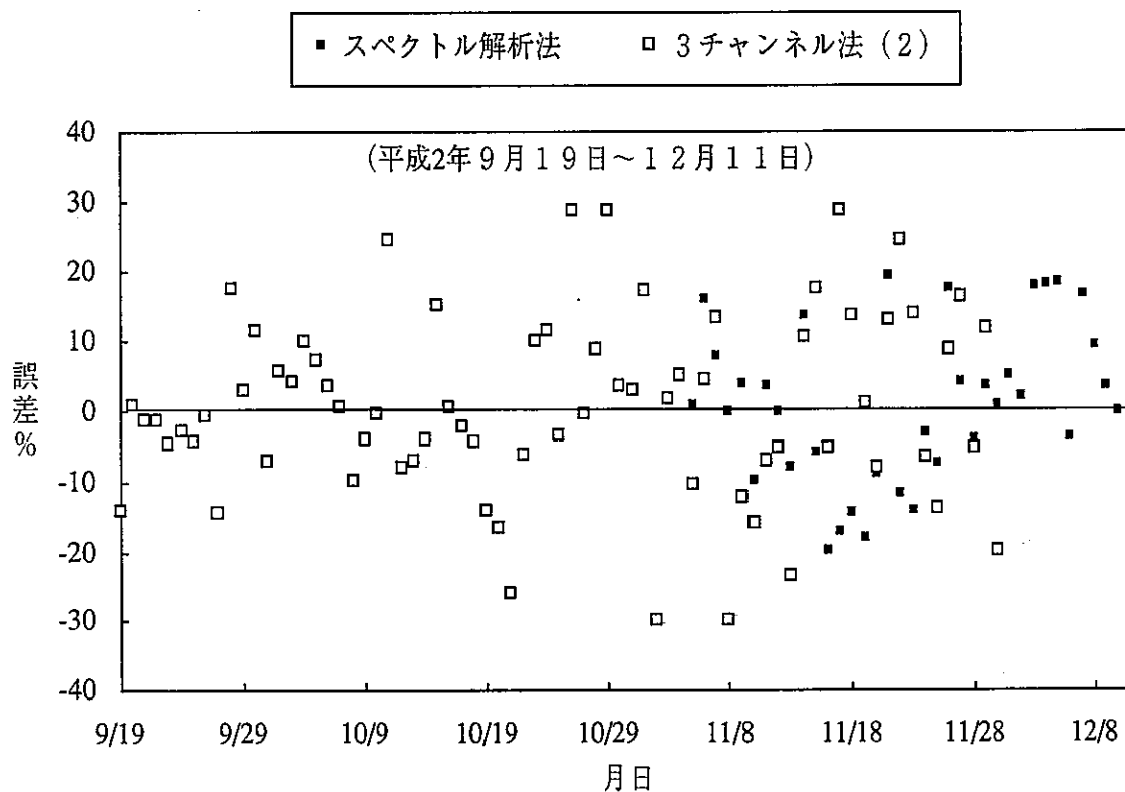


図3.6 スペクトル解析法と3チャンネル測定法(2)の測定結果2

第Ⅱ編

半導体検出器 (Ge) を用いた放射性よう素連続監視方法の開発

半導体検出器 (Ge) を用いた放射性よう素連続監視方法の開発

永井 博行*、石松 信彦**

要 旨

^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響を受けずに排気中放射性よう素 (^{129}I) を連続測定する方法として、1990年にNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた放射性よう素連続監視方法 (第I編) を開発し、1時間単位でデータを取得することができるようになった。しかしながら、工程管理側への情報を迅速に提供するため、より一層の測定時間の短縮化を検討した。

NaI(Tl)シンチレーション検出器よりエネルギー分解能の優れている半導体検出器 (Ge) を用いたスペクトル解析法を用いて、 ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響を受けずに放射性よう素を連続監視する方法を検討した。

本開発では、下記の結果を得た。

- ① 本測定装置 [半導体検出器(Ge) : ^{60}Co での相対効率25%] において、5分間測定で検出できる ^{129}I の放出量の最小値は、 ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響がない場合は約 $4 \times 10^{-5}\text{GBq}$ (約 $1 \mu\text{Ci}$)、 ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響が最大の場合は約 $5.5 \times 10^{-4}\text{GBq}$ (約 $15 \mu\text{Ci}$) である。
- ② 本測定装置において5分間測定を実施した評価値と、試料を回収し精密測定した測定値との比較では、測定誤差はほぼ10%以内であった。
- ③ 本測定方法はパソコンによる約二ヵ月間の連続運転では特筆する不具合もなく、溶解・せん断中の ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響を受けずに排気中放射性よう素の連続監視モニタとして十分運用できた。

* 安全管理部 放射線管理第二課

** 検査開発 (株)

目 次

要 旨	21
目 次	22
1. はじめに	23
2. 測定原理	24
3. 試験装置	25
4. 試験方法と測定結果	26
4.1 基礎試験	26
4.2 実ガス試験	27
5. まとめ	29
6. 今後の課題	30
7. 参考文献	31

図 表 目 次

図2.1 半導体検出器 (Ge) で測定したスペクトル	32
図3.1 試験装置構成図	32
図4.1 平滑化処理例	33
図4.2 測定時間と検出限界 (放出量換算)	33
図4.3 ^{85}Kr 濃度と検出限界 (放出量換算)	34
図4.4 測定値 (放出量換算) と測定誤差	34
図4.5 連続測定例	35
図4.6 精密測定値との比較	35
図4.7 近似値と精密測定値との比較	36
図4.8 放出率の変化した期間の連続測定例	36
表4.1 Geスペクトル解析法と NaIスペクトル解析法の比較	27
表4.2 近似値と精密測定値の比較	28

1. はじめに

1990年にNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて1時間測定したスペクトルを解析し、 ^{85}Kr や、Rn-Tn娘核種の影響を除去して ^{129}I を測定する方法を開発（以後NaIスペクトル解析法、第I編参照）した。

再処理施設から放出される ^{129}I は、フィルタを介して放出されるため使用済燃料のせん断・溶解中も大幅な放出率の変化はなく、放出監視の頻度としては、NaIスペクトル解析法の1時間毎の測定頻度でも十分である。しかし、工程管理上の情報を迅速に提供する観点から、測定時間の短縮を検討した。測定時間の短縮の方法として、NaIスペクトル解析法で使用したNaI(Tl)シンチレーション検出器の代わりに、エネルギー分解能の優れている半導体検出器（Ge）を用いた。測定方法はNaIスペクトルを解析法と同様に、サンプリング中の試料を連続的に行い、その結果得られた波高信号に、精度と測定時間の最適条件を満たすスムージング処理を施した後、スペクトル解析することにより ^{85}Kr の影響を最小限に抑えた。また、 ^{129}I の光電ピークのうち $K\alpha$ X線を用いることでThC(^{212}Bi)の影響を受けないようにした。

2. Ge半導検出器を用いた ^{129}I 連続測定の実理

付録Aの図A. 2にNaI(Tl)シンチレーション検出器で排気中の ^{129}I を測定したスペクトル例を示す。検出器の特性として ^{129}I のピーク範囲(LL~UL)には、 ^{129}I の γ 線(39.6keV:7.5%)、K α X線(29.8keV:36.9%, 29.5keV:19.9%)、K β X線(33.6keV:7.1%, 34.4keV:2.4%, 33.6keV:3.7%)、 ^{212}Bi の γ 線(39.9keV:1.1%)、及び ^{85}Kr によるコンプトン散乱線、制動X線やバックグラウンド計数が含まれる。特にせん断・溶解時には ^{85}Kr が多量に混在し、その濃度によって計数が大きく左右される。

付録Aの表A. 1に ^{129}I とRn-Tn娘核種及び百keV以下の放射線のエネルギーと放出率を示す⁽¹⁾。

図2.1にNaI(Tl)シンチレーション検出器に比べエネルギー分解能の優れている半導体検出器(Ge)を用いて排気中の ^{129}I を測定した場合のスペクトル例を示す。 ^{60}Co での分解能が2keV程度の標準的な半導体検出器(Ge)では、 ^{129}I の γ 線(39.6keV:7.5%)と ^{212}Bi の γ 線(39.9keV:1.1%)は複合ピークを形成し、 ^{129}I のみは検出できない、また、2本のK α X線(29.8keV:36.9%, 29.5keV:19.9%)と3本のK β X線(33.6keV:7.1%, 34.4keV:2.4%, 33.6keV:3.7%)もそれぞれ複合ピークとなる。

分解能がもっと良い場合にはK α X線、K β X線ともそれぞれ検出され、 ^{129}I の γ 線と ^{212}Bi の γ 線も別々に検出される。

ターゲットに ^{129}I の放射線の中で最も放出率の高いK α X線(29.8keV:36.9%, 29.5keV, 19.9%)の複合ピークを選択することで、 ^{85}Kr の影響を最小限に抑えるとともにRn-Tn娘核種の影響を除去することができる。ここで大事なことは、半導体検出器(Ge)としてK α X線(29.8keV:36.9%, 29.5keV:19.9%)はひとつのピークとして検出し、K α X線とK β X線(及び γ 線)はK α X線のピークを解析できる程度の分解能(30keVエネルギー付近で約1keV)の検出器を使用することである。

3. 試験装置

図3.1に半導体検出器（Ge）を用いた排気中の ^{129}I の試験装置構成図を示す。

検出器は、 ^{60}Co の相対効率25%で、分解能は30keVエネルギー付近で約1keVのものを使用した。半導体検出器（Ge）で測定したエネルギー信号を多重波高分析器で弁別し任意時間毎にパソコンに送信する。送信されたエネルギー信号をパソコンでスペクトル解析し ^{129}I の放出量値を算出する。放出量値はパソコン画面に表示されるとともにプリンタに印字される（以後Geスペクトル解析法）。

4. 試験方法と測定結果

4.1 基礎試験

基礎試験では、排気中の ^{129}I を1日間サンプリングした捕集材を測定した。また、 ^{85}Kr の線源を用いて、せん断・溶解時の ^{85}Kr の影響を模擬した。せん断・溶解時の ^{85}Kr の最大濃度はこれまでの経験から約 $300\text{Bq}/\text{cm}^3$ とした。

多重波高分析器からパソコンに送られたエネルギー信号は、測定時間が短いと計数が少ないためばらつきが大きくそのままではスペクトル解析ができない。そこで各チャンネルを半値巾の範囲をガウスフィルタで荷重を掛け平滑化処理した。平滑化は感度よりも精度を考慮し2回処理した。図4.1に処理前のスペクトルと平滑化処理を施したスペクトルの例を示す。細線が処理前のスペクトルで太線が平滑化処理を施したスペクトルである。1チャンネル 0.1keV とした場合FWHMは約 1.3keV 、ピーク幅を約 2.6keV とした。

^{129}I のピーク中の ^{85}Kr 計数は直線的に存在するものとして、ピーク面積はコベル法⁽¹⁾で算出した。図4.2に ^{85}Kr の濃度を約 $300\text{Bq}/\text{cm}^3$ とした場合の測定時間と検出限界(測定した ^{129}I の放射能強度を1日の放出量として評価、以後放出量換算。放出量換算の算出は次式を用いた)の関係(尚、検出限界の算出方法については、科学技術庁マニュアル⁽¹⁾を参照願いたい)を示す。

$$A(\text{GBq}) = B(\text{Bq}) / (1 \times 10^9) (\text{cm}^3) \times (1 \times 10^{13}) (\text{cm}^3) / (1 \times 10^9) (\text{GBq}/\text{Bq}) \quad \text{①}$$

A : 放出量換算 (GBq)
B : 検出限界 (Bq)
(1×10^9) : 1日のサンプリング流量 (cm^3)
(1×10^{13}) : 1日の排风量 (cm^3)
(1×10^9) : GBqとBqの換算計数 (GBq/Bq)

NaIスペクトル解析法の検出限界 ($5.5 \times 10^{-4}\text{GBq}$ ($15\mu\text{Ci}$) 放出量換算) と同程度の検出限界を得るためには、Geスペクトル解析法の感度を 2σ とした場合5分間の測定が必要であり、 $\text{K}\alpha$ X線を検出する場合は γ 線を検出するよりも一桁検出限界が小さい。

図4.3に測定時間を5分間とした場合の ^{85}Kr 濃度と検出限界(放出量換算、放出量換算の

算出は上記式①を用いた)を示す。今後高燃焼度の燃料を処理し⁸⁵Kr濃度が仮に倍の約600Bq/cm³になっても、検出限界(放出量換算)は約 7×10^{-4} GBq(19 μ Ci)であり、十分測定できる。

図4.4に⁸⁵Krの濃度をせん断・溶解時の最大(約300Bq/cm³)とした場合の測定値(放出量換算)と誤差(2 σ)の関係を示す(誤差の算出方法については科学技術庁マニュアル⁽¹⁾を参照願いたい)。検出限界(放出量換算) 5.5×10^{-4} GBq(15 μ Ci)での測定誤差を外挿法で求めると、約30%(2 σ)であり、連続測定としては十分信頼性があるといえる。

4.2 実ガス試験

図4.5にGeスペクトル解析法を用いて、実際に排気中の¹²⁹Iを5分間毎に連続測定した例(92-2キャンペーン)を示す。せん断・溶解が実施されていない期間は勿論、実施されている期間も¹²⁹Iの放出量を妨害計数を除去して測定している。0:00以降には測定値に若干のばらつきが見られるが、これはこの期間にはせん断・溶解オフガスの貯留及び放出が行われ⁸⁵Kr濃度が大きく変化したことが原因である。

図4.6及び表4.1にGeスペクトル解析法(5分測定)の測定値(以後Geスペクトル解析値)とNaIスペクトル解析法(1時間測定)の測定値(以後NaIスペクトル解析値)を捕集材交換直後の測定値を、捕集材交換後に別途半導体検出器(Ge)で、測定した値(以後精密測定値)と比較した結果を示す。

NaIスペクトル解析法は安全係数を乗じているため、全体に高めに評価されているがバラツキの観点からも、Geスペクトル解析法は測定精度が良い。Geスペクトル解析法と精密測定値との差は、最大 $\pm 20\%$ で、誤差はほぼ $\pm 10\%$ に入っている。

Geスペクトル解析法の測定誤差は、図4.6の測定値から検出限界値付近では、図4.4で示した測定誤差と同様には約30%程度であった。

表4.1 Geスペクトル解析法とNaIスペクトル解析法の比較

比	Geスペクトル解析値/精密測定値	NaIスペクトル解析値/精密測定値
最大	1.182	1.713
最小	0.834	0.867
平均	0.999	1.178
標準偏差	0.073	0.204

図 4. 6 に示すように本装置で 5 分測定した値は、その間の放出率の変化が小さいため、連続測定中の測定値を直線または緩やかな曲線で近似することでより正確な値が得られる（放出率は変化した場合は近似すると、逆に正確さが失われる）とともに、放出量の予測が可能である。

表 4. 2 に近似しない測定値と一～五次式の近似値を精密測定値で比較した結果を示す。本試験期間では三次で近似するのがもっとも誤差が少なかった。図 4. 7 に本装置で 5 分測定した値と三次式で近似した値を精密測定値で比較した図を示す。

表 4. 2 測定値の比較（近似値） / （精密測定値）の比

比	五次近似値	四次近似値	三次近似値	一次近似値	近似なし
最大値	1. 111	1. 108	1. 107	1. 125	1. 182
最小値	0. 890	0. 909	0. 909	0. 873	0. 834
平均	0. 982	0. 987	0. 988	0. 984	1. 001
標準偏差	0. 510	0. 048	0. 048	0. 056	0. 073

図 4. 8 に本試験期間にの放出率が変化した場合の測定例を示す。通常であれば図中の点線のように推移する放出量が 13 : 00 頃から放出率が変化している。Ge スペクトル解析法は NaI スペクトル解析法に比べ測定時間が短いために、応答性が良く測定している。これにより迅速な情報提供が可能である。

5. ま と め

Geスペクトル解析法において、 ^{129}I の放出量を5分間測定で検出できる最小値は、 ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響がない場合は約 $4 \times 10^{-5}\text{GBq}$ (約 $15 \mu\text{Ci}$)であり、 ^{85}Kr やRn-Tn娘核種の影響が最大の場合は、 $5.5 \times 10^{-4}\text{GBq}$ (約 $15 \mu\text{Ci}$)である。

また、試料回収後の精密測定値との比較では、測定誤差はほぼ10%の範囲であり、測定値を近似または平均化することでより精度がよくなる。

さらに、NaIスペクトル解析法に比べ測定時間が短いために、 ^{129}I の放出率の変化にも応答性が良く、工程管理上の情報を早期に提供することができる。

Geスペクトル解析法は約二ヵ月間の連続運転では特筆する不具合もなく、排気中の放射性元素の連続監視法として十分運用できる装置である。

6. 今後の課題

測定値は、長期のサンプリングを継続していくと、捕集材を交換しても測定値が、「ゼロ」に戻らずバイアスを含む値（図4.4参照）となった。これは捕集材のホルダと検出器表面に ^{129}I が付着したためと考えられる。長期のキャンペーンで安定した測定値を得るためには、 ^{129}I の付着を防ぐ必要がある。または、データ処理からの対策としては、近似値の切片をバイアス分として処理する方法も考えられる。

本装置を実用化する場合は、検出器の冷却方法として、定期的に冷却材を補充する必要のない電気冷却法の採用が賢明と考えられる。

捕集材の自動交換装置を開発し設置すると、サンプリング時間や測定時間が標準化でき測定値の信頼性が向上する。また、サンプリング流量、排風量を計算機にオンラインで処理すればさらに信頼性が向上する可能性がある。

本装置で得られた測定値を、現場の放射線管理に取り入れるためには、その測定値の運用方法、監視方法を検討する必要がある。

7. 参考文献

- (1) 科学技術庁, ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー (2訂), 1991, 日本分析センター

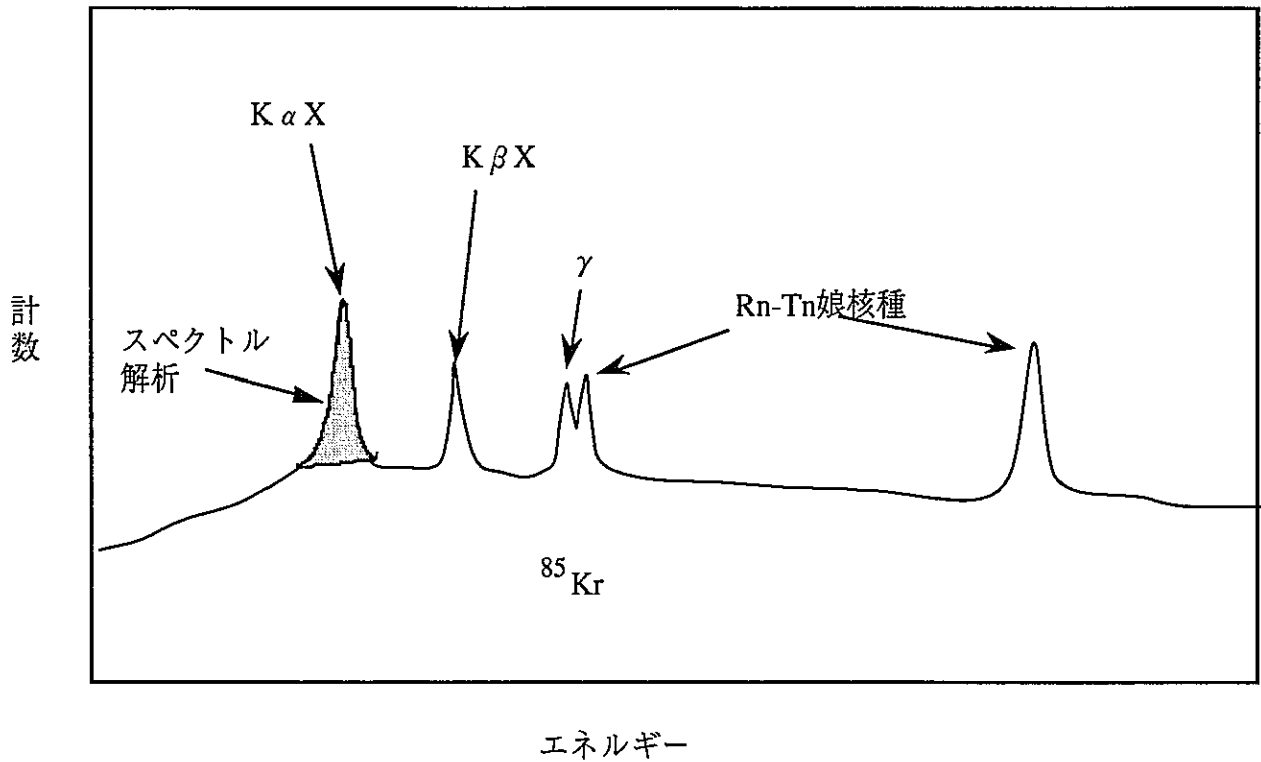


図2.1 半導体検出器 (Ge) で測定したスペクトル

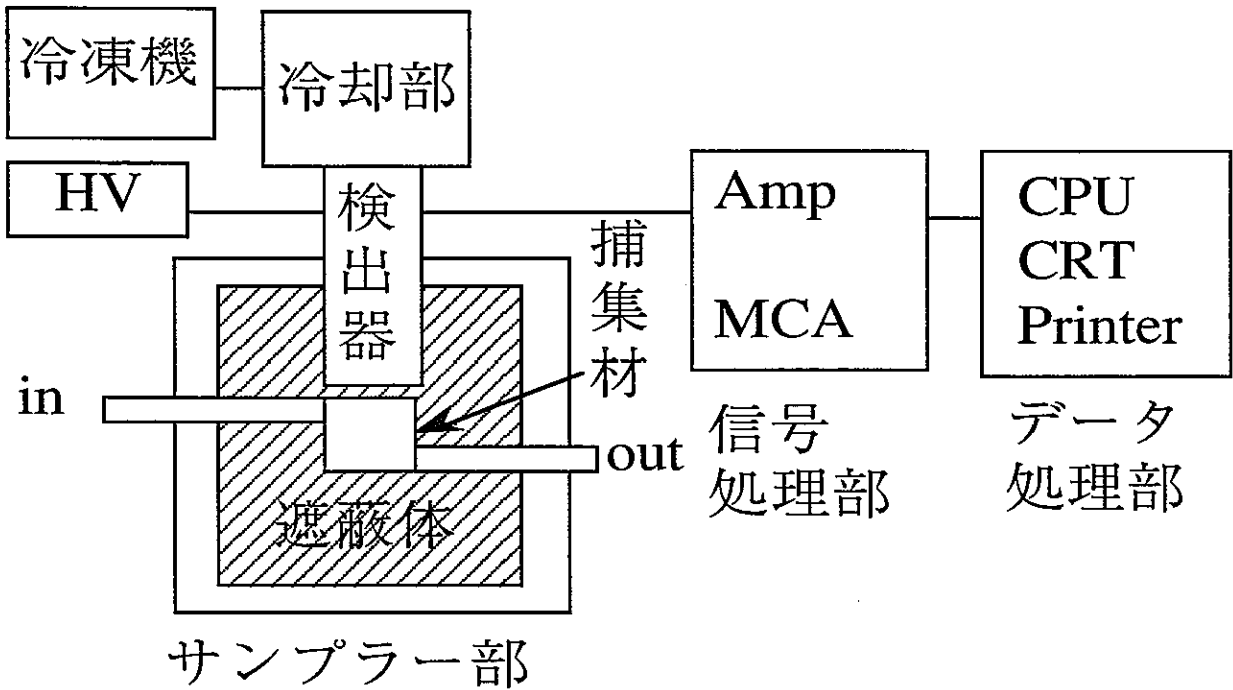


図3.1 試験装置構成図

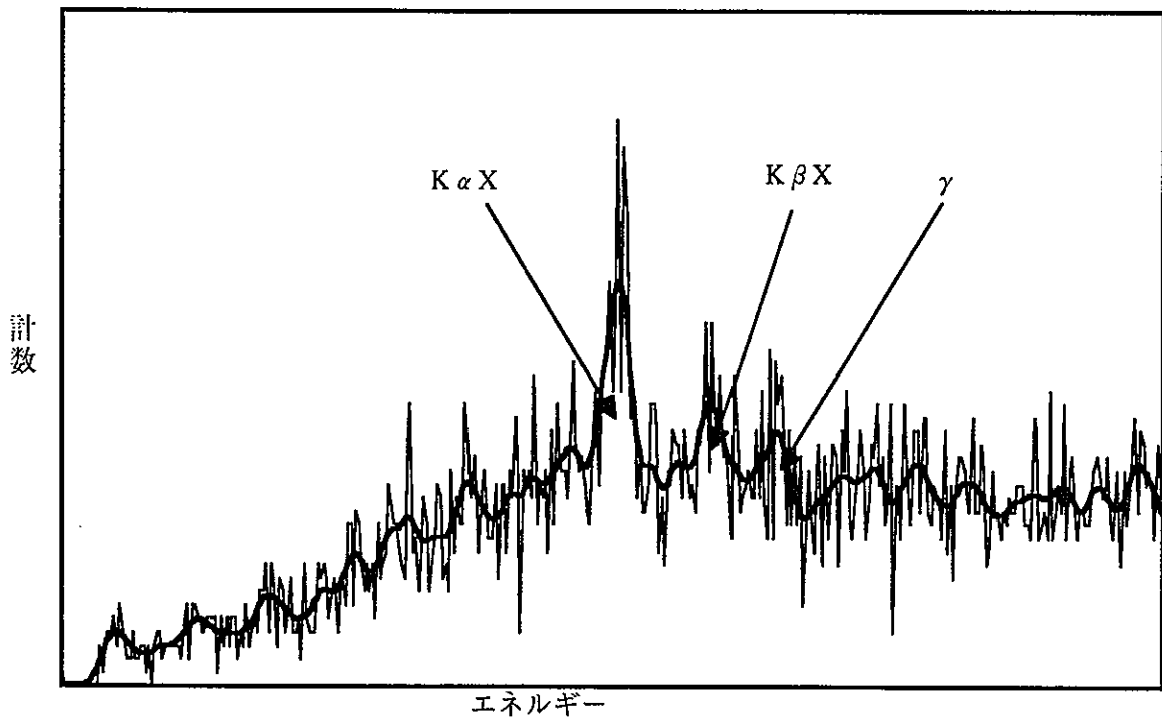


図4.1 平滑化处理例

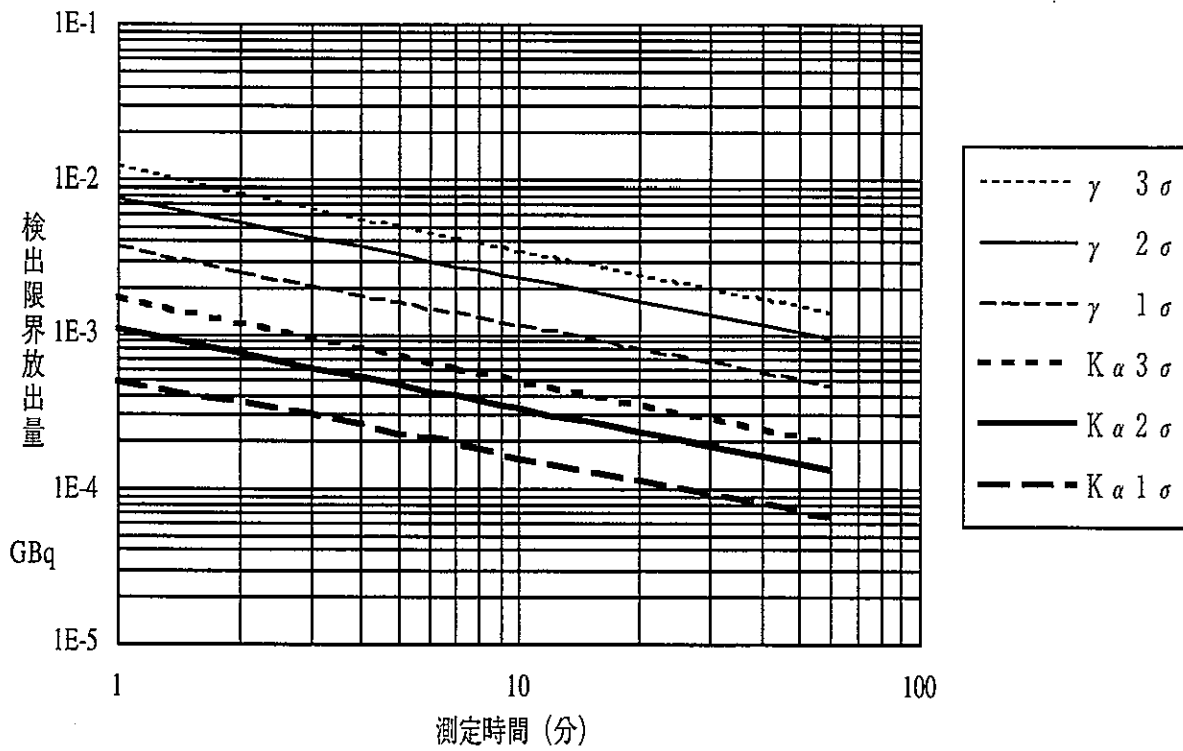


図4.2 測定時間と検出限界 (放出量換算)

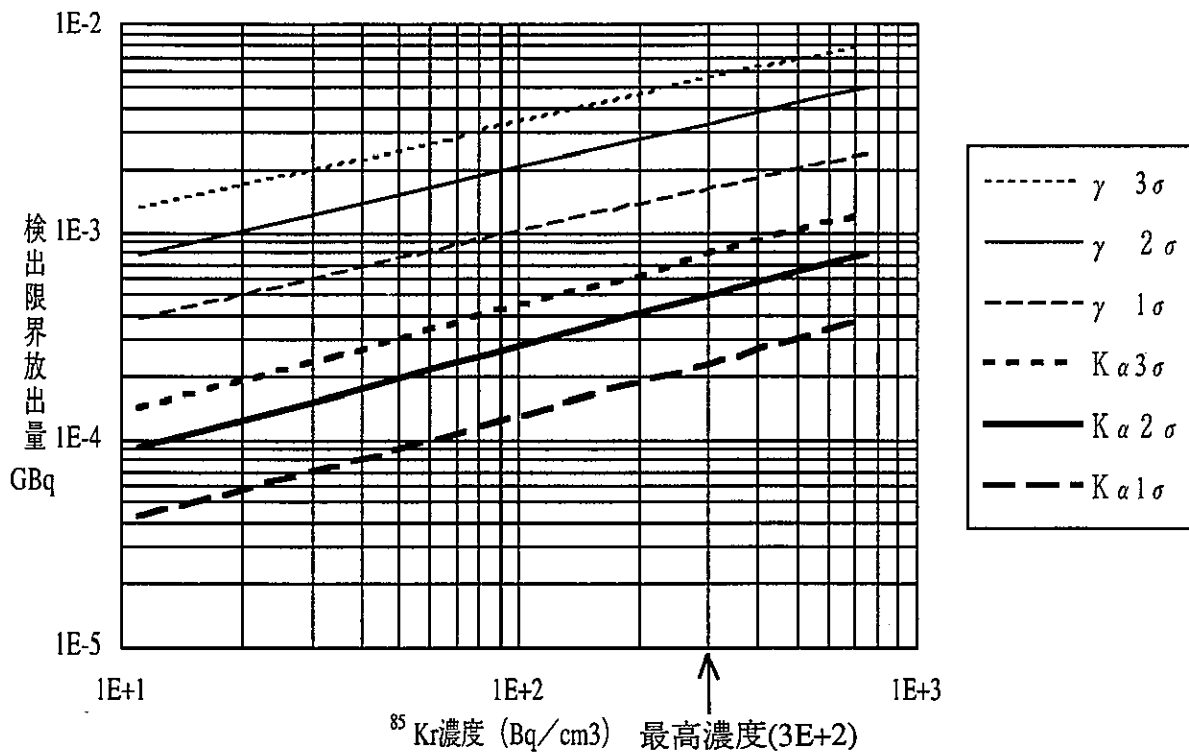


図4.3 ⁸⁵Kr濃度と検出限界（放出量換算）

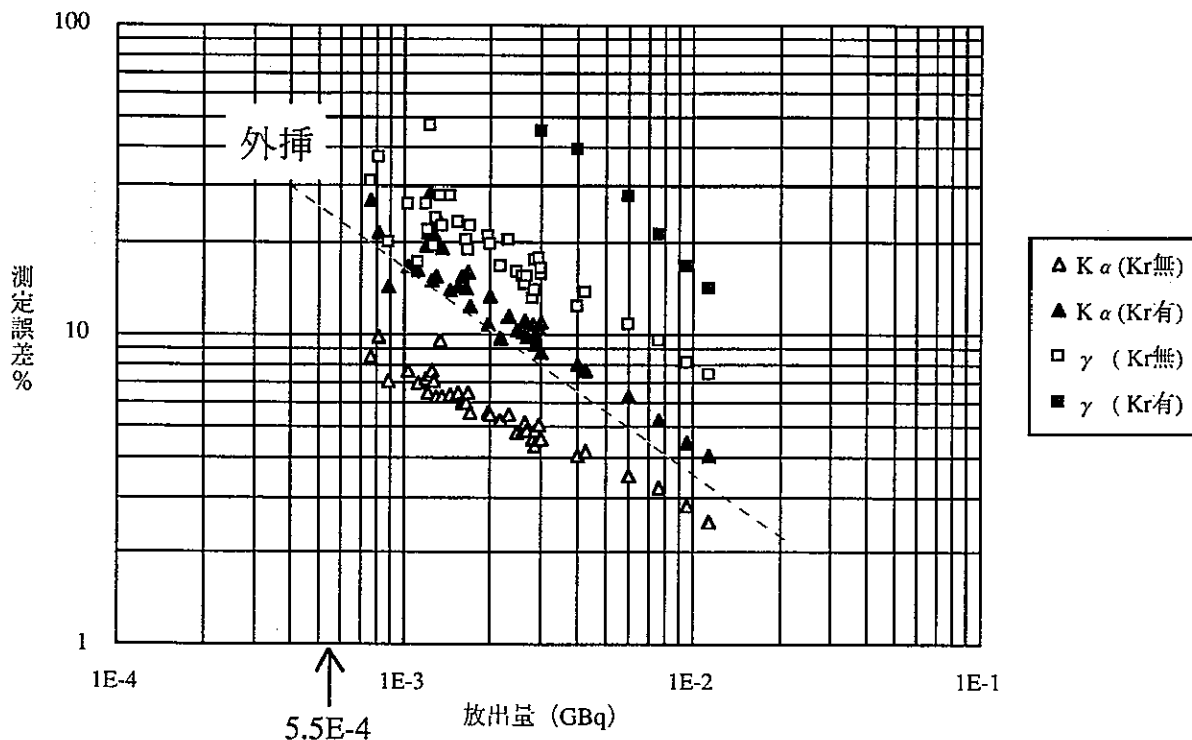


図4.4 測定値（放出量換算）と測定

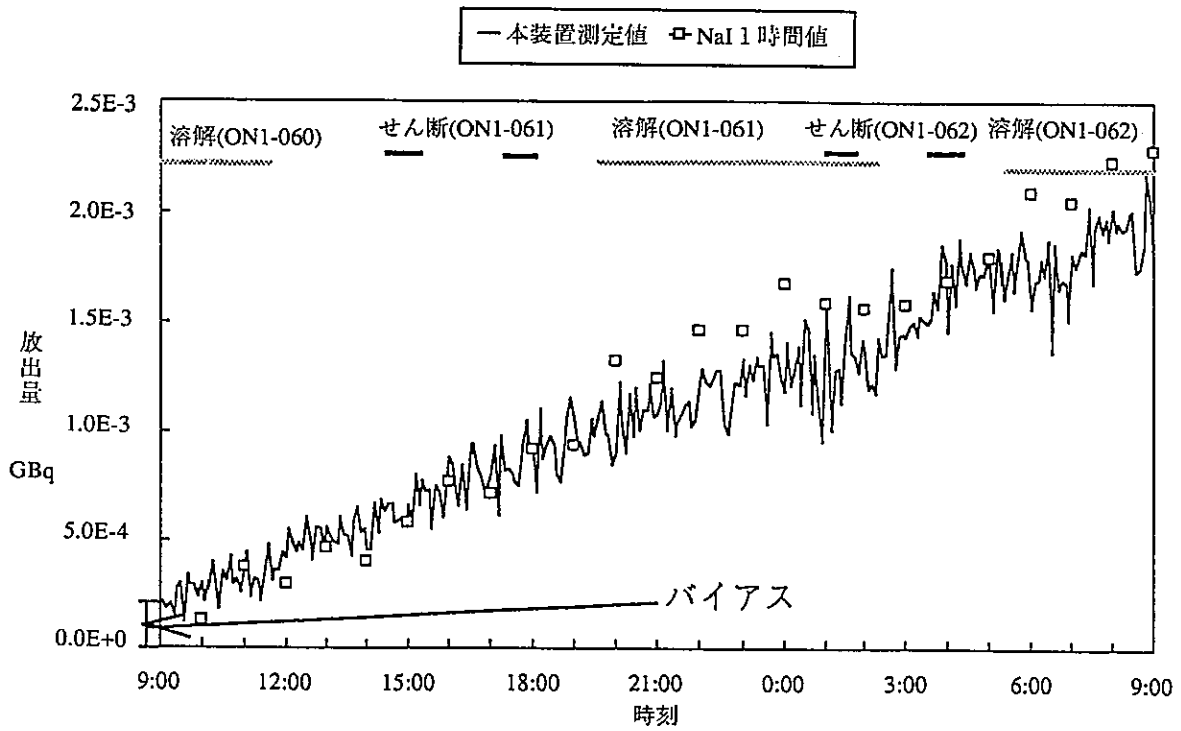


図4.5 連続測定例 (平成4年10月23日~24日)

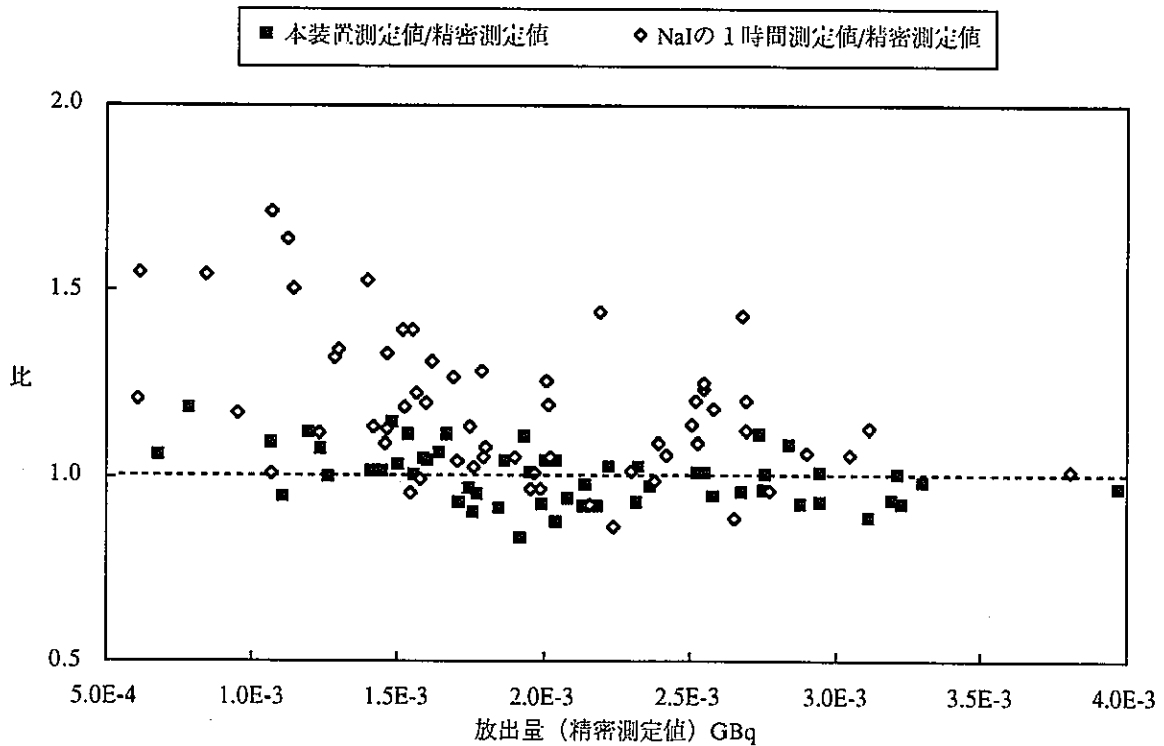


図4.6 精密測定値との比較

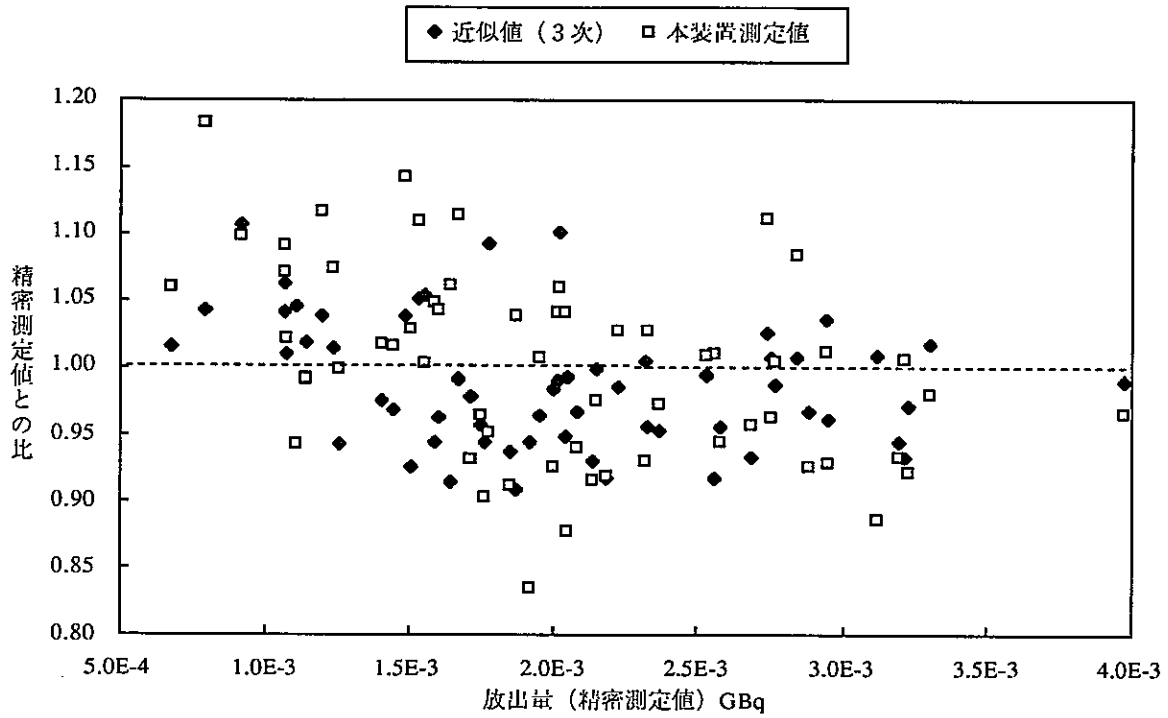


図4.7 近似値と精密測定値との比較

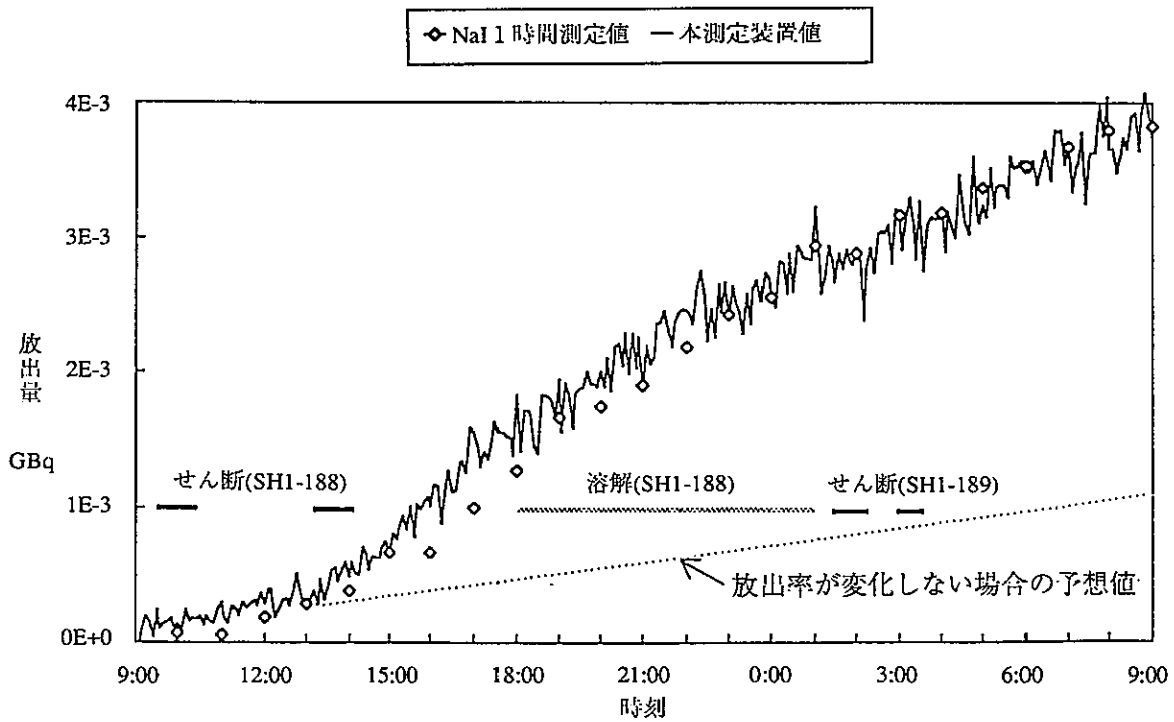


図4.8 放出率が変化した期間の連続測定例
(平成4年10月6日～7日)

付録A

排気モニタにおける ^{129}I の測定の問題点

付録A 排気モニタにおける ^{129}I の測定の問題点

図A. 1 にせん断・溶解時の排気モニタで測定した、 ^{129}I (NaI(Tl)シンチレーション検出器) と ^{85}Kr (GM管) の指示値を示す。 ^{85}Kr が放出されるせん断溶解中は、排気モニタの ^{129}I の指示値は ^{85}Kr の影響を受け変動する。

図A. 2 に排気モニタ (NaI(Tl)シンチレーション検出器) の指示値から求めた ^{129}I の放出量と捕集材を交換して別途半導体検出器 (Ge) で精密測定した放出量の比較を示す。排気中に存在する自然放射能核種であるRn-Tn娘核種が捕集材に吸着した場合、排気モニタの ^{129}I の指示値にRn-Tn娘核種の計数が加算されるため、放出量が正確に評価されない。

表A. 1 に ^{129}I とRn-Tn娘核種及び ^{85}Kr の光子エネルギーと放出率を示す⁽¹⁾。

表A. 1 ^{129}I , Rn-Tn娘核種, ^{85}Kr の γ 線及びX線 (100keV以下) のエネルギーと放出率

	γ 線及びX線 (100keV以下) のエネルギー (keV) 括弧内は放出率
^{129}I γ 線 (^{129}Xe) X線	39.6 (7.5%) K α_1 29.8 (36.9%), K α_2 29.5 (19.9%), K β_1 7.1 (33.6%), K β_2 34.4 (2.4%), K β_3 33.6 (3.7%)
^{212}Pb (^{212}Bi) X線	K α_1 77.1 (17.9%), K α_2 74.8 (10.7%), K β_1 87.4 (4.1%), K β_2 89.9 (1.9%), K β_3 86.8 (2.1%)
^{212}Bi γ 線 X線	39.9 (1.1%) K α_1 10.3 (3.1%), K α_2 12.2 (3.7%)
^{85}Kr	コンプトン散乱線 制動X線

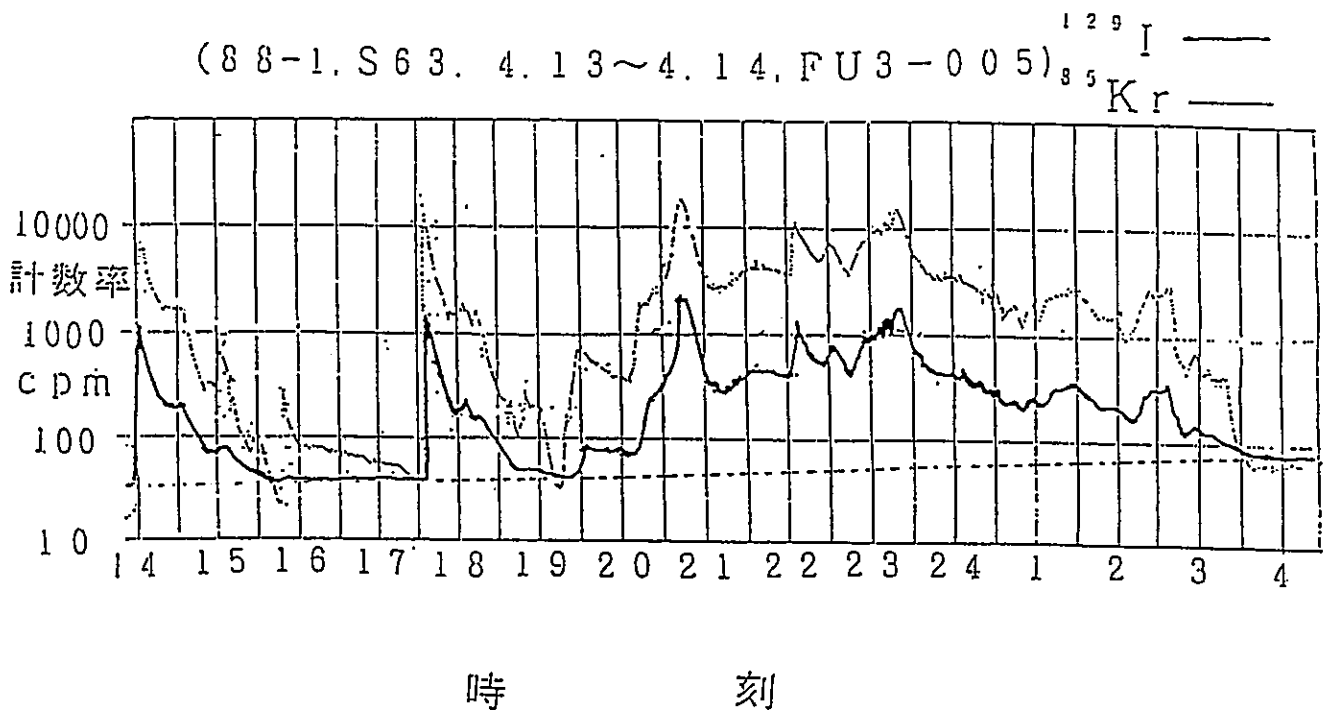
図A. 2に排気モニタで測定される、 ^{129}I と ^{85}Kr 及びRn-Tn娘核種のエネルギー分布を模擬した図を示す。

^{129}I を測定するエネルギー範囲(LL~UL)には、 ^{85}Kr の β 線(687keV)による制動X線と γ 線(517keV)のコンプトン散乱線が、また、Rn-Tn娘核種の ^{212}Bi の γ 線(39.9keV)が混入するため妨害となり、 ^{129}I のみの測定が妨げらる。

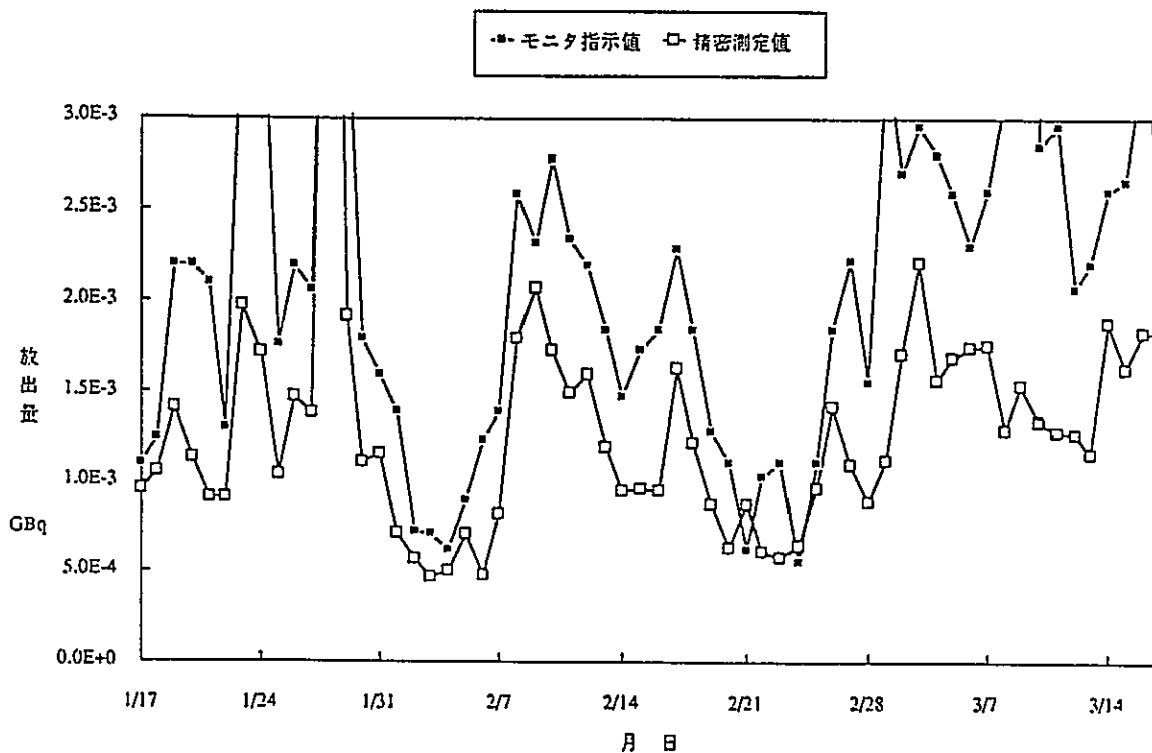
そこで、せん断・溶解中の ^{129}I の監視では、一時的に捕集材へのサンプリングを停止し ^{85}Kr を追い出して ^{129}I を測定するページ法と、排気モニタの α ダスト指示値を読んでRn-Tn娘核種の影響を換算する方法を用いているが、 ^{85}Kr を追い出してから ^{129}I の指示値が安定するまで(時定数を変更しても)少なくとも約10分程度かかり、Rn-Tn娘核種の影響とサンプリング時間を評価して ^{129}I の放出量に換算するまで約20分かかる。しかも、個人の読み取り誤差を考慮すると、誤差は最大 $\pm 70\%$ 程度となる。さらに、ページ法を繰り返すことにより、サンプリング時間が短くなり評価が難しくなる。

参考文献

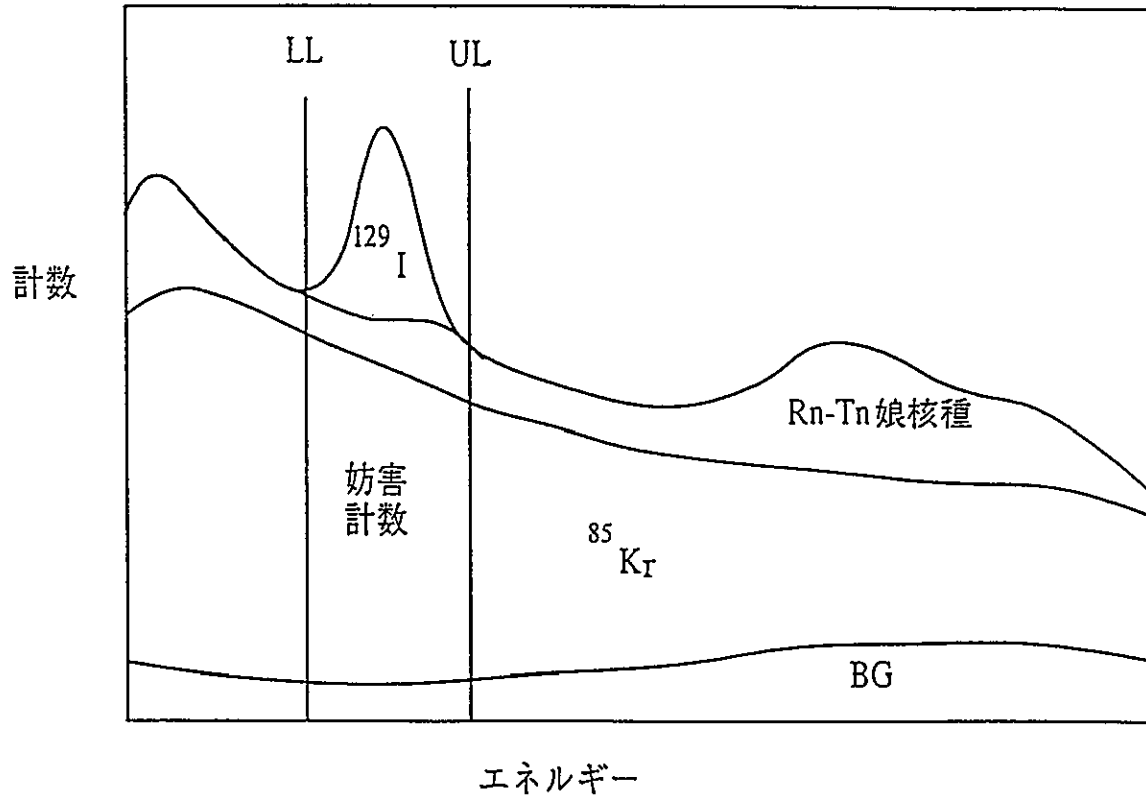
- (1) ICRP : RADIONUCLIDE TRANSFORMATIONS ICRP38 Vols.11-13
- (2) 野口正安 : ガンマ線スペクトロメトリー, 1970, 日刊工業新聞社



図A.1 せん断・溶解中の ^{129}I と ^{85}Kr (L)の排気モニタ指示値



図A.2 排気モニタ指示値から求めた ^{129}I の放出量と精密測定値



図A.3 排気モニタで測定されるエネルギー分布

付録 B

ガウス消去法 (例)

付録B ガウス消去法 (例)

n元連立一次方程式 $Ax = f$ を各要素をもちいて詳しく書くと

$$a_{11}x_1 + a_{12}x_2 + \dots + a_{1n}x_n = f_1 \tag{①}$$

$$a_{21}x_1 + a_{22}x_2 + \dots + a_{2n}x_n = f_2 \tag{②}$$

$$a_{31}x_1 + a_{32}x_2 + \dots + a_{3n}x_n = f_3 \tag{③}$$

.....

$$a_{n1}x_1 + a_{n2}x_2 + \dots + a_{nn}x_n = f_n \tag{④}$$

いま、 $a_{11} \neq 0$ とする。 $a_{11} = 0$ ならば適当に行と列を入れ換えて $a_{11} \neq 0$ とする。
 $m_{11} = a_{21} / a_{11}$ を①の両辺に掛け、②からそれを引くと、②の変数 x_1 が消去される。
 $m_{31} = a_{31} / a_{11}$ を①の両辺に掛け、③からそれを引くと、③の変数 x_1 が消去される。
 以下同様にして、n番目までの式の変数 x_1 が消去される。すなわち

$$a_{11}x_1 + a_{12}x_2 + \dots + a_{1n}x_n = f_1 \tag{①}$$

$$a_{22}^{(2)}x_2 + \dots + a_{2n}^{(2)}x_n = f_2^{(2)} \tag{⑤}$$

.....

$$a_{n2}^{(2)}x_2 + \dots + a_{nn}^{(2)}x_n = f_n^{(2)} \tag{⑥}$$

が考えられる。ただし

$$a_{ij}^{(2)} = a_{ij} - m_{i1}a_{1j}, \quad m_{i1} = a_{i1} / a_{11}$$

$$f_i^{(2)} = f_i - m_{i1}f_1$$

つぎに、n-1元連立1次方程式

$$a_{22}^{(2)}x_2 + \dots + a_{2n}^{(2)}x_n = f_2^{(2)} \tag{⑤}$$

$$a_{32}^{(2)}x_2 + \dots + a_{3n}^{(2)}x_n = f_3 \tag{⑥}$$

.....

$$a_{n2}^{(2)}x_2 + \dots + a_{nn}^{(2)}x_n = f_n^{(2)} \tag{⑦}$$

において $a_{22}^{(2)} \neq 0$ ならば、同様に⑥以降から x_2 が消去される。

あらためて $A = A^{(1)} = (a_{ij}^{(1)})$, $f = f^{(1)}$ と書き, x_1, x_2, \dots, x_{n-1} を上述したように逐次消去すると、結局

$$\begin{aligned} a_{11}x_1^{(1)} + a_{12}^{(1)}x_2 + \dots + a_{1n}^{(1)}x_n &= f_1^{(1)} & \text{①} \\ a_{22}^{(2)}x_2 + \dots + a_{2n}^{(2)}x_n &= f_2^{(2)} & \text{⑤} \\ \dots & & \\ a_{nn}^{(n)}x_n &= f_n^{(n)} & \text{⑧} \end{aligned}$$

が考えられる。ただし $a_{kk} \neq 0$, $k=1, 2, \dots, n$ とする。上の方程式は容易に解くことができ、解ベクトルの成分は x_n, x_{n-1}, \dots, x_1 の順序で求まる。この解法を Gauss 消去法 (Gaussian elimination method) という。

計算例 (三元一次方程式)

$$\begin{aligned} aX + dY + gZ &= W1 & \text{①} \\ bX + eY + hZ &= W2 & \text{②} \\ cX + fY + iZ &= W3 & \text{③} \end{aligned}$$

X	: ^{129}I の計数	W1	: CH 1' の正味の計数
Y	: ^{85}Kr の計数	W2	: CH 2' の正味の計数
Z	: Rn-Tn の計数	W3	: CH 3' の正味の計数
a ~ i	: 影響係数		

$$\text{①} * h \quad ahX + dhY + ghZ = hW1 \quad \text{④}$$

$$\text{②} * g \quad bgX + egY + ghZ = gW2 \quad \text{⑤}$$

$$\text{④} - \text{⑤} \quad (ah - bg)X + (dh - eg)Y = hW1 - gW2 \quad \text{⑥}$$

$$\text{①} * i \quad aiX + diY + giZ = iW1 \quad \text{⑦}$$

$$\text{③} * g \quad cgX + fgY + giZ = gW3 \quad \text{⑧}$$

$$\text{⑦} - \text{⑧} \quad (ai - cg)X + (di - fg)Y = iW1 - gW3 \quad \text{⑨}$$

(ah-bg) = R, (dh-eg) = S, (ai-cg) = T, (di-fg) = Uとすると

$$\textcircled{6} \text{は} \quad RX + SY = hW1 - gW2 \quad \textcircled{6}'$$

$$\textcircled{9} \text{は} \quad TX + UY = iW1 - gW3 \quad \textcircled{9}'$$

$$\textcircled{6}' * U \quad RUX + SUY = U (hW1 - gW2) \quad \textcircled{10}$$

$$\textcircled{9}' * S \quad STX + SUY = S (iW1 - gW3) \quad \textcircled{11}$$

$$\textcircled{10} - \textcircled{11} \quad (RU - ST) X = U (hW1 - gW2) - S (iW1 - gW3) \quad \textcircled{12}$$

$$X = \frac{(U (hW1 - gW2) - S (iW1 - gW3))}{(RU - ST)}$$

$$= \frac{(di-fg) (hW1 - gW2) - (dh-eg) (iW1 - gW3)}{(ah-bg) (di-fg) - (dh-eg) (ai-cg)}$$

$$= \frac{W1 (h (di-fg) - i (dh-eg)) - W2g (di-fg) + W3g (dh-eg)}{(ah-bg) (di-fg) - (dh-eg) (ai-cg)} \quad \textcircled{13}$$