

# 放射能画像解析手法を用いたRn-Tn娘核種弁別測定法の開発

1995年1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

## 放射能画像解析手法を用いたRn-Tn娘核種弁別測定法の開発

石 田 順一郎<sup>1)</sup>  
二之宮 和 重<sup>1)</sup>  
猿 田 順 一<sup>1)</sup>  
田 崎 隆<sup>1)</sup>  
小 池 雄 二<sup>2)</sup>

期 間 1993年4月1日～1994年12月31日

## 要 旨

プルトニウムの空气中放射性物質濃度の管理は、定置式ダストモニタによる連続監視及び空気吸引ろ紙に捕集されたプルトニウムの放射能を測定することで行っている。

この時、ろ紙上には、自然放射性核種であるRn-Tn娘核種も同時に捕集されるため、集塵中及び集塵直後は、低い放射能レベルのプルトニウムの有無の判断及び定量が困難である。また、プルトニウムによる内部被ばくが発生した場合、被ばく線量の評価においては、プルトニウムの粒子径が重要となるが、これまではプルトニウムの粒子径を迅速に測定・評価することが困難であった。

そこで、Rn-Tn娘核種を弁別し、迅速にプルトニウムの空气中放射性物質濃度及び粒子径の測定・評価を実施するため、放射能画像解析手法を用いたRn-Tn娘核種の弁別測定法及びプルトニウム粒子径測定法の開発を実施した。

本開発の結果、空気吸引ろ紙上のRn-Tn娘核種の放射能が約2Bq/試料まで共存したとしても、プルトニウムの弁別評価が可能であり、この条件下で約0.073Bqのプルトニウムを定量することができた。また、Rn-Tn娘核種の放射能が約10Bq/試料の共存条件下で、再処理施設における<sup>239</sup>Puの立入規制値(4.7×10<sup>9</sup>Bq/cm<sup>3</sup>)を評価することができた。本装置は、10分の測定時間で上記の空气中放射性物質濃度の弁別評価が可能であることから、緊急時における放射線管理対応の一つの手法として十分有効である。

プルトニウムの粒子径については、カスケードインパクト法で測定した空気力学的放射能中央径(以下、「AMAD」という。)と比較・評価した結果、カスケードインパクト法による測定値約3～4μmに対して、本方法による評価では、PuO<sub>2</sub>の密度を11.46g/cm<sup>3</sup>と仮定すると約4～5μmであり、良い一致を示した。

<sup>1)</sup> 放射線管理第二課

<sup>2)</sup> 常陽産業(株)

## 目 次

1. 目的	1
2. 開発経緯	2
3. Rn-Tn娘核種の崩壊特性	3
4. 画像処理の原理	4
4.1 Rn-Tn娘核種の弁別測定法の原理	4
4.1.1 $\alpha$ 線の検出	4
4.1.2 フィルタリング処理	4
4.1.3 スポット抽出処理	5
4.1.4 均一化処理	5
4.2 粒子径測定法の原理	5
5. 試験方法	6
5.1 装置の概要	6
5.2 試験項目	6
5.3 基本性能試験方法	6
5.3.1 ディスクリレベルとVIMの特性試験方法	6
5.3.2 VIMと計数効率の特性試験方法	6
5.3.3 エネルギー特性試験方法	7
5.3.4 $\beta$ 、 $\gamma$ 線の感度試験方法	7
5.3.5 バックグラウンド計数率及び計数効率測定試験方法	7
5.3.6 定量性能試験方法	7
5.4 Rn-Tn娘核種の弁別試験方法	7
5.4.1 Rn-Tn娘核種の弁別試験方法	7
5.4.2 Rn-Tn娘核種混在場における <sup>239</sup> Pu検出下限濃度の算出試験方法	7
5.4.3 Rn-Tn娘核種混在場におけるPu定量試験方法	7
5.5 粒子径の測定試験方法	7
6. 試験結果及び考察	8
6.1 基本性能試験	8
6.1.1 ディスクリレベルとVIMの特性試験	8
6.1.2 VIMと計数効率の特性試験	8
6.1.3 エネルギー特性試験	8
6.1.4 $\beta$ 、 $\gamma$ 線の感度試験	8
6.1.5 バックグラウンド計数率及び計数効率測定試験	8
6.1.6 定量性能試験	9

6.2	R <sub>n</sub> -T <sub>n</sub> 娘核種の弁別試験	10
6.2.1	R <sub>n</sub> -T <sub>n</sub> 娘核種の弁別試験	10
6.2.2	R <sub>n</sub> 娘核種混在場における <sup>239</sup> Pu検出下限濃度の算出試験	10
6.2.3	R <sub>n</sub> 娘核種混在場におけるPu定量試験	11
6.3	粒子径の測定試験	11
7.	まとめ	13
7.1	基本性能	13
7.2	R <sub>n</sub> -T <sub>n</sub> 娘核種弁別性能	13
7.3	緊急時の放射能評価	13
7.4	内部被ばく線量評価への粒子径データの適用	13
8.	今後の課題	14
9.	参考文献	15
表3.1	核種データ	16
表5.1	主要構成機器の仕様	16
表5.2	使用線源の仕様	17
表6.1	構成機器の設定値	17
表6.2	バックグラウンド計数率及び計数効率	17
表6.3	ZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比較データ	18
表6.4	スポット抽出処理前後の放射能強度比較データ	19
表6.5	粒子径比較結果	19
図3.1	ウラン系列の崩壊図	20
図3.2	トリウム系列の崩壊図	20
図3.3	RaAの減衰曲線	21
図3.4	ThAの減衰曲線	21
図4.1	α線検出の原理図	22
図4.2	スポット抽出処理の概念図	22
図5.1	画像処理装置の構成	23
図6.1	ディスクリレベルとVIMの特性試験結果	24
図6.2	VIMと計数効率の特性試験結果	24
図6.3	α線エネルギー特性試験結果	24
図6.4	ZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比較結果	25
図6.5	ZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比	25
図6.6	スポット抽出処理前後の放射能強度比較結果	26
図6.7	スポット抽出処理前後の放射能強度比	26
図6.8	スポット抽出処理前後の放射能強度比 (近似曲線含む)	27

図 6.9	スポット抽出処理前後の放射能強度比較結果（補正有り）	28
図 6.10	スポット抽出処理前後の放射能強度比（補正有り）	28
図 6.11	Rn 娘核種の弁別結果	29
図 6.12	Tn 娘核種の弁別結果	29
図 6.13	Rn 娘核種の除去率	30
図 6.14	Rn 娘核種混在場における $^{239}\text{Pu}$ 検出下限濃度	30
図 6.15	Rn 娘核種混在場における Pu 定量試験結果	31
図 6.16	焙焼還元工程の粒子径分布（ろ紙単独評価）	32
図 6.17	焙焼還元工程の粒子径累積度数（ろ紙単独評価）	32
図 6.18	分析試料採取工程の粒子径分布	33
図 6.19	分析試料採取工程の粒子径累積度数	34
図 6.20	焙焼還元工程の粒子径分布	35
図 6.21	焙焼還元工程の粒子径累積度数	36
図 6.22	廃液蒸発処理工程の粒子径分布	37
図 6.23	廃液蒸発処理工程の粒子径累積度数	38

## 1. 目的

プルトニウムの空気中放射性物質濃度の管理は、定置式ダストモニタによる連続監視及び空気サンプリングろ紙の採取、測定により行っている。これらの管理は、いずれも空気を吸引し、ろ紙上に捕集したプルトニウムの放射能を測定することで行っている。

しかし、ろ紙上には、自然放射性核種である $Rn-Tn$ 娘核種も同時に捕集されるため、それらから放出される放射線により、集塵中及び集塵直後は、低い放射能レベルのプルトニウムの有無の判断及び定量が困難である。

また、プルトニウムの吸入が発生した場合、内部被ばく線量の評価においては、プルトニウムの粒子径が重要となる。現状では、緊急時にプルトニウムの粒子径を迅速に測定することが困難である。

そこで、緊急時のプルトニウムの空気中放射性物質濃度及び粒子径の測定・評価を迅速に行うことを目的として、放射能画像解析手法を用いた $Rn-Tn$ 娘核種弁別測定法及びプルトニウム粒子径測定法の開発を実施した。

## 2. 開発経緯

開発経緯を以下に示す。

### (1) 1989年度 空气中 $\alpha$ 放射能モニタリング装置の開発<sup>1)</sup>

名古屋大学に委託し、放射能画像解析手法を用いたプルトニウムモニタリング装置の開発を実施した。その結果、測定時間が1時間の場合、約 $1.7\text{Bq}$ ／試料のRn-Tn娘核種混在場で $3.0 \times 10^3\text{Bq}$ ／試料（粒子径 $0.63\mu\text{m}$ ）のプルトニウムを測定・評価することができた。

### (2) 1990年度 空气中 $\alpha$ 放射能モニタリング装置の開発<sup>2)</sup>

上記の結果を踏まえ、放射能画像解析手法の改善を実施し、10分の測定時間で下記のプルトニウムを測定・評価することができた。

- ①  $\text{PuO}_2$  :  $3.3 \times 10^2\text{Bq}$ ／試料（粒子径 $1.41\mu\text{m}$ ）
- ②  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  :  $1.3 \times 10^1\text{Bq}$ ／試料（粒子径 $3.4\mu\text{m}$ ）

### (3) 1991～1994年度 放射能画像解析手法を用いたRn-Tn娘核種弁別測定法の開発

(1)及び(2)項の結果に基づき、再処理施設のRn-Tn娘核種の放射エネルギーに応じたプルトニウムの測定・評価及び立入規制値等との比較・評価を行った。また、プルトニウムの粒子径については、カスケードインパクト法で測定したAMADと比較・評価した。



### 3. Rn-Tn娘核種の崩壊特性

プルトニウムの測定・評価を行う上で障害となる自然放射性核種は、 $^{222}\text{Rn}$ 娘核種（以下「Rn娘核種」という。）の $^{218}\text{Po}(\text{RaA})$ 、 $^{214}\text{Po}(\text{RaC}')$ 及び $^{220}\text{Rn}$ 娘核種（以下「Tn娘核種」という。）の $^{216}\text{Po}(\text{ThA})$ 、 $^{212}\text{Bi}(\text{ThC})$ 、 $^{212}\text{Po}(\text{ThC}')$ である。図3.1にウラン系列、図3.2にトリウム系列の崩壊図を示す。表3.1にRn-Tn娘核種及びプルトニウムの核種データを示す。

これらのRn-Tn娘核種の内、RaAとThAは、半減期がそれぞれ3.05分と0.15秒と短いため、通常では、空気吸引ろ紙を回収し、本装置で測定する時点で十分減衰し、測定上問題とならない。図3.3にRaAの減衰曲線、図3.4にThAの減衰曲線を示す。

以上のことから、プルトニウムの測定・評価を行う上で障害となる自然放射性核種は、Rn娘核種が半減期26.8分のRaBを親核種とするRaC'、Tn娘核種が半減期10.64時間のThBを親核種とするThC及びThC'となる。

つまり、Rn又はTn娘核種の1スポットが空気吸引ろ紙に付着したとすると、そのスポットからは、最大2個の $\alpha$ 線しか放出しないことになる。ここで述べる1スポットとは、吸引ろ紙上に捕集されたRn又はTn娘核種の内、本装置の分解能で分解処理可能な最小の粒子のことである。

## 4. 画像処理の原理

### 4.1 R<sub>n</sub>-T<sub>n</sub>娘核種の弁別測定法の原理

R<sub>n</sub>-T<sub>n</sub>娘核種の崩壊特性を利用して、R<sub>n</sub>-T<sub>n</sub>娘核種を除去し、プルトニウムの測定・評価を行う。具体的には、以下の方法で行う。

- ① α線の検出
- ② フィルタリング処理（平滑化処理）
- ③ スポット抽出処理（プルトニウムスポット抽出処理）
- ④ 均一化処理（効率補正処理）
- ⑤ 放射能の定量

#### 4.1.1 α線の検出

図4.1にα線検出の原理図を示す。

##### (1) ZnS (Ag) シンチレータによるα線の検出

ZnS (Ag) シンチレータ (5 mg/cm<sup>2</sup>) でα線のみを検出する。

##### (2) UVレンズによる集光

ZnS (Ag) シンチレータからの光子を集光する。

##### (3) 2次元光子計数管による光子の増幅

- ① 光電面で光子を電子に変換する。
- ② 2段Microchannel Plate (以下「MCP」という。) で電子を増幅する。
- ③ 蛍光面で電子を光に変換する。

##### (4) 高感度TVカメラによる画像の撮影

高感度TVカメラで光の画像を撮影する。

#### 4.1.2 フィルタリング処理

フィルタリング処理は、プルトニウムとR<sub>n</sub>-T<sub>n</sub>娘核種が混在する試料の積算画像上で、光学的なノイズを除去し、プルトニウムとR<sub>n</sub>-T<sub>n</sub>娘核種のスポットを強調する処理である。

この処理は、任意の画素値を適当なマトリックスを用いて周囲の画素に分配することで画像の平滑化及びノイズの除去を行う。任意の画素値を $f_0$ としたときに、マトリックス法を用いたフィルタリング処理後の画素値 $g_0$ は、式(4.1)で与えられる。

$$g_0 = (2f_0 + f_1 + \dots + f_8) / 10 \quad \text{-----} \quad (4.1)$$

式(4.1)は、注目する画素値 $f_0$ の2倍の値に周囲8方向の画素値 $f_1 \sim f_8$ を加えることである。この処理を行うことによって、プルトニウム粒子スポットの明確な画像が得られる。

#### 4.1.3 スポット抽出処理

フィルタリング処理を行った積算画像上には、 $R_n - T_n$ 娘核種のシングルスポットとフィルタリング処理で除去できなかった光学的ノイズスポットが存在する。したがって、これらのスポットを除去し、プルトニウム粒子のみのスポットを抽出する必要がある。

スポット抽出処理は、積算画像上であるしきい値「Threshold Level 1」（以下「TL 1」という。）で光学的ノイズスポットを除去し、TL 1以上のスポットを抽出する。次に $R_n - T_n$ 娘核種のカウント数を除去するためのしきい値「Threshold Level 2」（以下、「TL 2」という。）で $R_n - T_n$ 娘核種を除去し、Pu粒子のみを取り出す。TL 2は、3.項の $R_n - T_n$ 娘核種の崩壊特性で示したとおり、 $R_n$ 又は $T_n$ 娘核種が1スポット当たりの最大放出する $\alpha$ 粒子が2個であることを利用し、スポットのカウント数が2個までのものについて除去するものである。図4.2にスポット抽出処理の概念図を示す。

#### 4.1.4 均一化处理

本装置は、1スポットの放射能を求め、これを積算して全放射能とするため、画像が位置によって不均一となっていると、定量的な評価が不可能となる。

均一化处理は、あらかじめ放射能強度が一様な面線源を測定して位置による効率の違いを補正するもので、個々のスポットを式(4.2)で規格化する処理である。

$$C_p' = C_p \times (S_c / S_p) \quad \text{-----} \quad (4.2)$$

$C_p'$  : 均一化处理後の画素値

$C_p$  : 均一化处理前の画素値

$S_c$  : 標準線源による中心の画素値

$S_p$  : 標準線源による $C_p$ と同じ位置の画素値

#### 4.2 粒子径測定法の原理

放射能から粒子径への変換は、粒子を球形と仮定すれば、式(4.3)、(4.4)<sup>3)</sup>を用いて行うことができる。

$$PuO_2 : Y = (1.39 \times D)^{1/3} \quad \text{-----} \quad (4.3)$$

$$Pu(NO_3)_4 : Y = (5.31 \times D)^{1/3} \quad \text{-----} \quad (4.4)$$

Y : 粒子の直径 ( $\mu m$ )

D : 放射能 (d p m)

## 5. 試験方法

### 5.1 装置の概要

本装置は、 $\alpha$ 線の入射で生じたZnS (Ag) シンチレータからの微弱な発光を2次元光子計数管で増幅し、高感度TVカメラで画像を撮影する。この画像をイメージプロセッサで積算及びスポット抽出処理等のソフト処理を行い、 $Rn-Tn$ 娘核種の弁別及び粒子径の算出を行う。

図5.1に画像処理装置の構成を示す。表5.1に主要構成機器の仕様、表5.2に使用線源の仕様を示す。

### 5.2 試験項目

#### (1) 基本性能試験

- ① ディスクリレベルとVIMの特性試験
- ② VIMと計数効率の特性試験
- ③ エネルギー特性試験
- ④  $\beta$ 、 $\gamma$ 感度試験
- ⑤ バックグラウンド計数率及び計数効率測定試験
- ⑥ 定量性能試験

#### (2) $Rn-Tn$ 娘核種の弁別試験

- ①  $Rn-Tn$ 娘核種の弁別試験
- ②  $Rn-Tn$ 娘核種混在場における $^{239}Pu$ 検出限界濃度の算出試験
- ③  $Rn-Tn$ 娘核種混在場における $Pu$ 定量試験

#### (3) 粒子径の測定試験

- ① カスケードインパクト法との比較試験

### 5.3 基本性能試験方法

#### 5.3.1 ディスクリレベルとVIMの特性試験方法

高感度TVカメラへの印加電圧であるVIMを5、6、7、8と設定したときに、ディスクリレベルを可変させ、バックグラウンド計数率を測定する。この測定結果から、各VIMごとの最もバックグラウンド計数率の低いディスクリレベルを決定する。

#### 5.3.2 VIMと計数効率の特性試験方法

5.3.1項で決定したVIMとディスクリレベルを使用し、 $U_3O_8$ 線源の計数効率を測定する。この測定結果をグラフにプロットし、最適なVIMを決定する。

### 5.3.3 エネルギー特性試験方法

$^{230}\text{Th}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 線源を測定して計数効率を算出し、エネルギー特性を確認する。

### 5.3.4 $\beta$ 、 $\gamma$ 線の感度試験方法

$\beta$ 線源として $^{90}\text{Sr}$ 、 $\gamma$ 線源として $^{60}\text{Co}$ を測定し、測定対象線種以外の感度がないことを確認する。

### 5.3.5 バックグラウンド計数率及び計数効率測定試験方法

バックグラウンド計数率と計数効率から検出限界濃度を算出し、既存測定装置及び管理基準値等と比較・評価する。

### 5.3.6 定量性能試験方法

Pu試料を捕集した空気吸引ろ紙を本装置で測定し、下記項目の比較・評価を行う。

- (1) ZnS (Ag) カウンタと本装置の定量値
- (2) スポット抽出処理前後における定量値

## 5.4 Rn-Tn娘核種の弁別試験方法

### 5.4.1 Rn-Tn娘核種の弁別試験方法

Rn-Tn娘核種を含む試料を測定してスポット抽出処理を行い、下記項目について比較・評価する。

- (1) Rn-Tn娘核種の全放射能と除去後の放射能
- (2) Rn-Tn娘核種の全放射能に対する除去率

### 5.4.2 Rn-Tn娘核種混在場における $^{239}\text{Pu}$ 検出下限濃度の算出試験方法

5.4.1項で求めたRn-Tn娘核種除去後の放射能を一週間平均濃度に換算し、 $^{239}\text{Pu}$ 立入規制値と比較・評価する。

### 5.4.3 Rn-Tn娘核種混在場におけるPu定量試験方法

Rn-Tn娘核種の画像データにプルトニウム画像データを重ね合わせ、スポット抽出処理によってRn-Tn娘核種を除去する。このRn-Tn娘核種除去値をプルトニウム定量値として評価する。

## 5.5 粒子径の測定試験方法

カスケードインパクト法で捕集したPuO<sub>2</sub>試料を本装置で測定し、AMADの比較・評価を行う。

## 6. 試験結果及び考察

### 6.1 基本性能試験

#### 6.1.1 ディスクリレベルとVIMの特性試験

図6.1にディスクリレベルとVIMの特性試験結果を示す。

この結果から、バックグラウンド計数率が低く安定するディスクリレベルは、下記のとおりとなる。

- ① VIM 5 → ディスクリレベル 70
- ② VIM 6 → ディスクリレベル 120
- ③ VIM 7 → ディスクリレベル 170
- ④ VIM 8 → ディスクリレベル 250

#### 6.1.2 VIMと計数効率の特性試験

図6.2にVIMと計数効率の特性試験結果を示す。

この結果から、高感度TVカメラへの印加電圧であるVIM7と8では、計数効率がほとんど変化しないことが分かる。

したがって、図6.1及び図6.2から光学的なノイズをより低くおさえるため、VIMを「7」、ディスクリレベルを「170」とする。

表6.1に構成機器の設定値を示す。

#### 6.1.3 エネルギー特性試験

図6.3に $\alpha$ 線エネルギー特性試験結果を示す。

この結果から、 $^{237}\text{Np}$ (4.788MeV)、 $^{241}\text{Am}$ (5.486MeV)、 $^{244}\text{Cm}$ (5.805MeV)のエネルギーに依存せず、定量できることが分かった。

#### 6.1.4 $\beta$ 、 $\gamma$ 線の感度試験

$\beta$ 、 $\gamma$ 線の感度は、下記のとおりであり、実用上、全く感度がないことが確認できた。

- ①  $\beta$ 線源 ( $^{90}\text{Sr}$ ) の感度： $9.0 \times 10^{-2}$  (%)
- ②  $\gamma$ 線源 ( $^{60}\text{Co}$ ) の感度： $1.3 \times 10^{-2}$  (%)

#### 6.1.5 バックグラウンド計数率及び計数効率測定試験

表6.2にバックグラウンド計数率及び計数効率の比較結果を示す。

バックグラウンド計数率は、既存の測定装置の約10倍であるが、計数効率が既存のものより高いために、測定時間10分で既存の測定装置と同等の検出下限値である約 $7 \times 10^{-2} \text{Bq}$ が得られた。この値は、一週間吸引したろ紙の場合、一週間平均濃度で約 $1 \times 10^{-10} \text{Bq/cm}^3$ に相当し、 $^{239}\text{Pu}$ に対する立入規制区域設定基準である $4.7 \times 10^{-9} \text{Bq/cm}^3$ を十分下回り、実用上運用が可能である。

### 6.1.6 定量性能試験

#### (1) ZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比較

37サンプルのPu試料について比較試験を実施した。試料形状は、有効径45mmφのダストろ紙(HE-40T)である。表6.3にZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比較データを示す。この内、PuO<sub>2</sub>試料が試料番号P1~P35の35サンプル、Pu(NO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>がS1、S2の2サンプルである。

図6.4にZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比較を示す。

図6.5にZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比を示す。

これらの結果から、表6.3の試料番号P16、P25、P35、S1、S2の5サンプルを除くと放射能強度比の平均は、 $1.000 \pm 0.136$ であり、定量性能が優れている。

試料番号P16、P25、P35、S1、S2の5サンプルについては、画像処理装置の定量値が約1.3から2倍大きい値を示すとともに、その傾向はS1サンプルを除くと、放射能強度の小さなサンプルが多い。この原因としては、統計的な誤差が考えられる。

#### (2) スポット抽出処理前後の放射能強度比較結果

(1)項で用いた37サンプルのPu試料について、スポット抽出処理前後の放射能強度の比較試験を実施した。スポット抽出処理は、3.項で述べたとおり、Rn-Tn娘核種の崩壊特性を利用して1スポット当たり2カウントまでのスポットを除去する処理であるが、この処理がPuの定量値に与える影響を評価する。

表6.4にスポット抽出処理前後の放射能強度比較データを示す。

図6.6にスポット抽出処理前後の放射能強度比較結果を示す。

図6.7にスポット抽出処理前後の放射能強度比を示す。

図6.6、図6.7から、スポット抽出処理後の定量値は、処理前の定量値に比べて全ての比較サンプルが小さい値となった。特に、放射能強度の小さいサンプルは、その影響が顕著である。これは、Pu試料であっても1スポット当たり2カウントしか放出しないスポットが多数存在することを意味する。表6.3の結果から、スポット抽出処理後の定量値は、処理前の定量値に比べて平均で約50%、最大で約90%小さくなる。また、図6.7から放射能強度比が小さくなる傾向は、放射能強度の小さなサンプルほど大きくなる。これは、放射能の定量性能としては容認できない。

そこで、スポット抽出処理後の定量性能を向上させるため、処理後の定量値の補正を実施した。表6.3のスポット抽出処理後の定量値に対する放射能比(処理後/処理前)を最小自乗法で近似した式を(6.1)に示す。

$$A = 0.115 \times \ln(a) + 0.439 \quad \text{-----} \quad (6.1)$$

A : 近似後の放射能比、

a : スポット抽出処理後の放射能強度(Bq)

図6.8にスポット抽出処理前後の放射能強度比(近似曲線含む)を示す。

式(6.1)から、スポット抽出処理後の放射能強度は、式(6.2)で補正することができる。

$$A' = a / A = a / \{0.115 \times L n (a) + 0.439\} \quad \text{----- (6.2)}$$

$A'$  : 補正後の放射能強度(Bq)

式(6.2)を用いて、図6.6及び図6.7のグラフのスポット抽出処理後の放射能強度を補正したグラフをそれぞれ図6.9及び図6.10に示す。

この結果から、スポット抽出処理前後の放射能強度比は、見かけ上改善され、この補正の有効性が確認された。しかし、スポット抽出処理前後の放射能強度比が1から大きく離れる傾向がある。これは、計数値が小さいことによる統計誤差の増大に起因していると考えられる。±50%の精度で評価できるのは、スポット抽出処理前の放射能強度で約5Bq程度であり、これ以下では、測定精度が著しく低下することに留意する必要がある。

## 6.2 Rn-Tn娘核種の弁別試験

### 6.2.1 Rn-Tn娘核種の弁別試験

Rn-Tn娘核種の弁別試験は、Rn-Tn娘核種の濃度が高い換気のされていない建屋でRn-Tn娘核種のみを空気吸引ろ紙に捕集後、直ちに本装置で測定し、スポット抽出処理後の定量値を評価することである。

Rn娘核種の捕集については、短時間(約10分)サンプリングを行ったものであり、Tn娘核種の捕集については、長時間(約2日)サンプリングしてから約3時間(Rn娘核種の減衰時間)経過した試料を測定したものである。

図6.11にRn娘核種の弁別結果を示す。

図6.12にTn娘核種の弁別結果を示す。

この結果から、3.項のRn-Tn娘核種の崩壊特性で示したとおり、1スポット当たり2カウント除去することでRn娘核種及びTn娘核種を弁別されることが確認された。Rn娘核種及びTn娘核種とも同程度の弁別性能を示しており、表6.2の検出下限値 $7.3 \times 10^{-2}$ Bqから約2Bqまでは、Rn-Tn娘核種を100%弁別することができる。それ以降は、放射能強度が大きくなるに従って弁別性能が低下する傾向を示す。これは、放射能強度が大きくなるに従ってスポット数が増加し、本装置の分解能で処理しきれないためである。これが、本装置の弁別性能の限界である。

以降は、Rn娘核種及びTn娘核種とも同様の弁別性能を示しているのでRn娘核種のみについて示す。

図6.13にRn娘核種の除去率を示す。

この結果から、Rn娘核種放射能強度が約2Bqまでの除去率は、100%である。約10Bqでの除去率が80%であり、これをすぎると急激に除去率が低下する。

### 6.2.2 Rn娘核種混在場における<sup>239</sup>Pu検出下限濃度の算出試験

Rn娘核種混在場における<sup>239</sup>Pu検出下限濃度の算出試験は、6.2.1項で弁別したRn娘核種の除去値を一週間平均の検出下限濃度に換算し、<sup>239</sup>Pu立入規制値と比較・評価することである。



図6.14にRn娘核種混在場における<sup>239</sup>Pu検出下限濃度を示す。

この結果から、Rn娘核種の放射能強度が約2Bqまで、本装置の検出下限濃度である $1.3 \times 10^{-10}$ Bq/cm<sup>3</sup>の測定・評価が可能である。<sup>239</sup>Pu立入規制値( $4.7 \times 10^{-9}$ Bq/cm<sup>3</sup>)の検出は、Rn娘核種の放射能強度約10Bqの状況まで可能である。

### 6.2.3 Rn娘核種混在場におけるPu定量試験

Rn娘核種混在場におけるPu定量試験は、既知のPu1.2Bq(<sup>239</sup>Pu立入規制相当値の約1/2)の画像にRn娘核種の画像をミックスし、スポット抽出処理及び定量値補正処理を行って既知Pu量と比較・評価することである。

図6.15にRn娘核種混在場におけるPu定量試験結果を示す。

この結果から、Rn娘核種除去後のPu定量値は、既知Pu量1.2Bqに対して約75%大きい2.1Bqとなった。Rn娘核種の放射能強度約2BqまでRn娘核種の影響を受けずにPuの定量が可能であるが、それ以降は、Rn娘核種の影響で定量値が大きくなり、Rn娘核種の放射能強度約4Bqで<sup>239</sup>Pu立入規制相当値に達する。Rn娘核種の弁別性能を持たない既存の放射能測定装置で測定した場合は、既知Pu量1.2BqとRn娘核種1.4Bqで<sup>239</sup>Pu立入規制相当値に達してしまうことを考慮すると、本装置の有効性が十分確認できる。

### 6.3 粒子径の測定試験

粒子径の測定試験は、Pu転換施設で平成6年度に実施された設備の更新工事時にカスケードインパクト法による粒子径測定試験で捕集した試料を本装置で測定し、AMAD等の比較・評価を実施した。試料は、すべて実質的にPuO<sub>2</sub>であり、下記の3工程から各1セット選定して実施した。1セットは、13サンプルである。

- (1) 分析試料採取工程のフィルタユニット(ユニット番号:P03)
- (2) 焙焼還元工程の焙焼還元炉(ユニット番号:P14)
- (3) 廃液蒸発処理工程の廃液蒸発缶(ユニット番号:P71)

粒子径の比較・評価については、下記2項目を実施した。なお、画像処理装置の粒子径については、AMADに換算するため、PuO<sub>2</sub>の密度(11.46g/cm<sup>3</sup>)の平方根を乗じた。<sup>4)</sup>

- (1) 代表的なろ紙1枚の分級径(アンダーセンサンプラの50%cut off diameter)と画像処理装置で求めた平均粒子径(中央径)との比較・評価
- (2) 13サンプルの各分級ステージ毎の放射能積算データとの比較・評価

アンダーセンサンプラの3.4μm分級径と画像処理装置の平均粒子径との比較・評価は、焙焼還元工程の試料について実施した。その結果を図6.16及び図6.17に示す。

これらの結果から、分級径3.4μmに対して画像処理装置の平均粒子径は、約2μm程度大きい5.3μmである。

それぞれの工程の13サンプルを積算した粒子径分布と粒子径累積度数を図6.18から図6.23に示す。表6.4に粒子径比較結果を示す。

これらの結果から、粒子径分布は、3工程ともカスケードインパクト法が約 $3\ \mu\text{m}$ にピークを持つのに対して画像処理装置は、検出下限の約 $2\ \mu\text{m}$ にピークを持っている。累積度数分布からの平均粒子径は、カスケードインパクト法が約 $3\sim 4\ \mu\text{m}$ であるのに対して、画像処理装置は約 $4\sim 5\ \mu\text{m}$ である。

以上の粒子径の比較・評価の結果、必ずしも一致しない結果となった。これは、画像処理装置の粒子径の検出下限が約 $2\ \mu\text{m}$ と大きいため、それより小さな粒子径がカットされ、平均粒子径が上側にシフトしていると考えられる。今後は、比較サンプル数を増やして、その傾向を把握する必要がある。

## 7. まとめ

### 7.1 基本性能

画像処理装置は、表6.2に示したとおり既存の測定装置と同等の基本性能を有するとともに、一週間吸引したろ紙試料を測定した場合、 $^{239}\text{Pu}$ 立入規制区域設定レベルの空气中放射性物質濃度に相当する検出下限値が得られることから、放射能測定装置として十分運用可能である。

### 7.2 Rn-Tn娘核種弁別性能

Rn-Tn娘核種の弁別性能は、空気吸引ろ紙上の放射能強度約2BqまでRn-Tn娘核種を100%除去し、約10Bqまで $^{239}\text{Pu}$ 立入規制レベルを評価できることから、施設の通常のRn-Tn娘核種放射能を把握しておくことで、その放射能に応じたプルトニウムの測定・評価が可能であるが、下記事項について留意する必要がある。

- (1) プルトニウムの定量性能は、放射能強度が小さくなるとその精度が低下すること。
- (2) Rn-Tn娘核種の弁別性能の上限値は、空気吸引ろ紙上のRn-Tn娘核種の放射能強度が約10Bqであること。

### 7.3 緊急時の放射能評価

画像処理装置は、Rn-Tn娘核種弁別性能を有し、10分の測定時間で評価が可能であることから、緊急時のRn-Tn娘核種混在場におけるプルトニウムの測定・評価を迅速に行うことができる。従来の減衰測定や核種分析等の測定時間を要する手法に変わる一つの手法として十分有効である。

### 7.4 内部被ばく線量評価への粒子径データの適用

カスケードインパクト法のAMAD及びろ紙の分級径との比較・評価を行った結果、必ずしも一致しない結果となったが、オーダーレベルの評価としては、有効であると考えられる。

現段階での内部被ばく線量算出への適用は不可能であるが、今後は、吸入事故が発生した場合のより精度の高い被ばく線量算出を実施するために、比較サンプル数を増やして、その傾向を把握する必要がある。

## 8. 今後の課題

再処理施設の空気吸引ろ紙上における最大のRn-Tn娘核種放射能強度は、約30 Bqである。本装置のRn-Tn娘核種弁別性能は、<sup>239</sup>Pu立入規制レベルを考慮すると約10Bqが性能的な限界である。この性能を向上させるためには、装置の分解能をさらに向上させる必要がある。

また、以下の課題の対応も考慮する必要がある。

- (1) 再処理施設のRn-Tn娘核種の影響調査
- (2) Rn-Tn娘核種弁別後のPu定量値補正手法のプログラム化
- (3) 粒子径測定値の信頼性の確保

9. 参考文献

- 1) 池辺 幸正他、空气中 $\alpha$ 放射能モニタリング装置の開発  
PNC J1603 89-001(1989)
- 2) 池辺 幸正他、空气中 $\alpha$ 放射能モニタリング装置の開発  
PNC SJ1603 90-003(1990)
- 3) J.A.Leary, Particle Size Determination in Radioactive Aerosols by Radioautograph,  
Anal.Chem, 23(6)850 (1951)
- 4) 齊藤 節子 ZnS (Ag) 増感オートラジオグラフ法による $\alpha$ 放射性粒子  
の粒子径測定 PNC N841-78-47(1978)

表 3.1 核種データ

	核 種	半 減 期	線 種	エ ネ ル ギ ー (MeV)
R n 娘 核 種	$^{218}\text{P o}$ (R a A)	3.05min	$\alpha$	6.002
	$^{214}\text{P b}$ (R a B)	26.8min	$\beta$	0.672, 0.729, 1.024
	$^{214}\text{B i}$ (R a C)	19.8min	$\beta$	1.51, 1.54, 3.27
	$^{214}\text{P o}$ (R a C')	164 $\mu$ sec	$\alpha$	7.687
T n 娘 核 種	$^{216}\text{P o}$ (T h A)	0.15sec	$\alpha$	6.778
	$^{212}\text{P b}$ (T h B)	10.64hr	$\beta$	0.332, 0.571
	$^{212}\text{B i}$ (T h C)	60.55min	$\beta$	2.246(64%)
			$\alpha$	6.051(36%)
	$^{212}\text{P o}$ (T h C')	0.296 $\mu$ sec	$\alpha$	8.784
	$^{208}\text{T l}$ (T h C'')	3.05min	$\beta$	1.285, 1.518, 1.795
プ ル ト ニ ウ ム 核 種	$^{238}\text{P u}$	87.7y	$\alpha$	5.499
	$^{239}\text{P u}$	2.413 $\times 10^4$ y	$\alpha$	5.157
	$^{240}\text{P u}$	6570y	$\alpha$	5.168
	$^{241}\text{P u}$	14.36y	$\beta$	0.021
	$^{242}\text{P u}$	3.76 $\times 10^5$ y	$\alpha$	4.901
	$^{241}\text{A m}$	432y	$\alpha$	5.486

表 5.1 主要構成機器の仕様

項 目	仕 様
映像管	サチコン方式
光子増倍管	MCP方式 (2段 $\sim 1 \times 10^6$ 倍)
接続方式	レンズカップリング方式
映像視野	50 $\times$ 50 mm
メモリ容量	512 $\times$ 512 $\times$ 16 bit
分解能	0.10 mm

表 5.2 使用線源の仕様

名称	核種	有効径 (mmφ)	放射能 (Bq)	管理No	用途
ウラン標準線源	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	45	7430	F-56	計数効率測定
αスペクトル線源	<sup>239</sup> Np	8	2672	M-244	αエネルギー特性
αスペクトル線源	<sup>241</sup> Am	8	2276	M-240	
αスペクトル線源	<sup>243</sup> Cm	8	2580	M-241	
βリファレンスソース	<sup>90</sup> Sr	30	4733	M-206	β感度測定
γリファレンスソース	<sup>60</sup> Co	30	3637	M-205	γ感度測定

表 6.1 構成機器の設定値

設定項目	設定値
VIM	7
ディスクリレベル	170
ThreshHold level1	9
ThreshHold level2	21

表 6.2 バックグラウンド計数率及び計数効率

	既存測定装置		画像処理装置
	2系統放射能測定装置	空気試料測定装置	
バックグラウンド計数率(cpm)	0.2	0.1	2.1
計数効率(%)	27.2	23.3	34.2
検出下限値(Bq)	$6.7 \times 10^{-2}$	$6.9 \times 10^{-2}$	$7.3 \times 10^{-2}$
検出下限濃度(Bq/cm <sup>3</sup> )	$1.2 \times 10^{-10}$	$1.3 \times 10^{-10}$	$1.3 \times 10^{-10}$
測定時間(分)	5	5	10

- ・ 検出限界濃度：通常の一週間積算流量 ( $5.5 \times 10^8$  cm<sup>3</sup>) で除した値
- ・ 統計誤差：2σ
- ・ <sup>239</sup>Pu 立入規制値： $4.7 \times 10^{-9}$  Bq/cm<sup>3</sup>

表6.3 ZnS (Ag) カウンタと画像処理装置の放射能強度比較データ

単位：Bq

試料 番号	ZnS(Ag) カウンタ (A)	画像処理装置 (B)	放射能比 (B/A)	試料 番号	ZnS(Ag) カウンタ (A)	画像処理装置 (B)	放射能比 (B/A)
P1	0.683	0.819	1.199	P20	3.000	2.510	0.837
P2	2.440	2.810	1.152	P21	19.500	17.200	0.882
P3	8.160	8.070	0.989	P22	23.300	20.900	0.897
P4	41.400	42.900	1.036	P23	5.500	4.580	0.833
P5	87.200	99.800	1.145	P24	0.930	0.902	0.970
P6	8.600	9.690	1.127	P25	0.200	0.390	1.950
P7	5.000	4.040	0.808	P26	13.600	14.500	1.066
P8	4.100	4.150	1.012	P27	7.200	6.890	0.957
P9	24.200	22.300	0.921	P28	9.200	10.100	1.098
P10	25.700	22.000	0.856	P29	39.000	38.200	0.979
P11	10.100	8.950	0.886	P30	32.900	32.500	0.988
P12	3.200	3.170	0.991	P31	8.000	8.350	1.044
P13	1.100	1.340	1.218	P32	2.400	2.390	0.996
P14	1.600	1.100	0.688	P33	0.740	0.916	1.238
P15	0.630	0.648	1.029	P34	0.630	0.716	1.137
P16	0.220	0.370	1.682	P35	0.170	0.278	1.635
P17	0.570	0.673	1.181	S1	3.000	6.460	2.153
P18	5.500	5.520	1.004	S2	1.100	1.510	1.373
P19	3.000	3.190	1.063				



表 6.4 スポット抽出処理前後の放射能強度比較データ

単位：Bq

試料 番号	抽出処理前 (C)	抽出処理後 (D)	放射能比 (D/C)	試料 番号	抽出処理前 (C)	抽出処理後 (D)	放射能比 (D/C)
P1	0.819	0.600	0.733	P20	2.510	0.872	0.347
P2	2.810	1.100	0.391	P21	17.200	11.800	0.686
P3	8.070	3.100	0.384	P22	20.900	15.700	0.751
P4	42.900	39.100	0.911	P23	4.580	1.490	0.325
P5	99.800	98.900	0.991	P24	0.902	0.049	0.054
P6	9.690	6.700	0.691	P25	0.390	0.044	0.113
P7	4.040	2.220	0.550	P26	14.500	9.860	0.680
P8	4.150	2.310	0.557	P27	6.890	3.000	0.435
P9	22.300	17.100	0.767	P28	10.100	6.390	0.633
P10	22.000	16.600	0.755	P29	38.200	33.800	0.885
P11	8.950	4.360	0.487	P30	32.500	28.500	0.877
P12	3.170	0.994	0.314	P31	8.350	4.120	0.493
P13	1.340	0.195	0.146	P32	2.390	0.302	0.126
P14	1.100	0.205	0.186	P33	0.916	0.039	0.043
P15	0.648	0.102	0.157	P34	0.716	0.327	0.457
P16	0.370	0.049	0.132	P35	0.278	0.044	0.158
P17	0.673	0.302	0.449	S1	6.460	6.100	0.944
P18	5.520	2.500	0.453	S2	1.510	1.100	0.728
P19	3.190	1.370	0.429				

表 6.5 粒子径比較結果

単位：μm

工 程	カスケードインパクト	画像処理装置	差
分析試料採取工程(P03)	3.4	4.0	0.6
焙焼還元工程(P14)	3.0	4.3	1.3
廃液蒸発処理工程(P71)	3.8	5.5	1.7
平 均	3.4	4.6	1.2

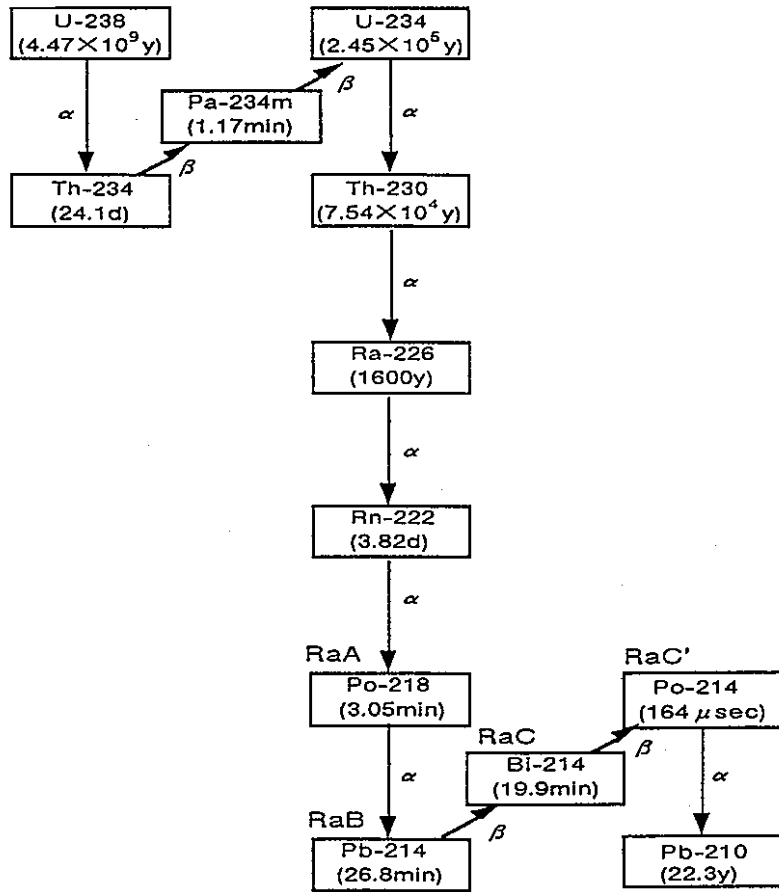


図 3.1 ウラン系列の崩壊図

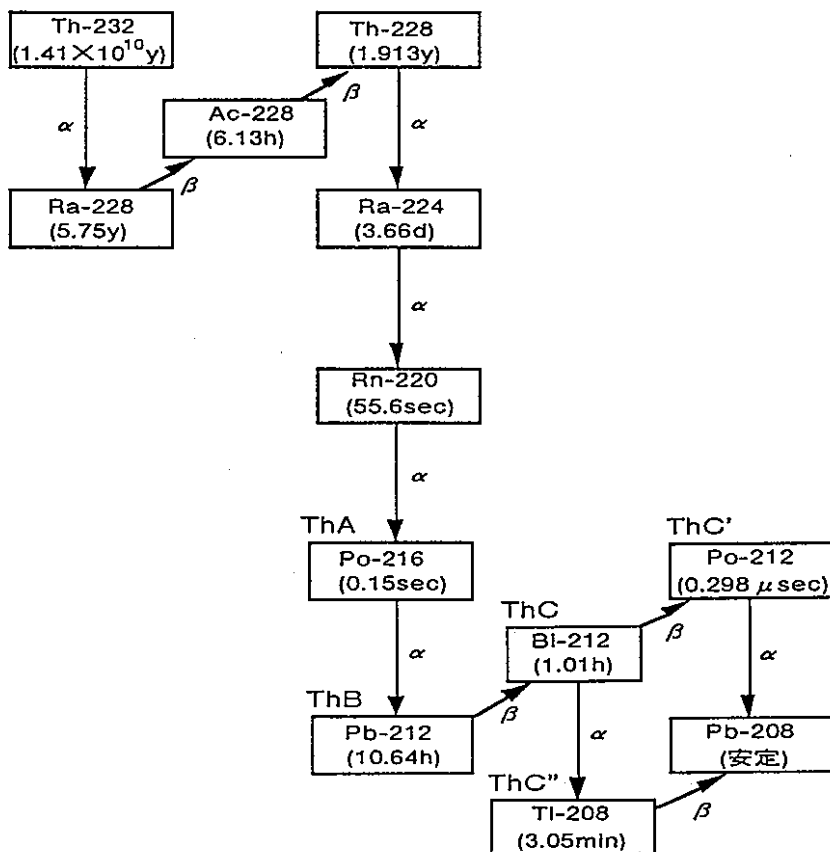


図 3.2 トリウム系列の崩壊図

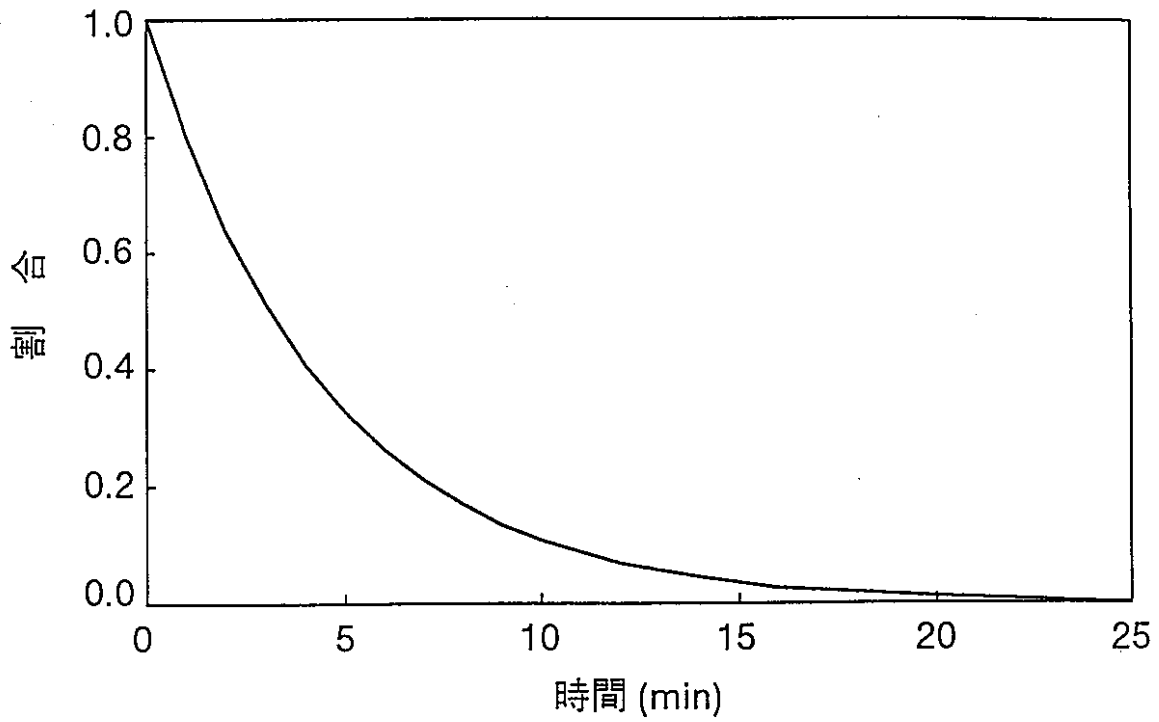


図 3.3 RaAの減衰曲線

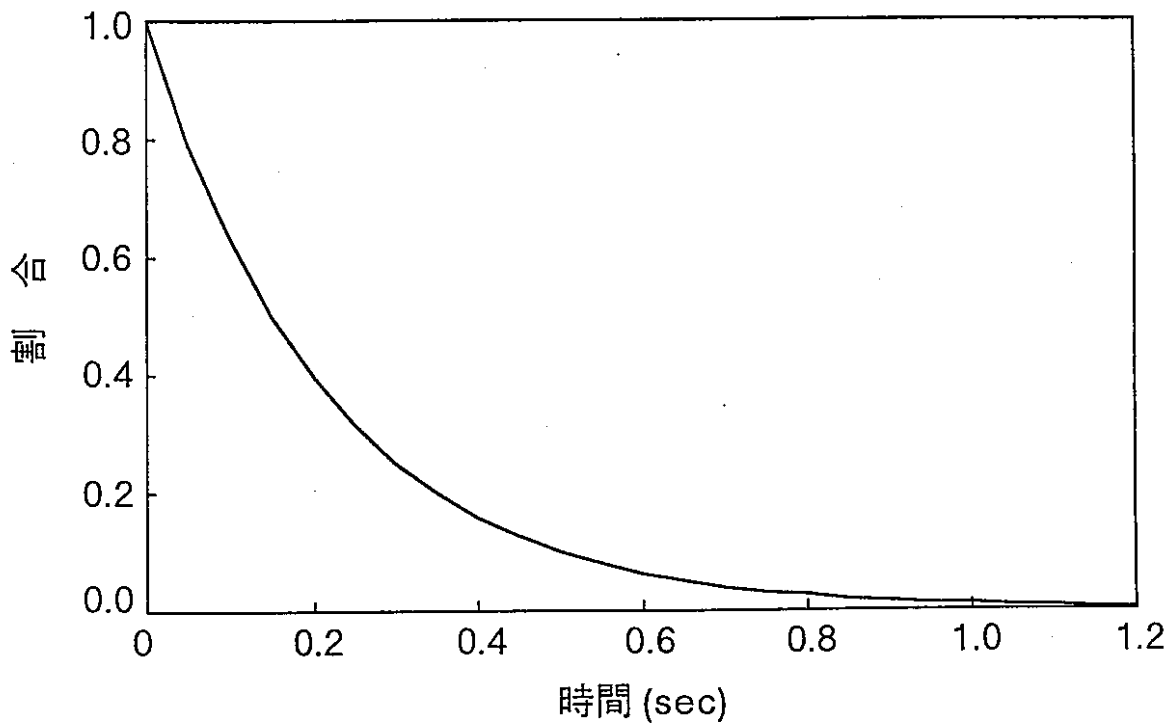


図 3.4 ThAの減衰曲線

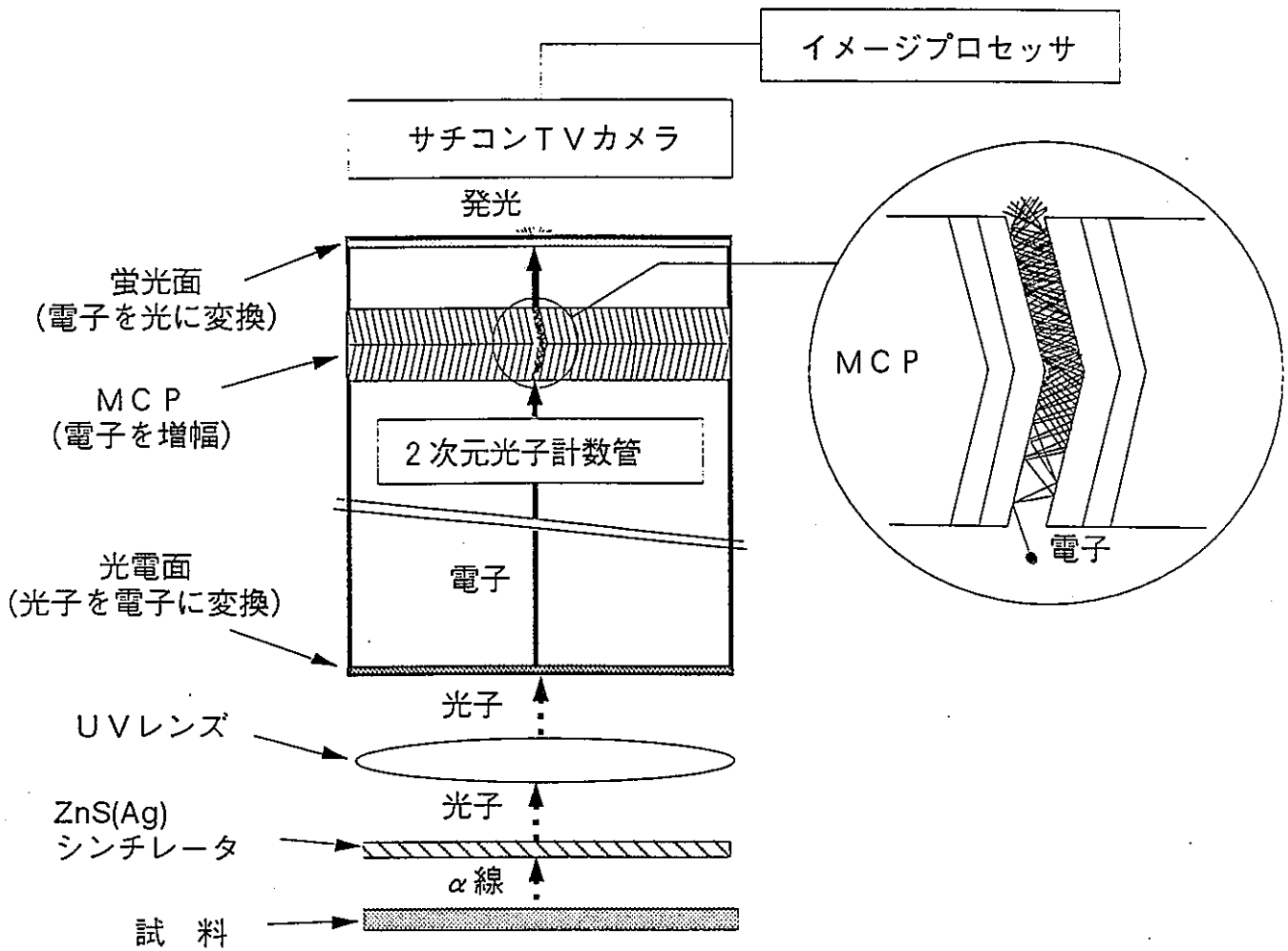


図 4.1 α線検出の原理図

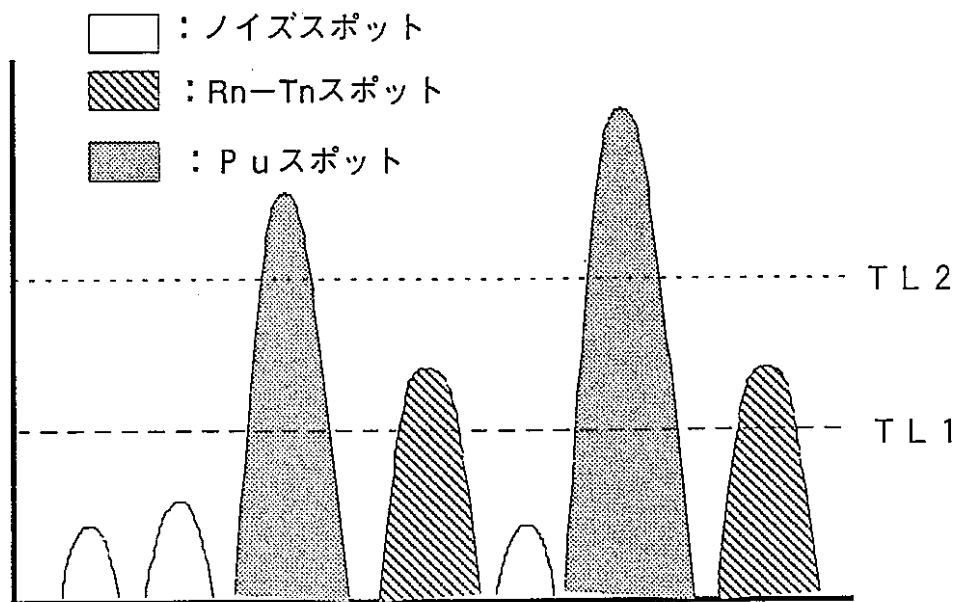


図 4.2 スポット抽出処理の概念図

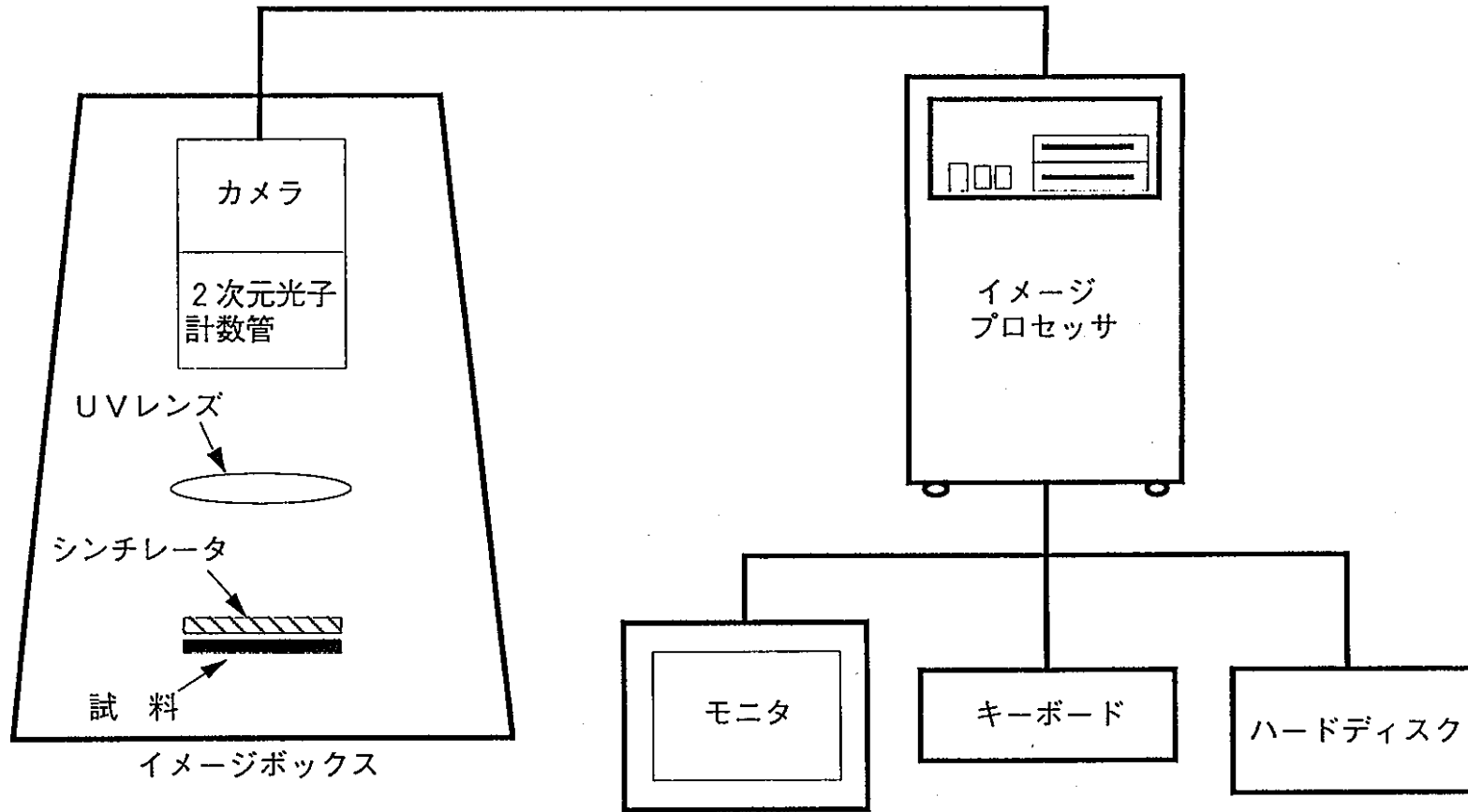


図5.1 画像処理装置の構成

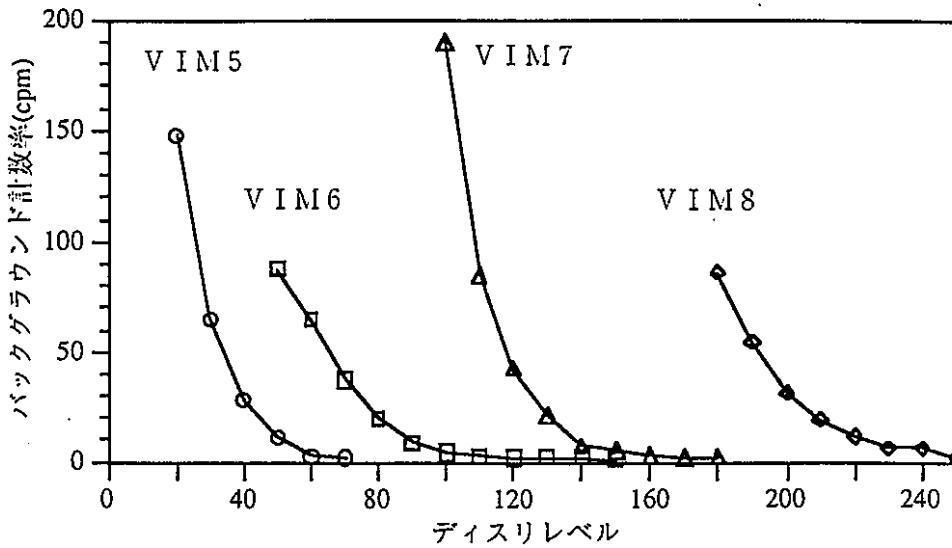


図6.1 ディスクリレベルとVIMの特性試験結果

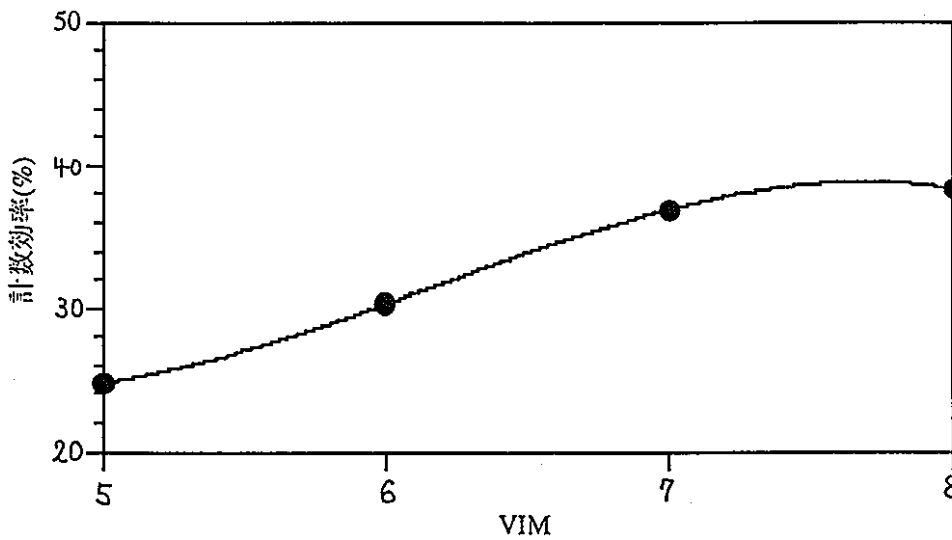


図6.2 VIMと計数効率の特性試験結果

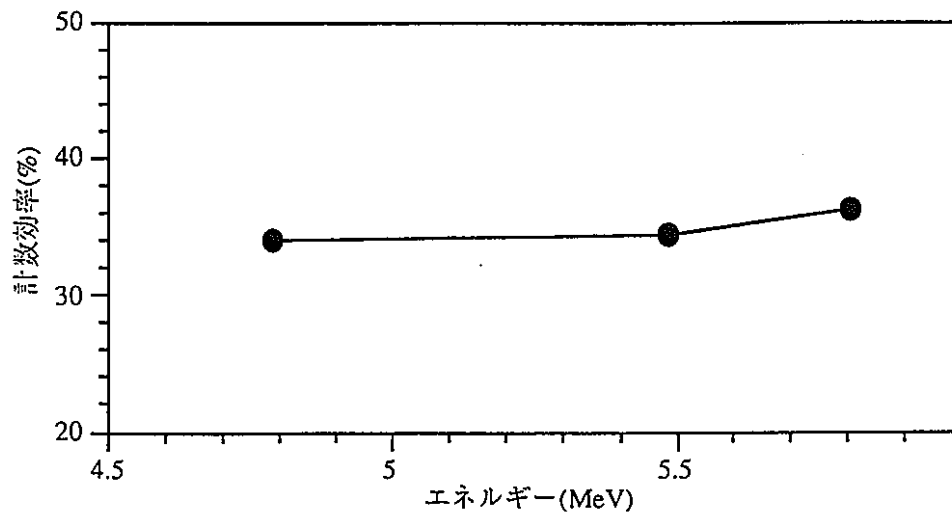


図6.3 α線エネルギー特性試験結果

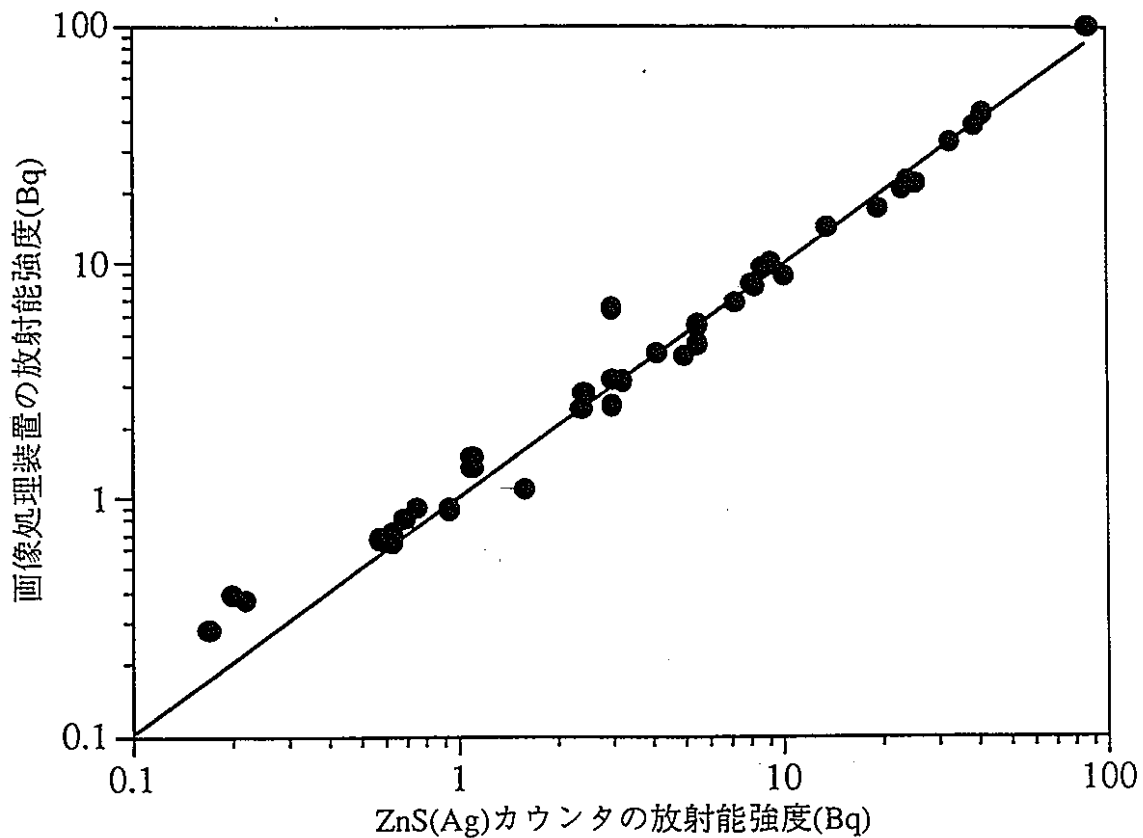


図6.4 ZnS(Ag)カウンタと画像処理装置の放射能強度比較結果

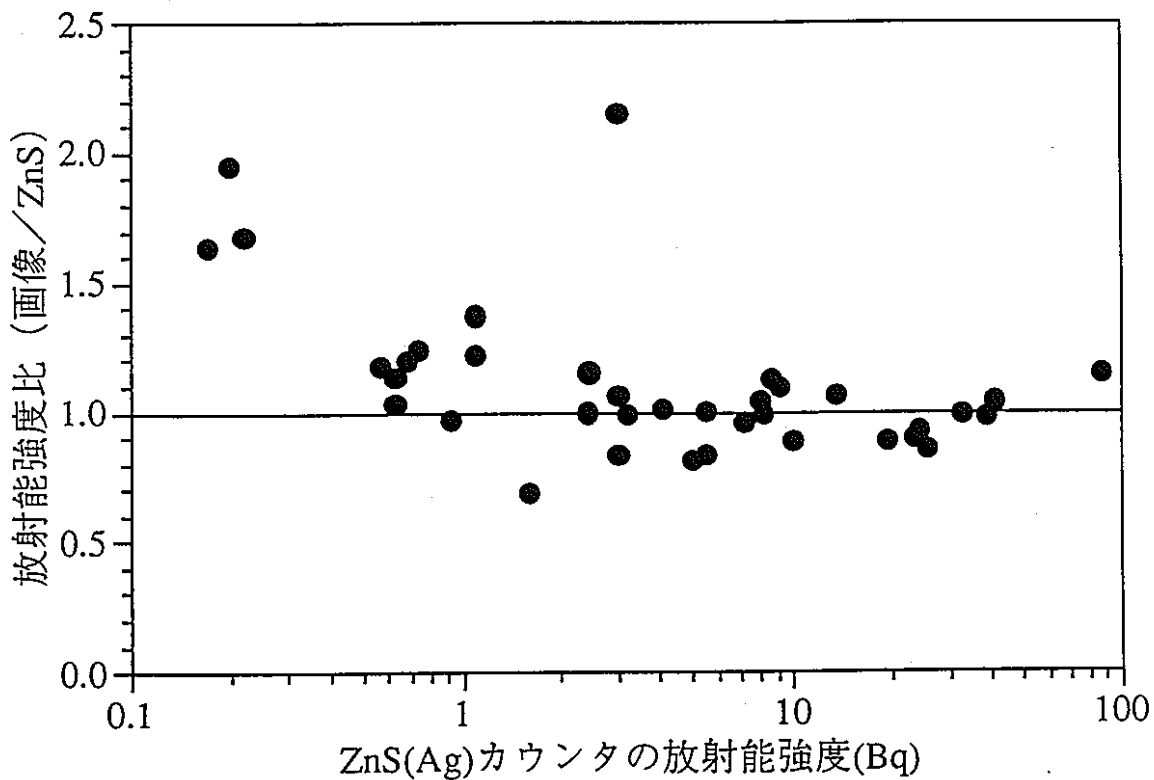


図6.5 ZnS(Ag)カウンタと画像処理装置の放射能強度比

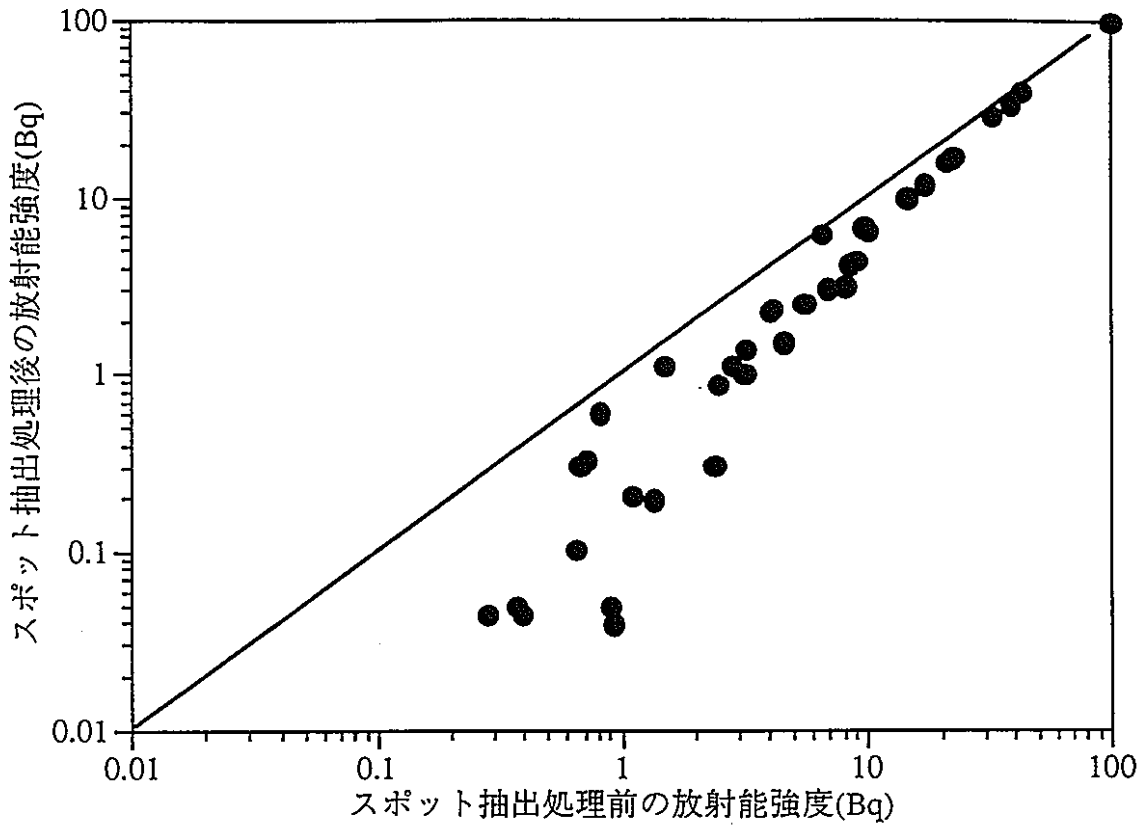


図 6.6 スポット抽出処理前後の放射能強度比較結果

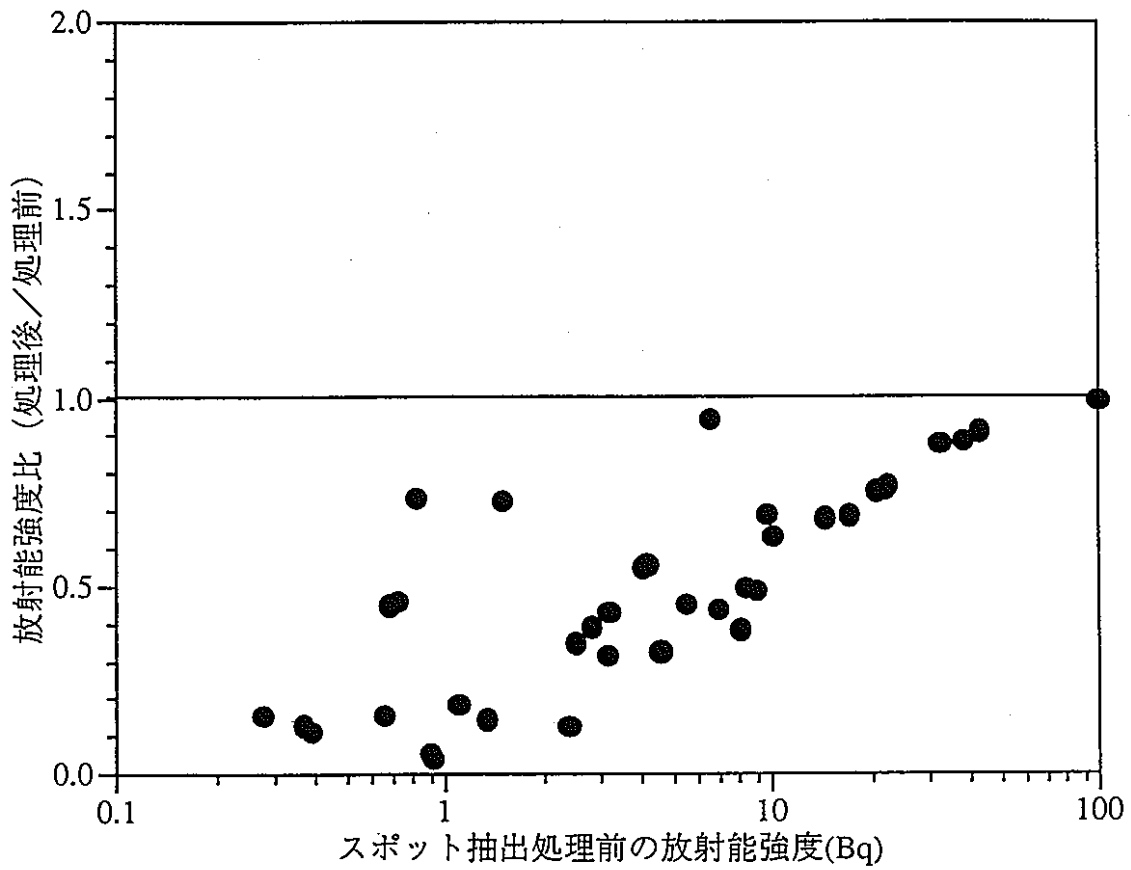


図 6.7 スポット抽出処理前後の放射能強度比



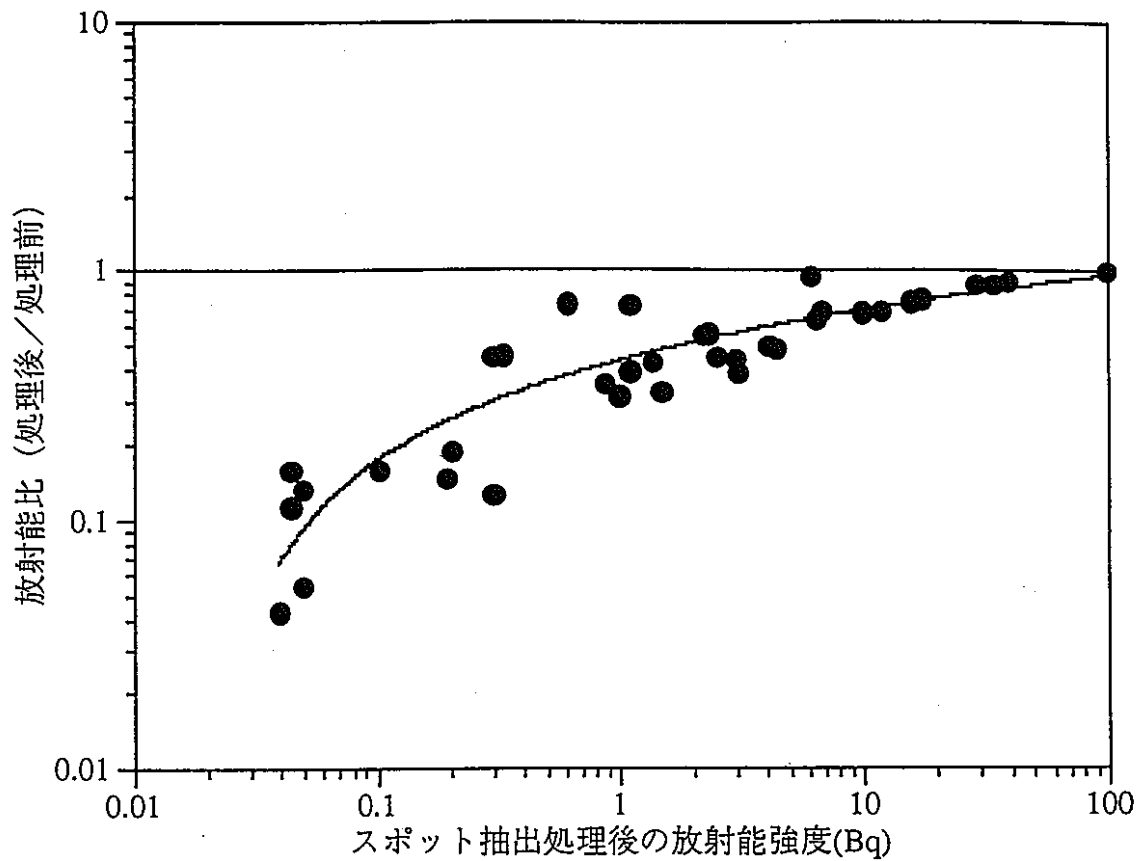


図 6.8 スポット抽出処理前後の放射能強度比 (近似曲線含む)

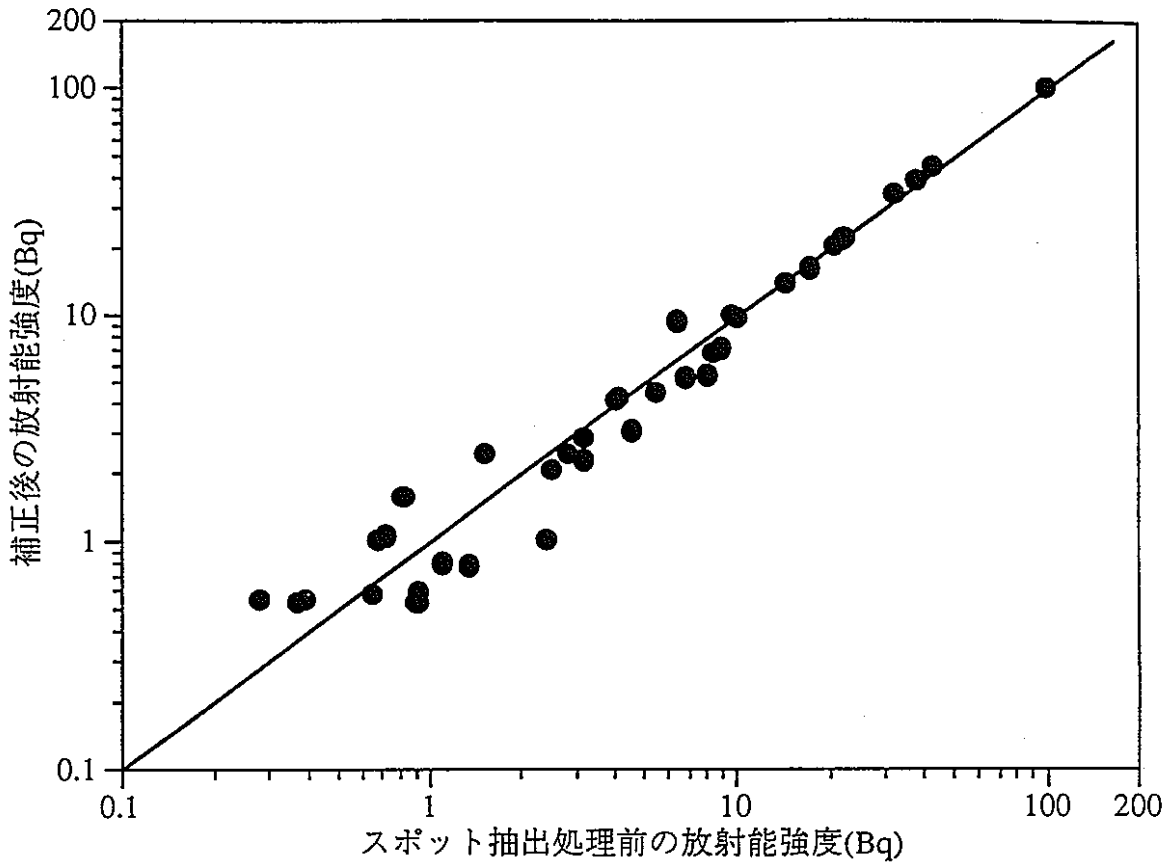


図 6.9 スポット抽出処理前後の放射能強度比較結果 (補正有り)

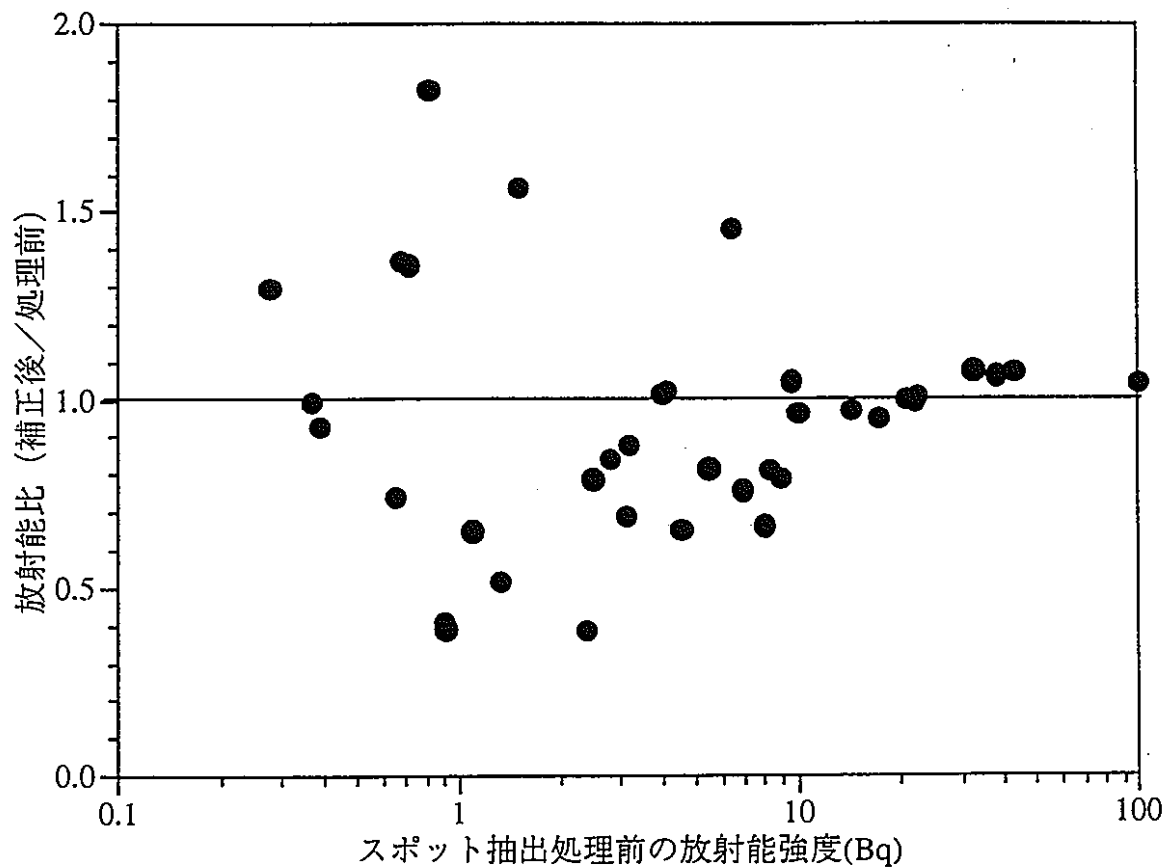


図 6.10 スポット抽出処理前後の放射能強度比 (補正有り)

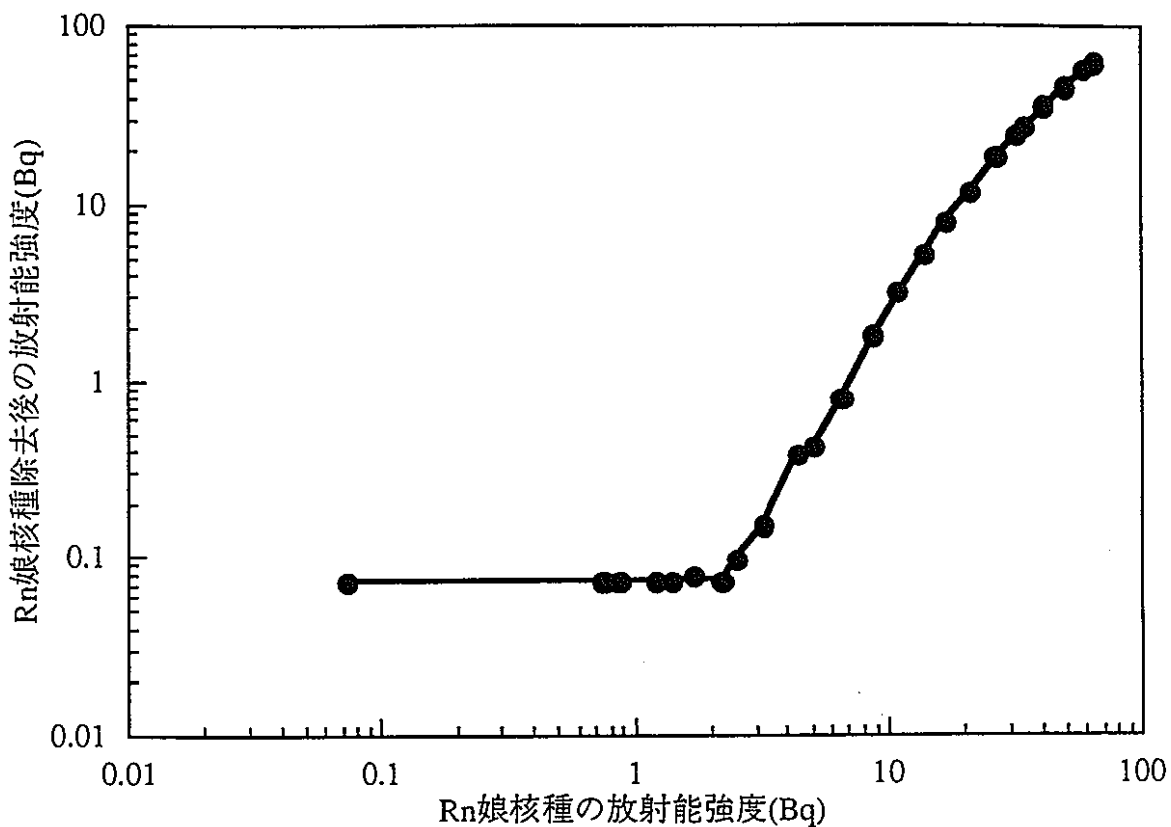


図 6.1 1 R n 娘核種の弁別結果

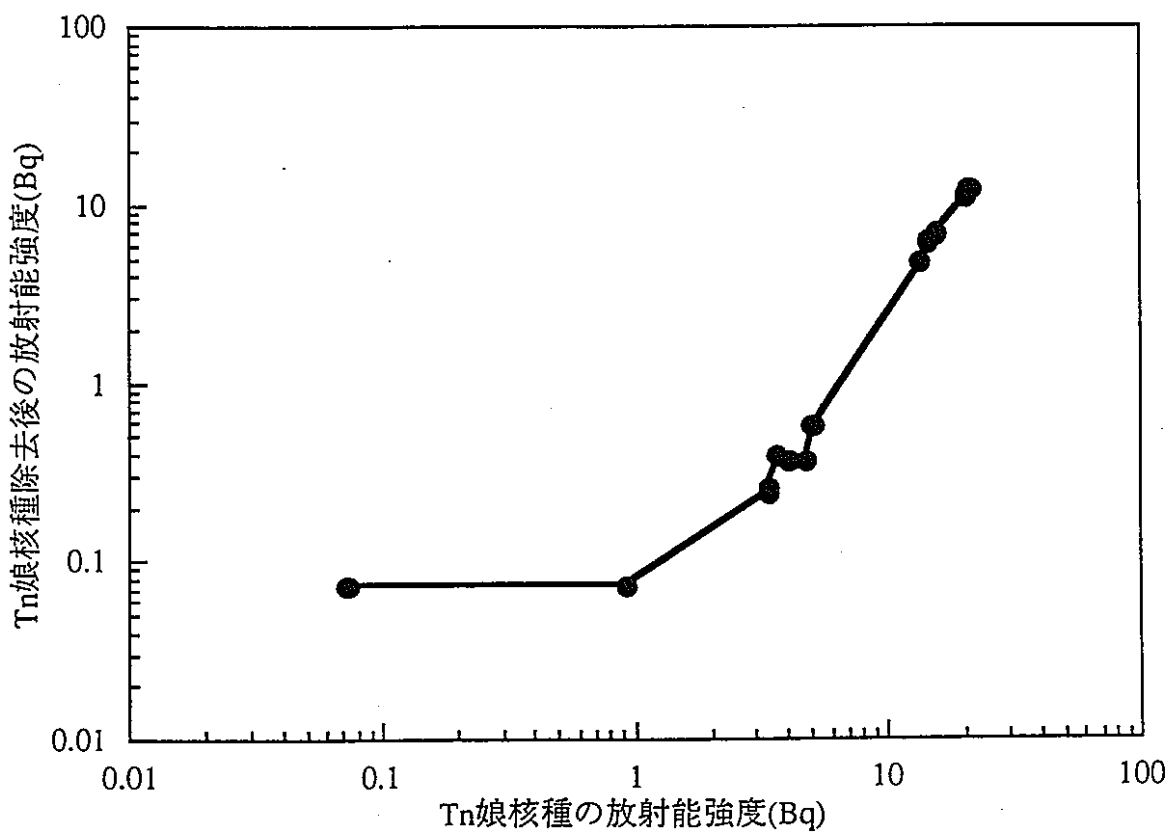


図 6.1 2 T n 娘核種の弁別結果

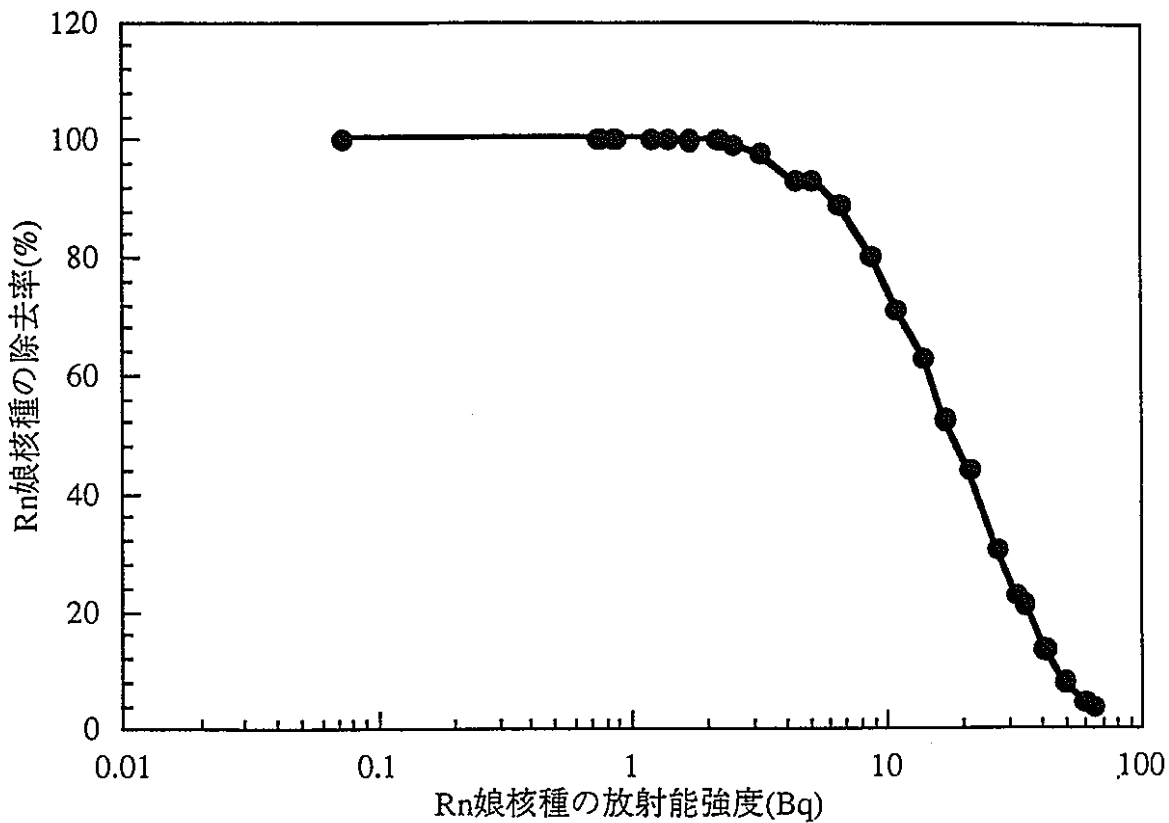


図 6.1 3 R n 娘核種の除去率

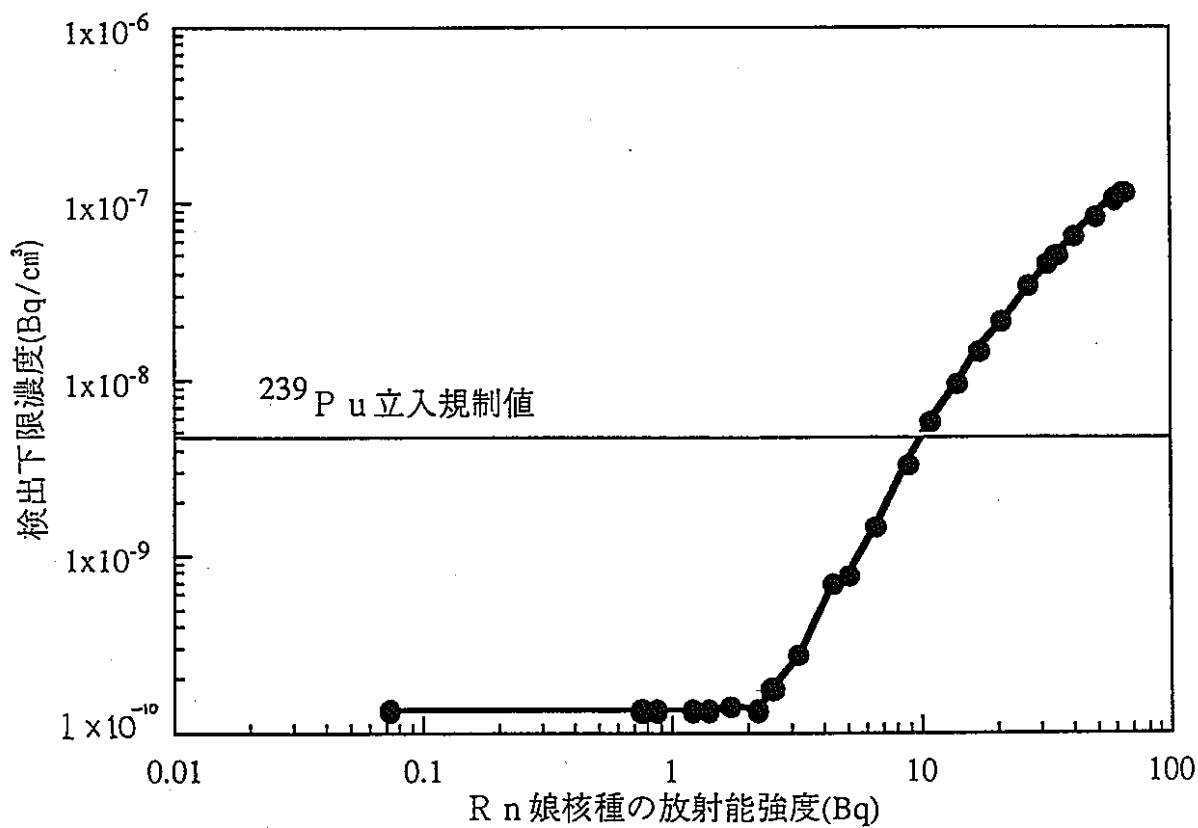


図 6.1 4 R n 娘核種混在場における <sup>239</sup>P u 検出下限濃度

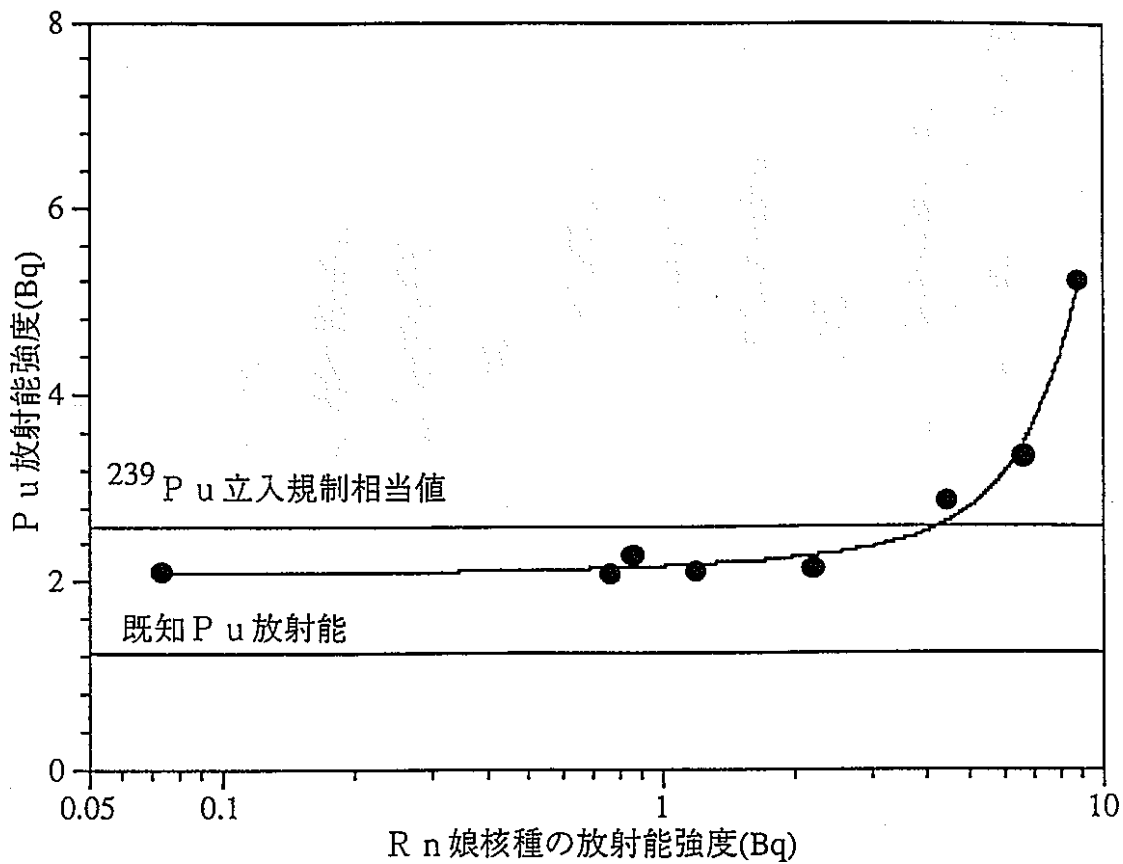


図6.15 Rn娘核種混在場におけるPu定量試験結果

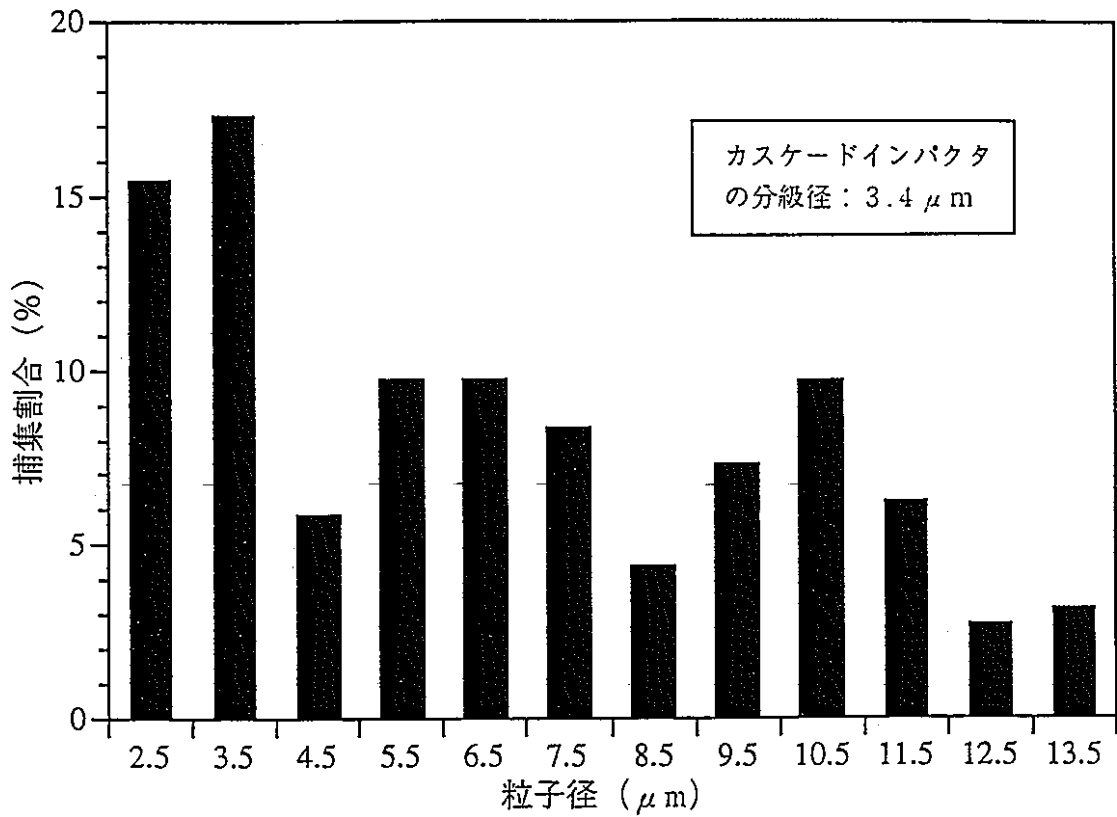


図 6.1 6 焙焼還元工程の粒子径分布 (ろ紙単独評価)

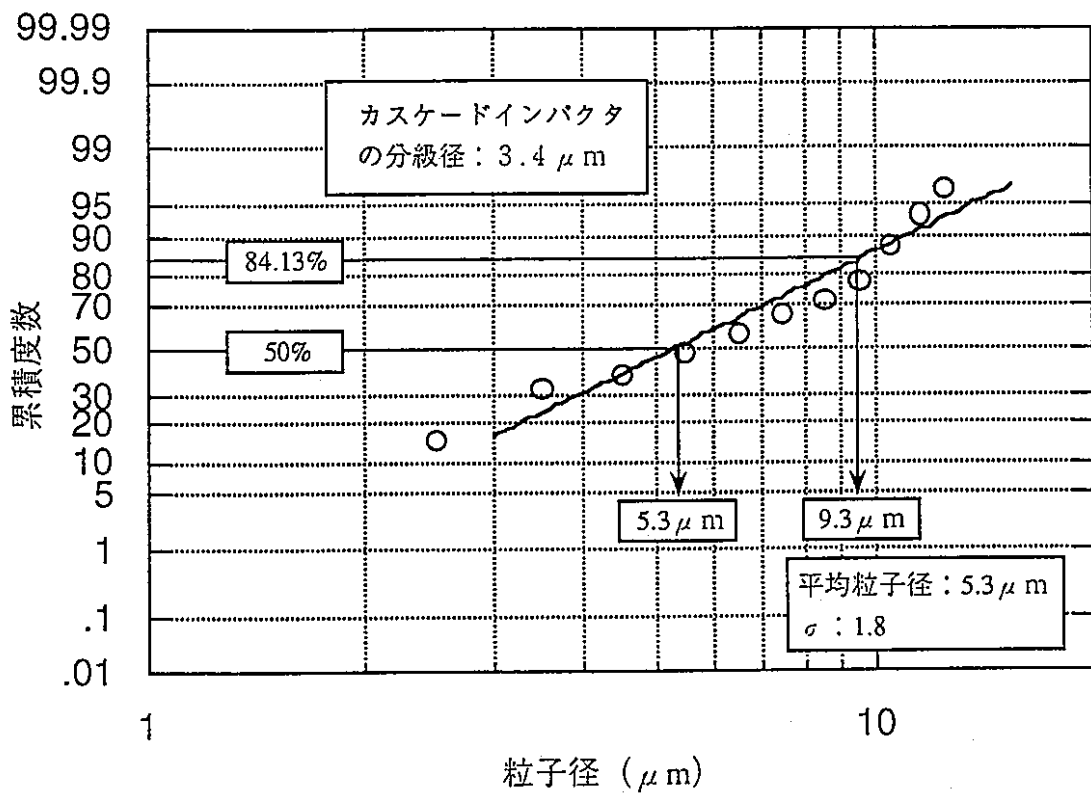


図 6.1 7 焙焼還元工程の粒子径累積度数 (ろ紙単独評価)

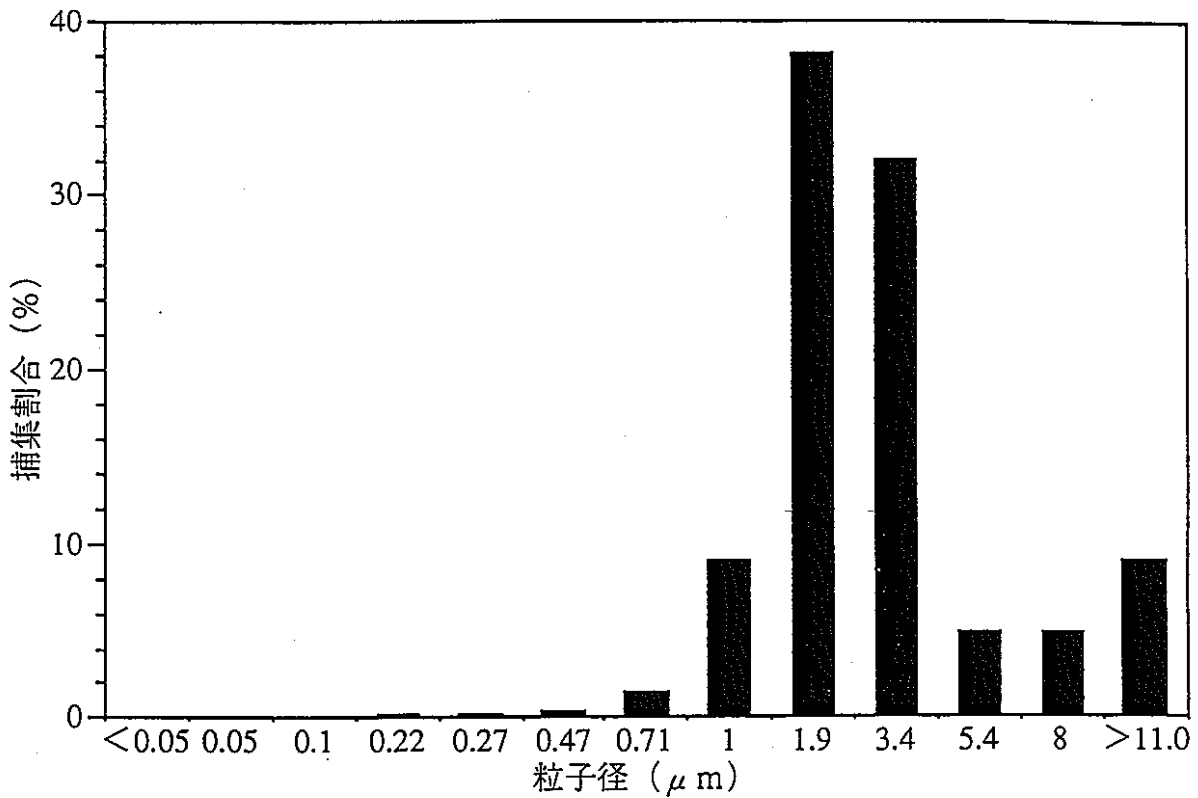


図 6.1 8 - 1 分析試料採取工程の粒子径分布 (カスケードインパクト)

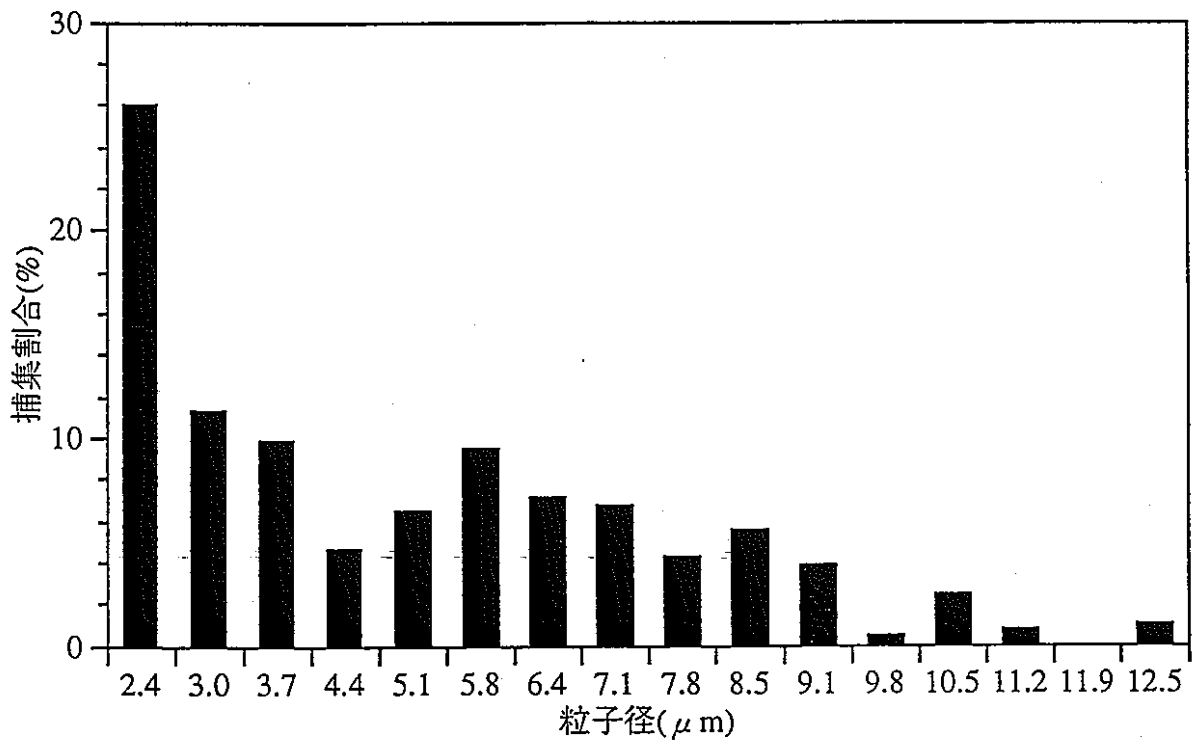


図 6.1 8 - 2 分析試料採取工程の粒子径分布 (画像)

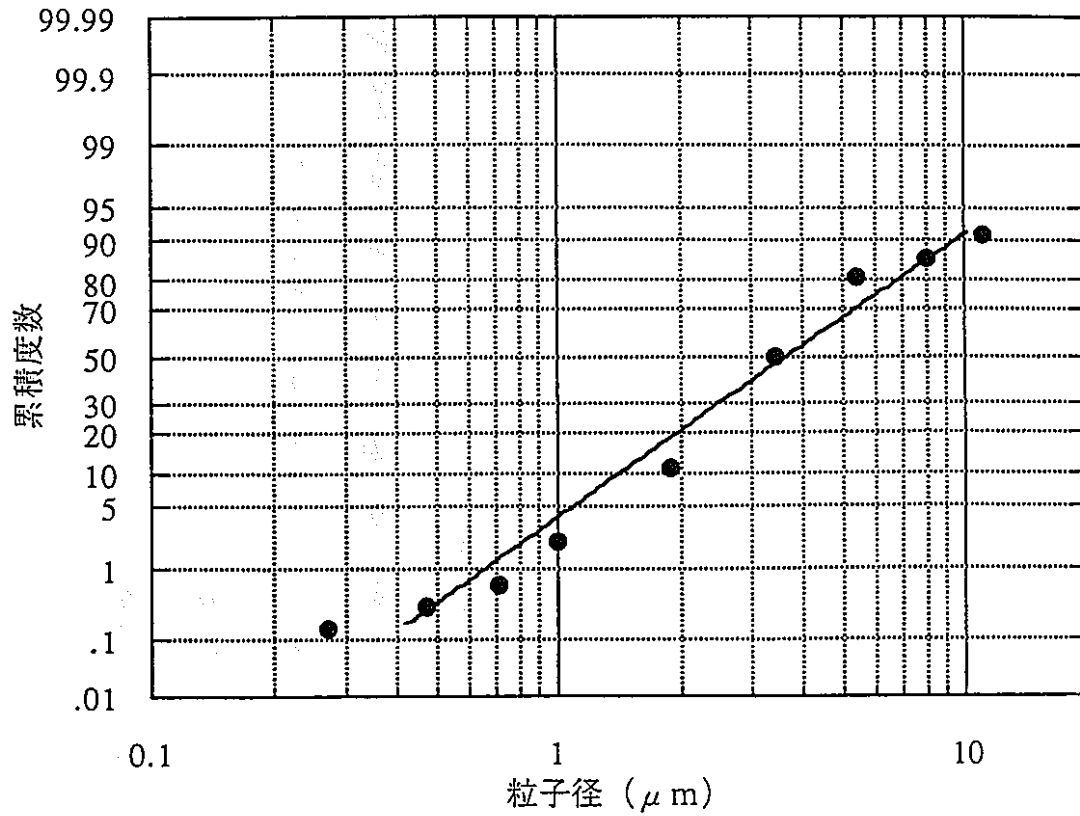


図 6.19-1 分析試料採取工程の粒子径累積度数 (カスケードインパクト)

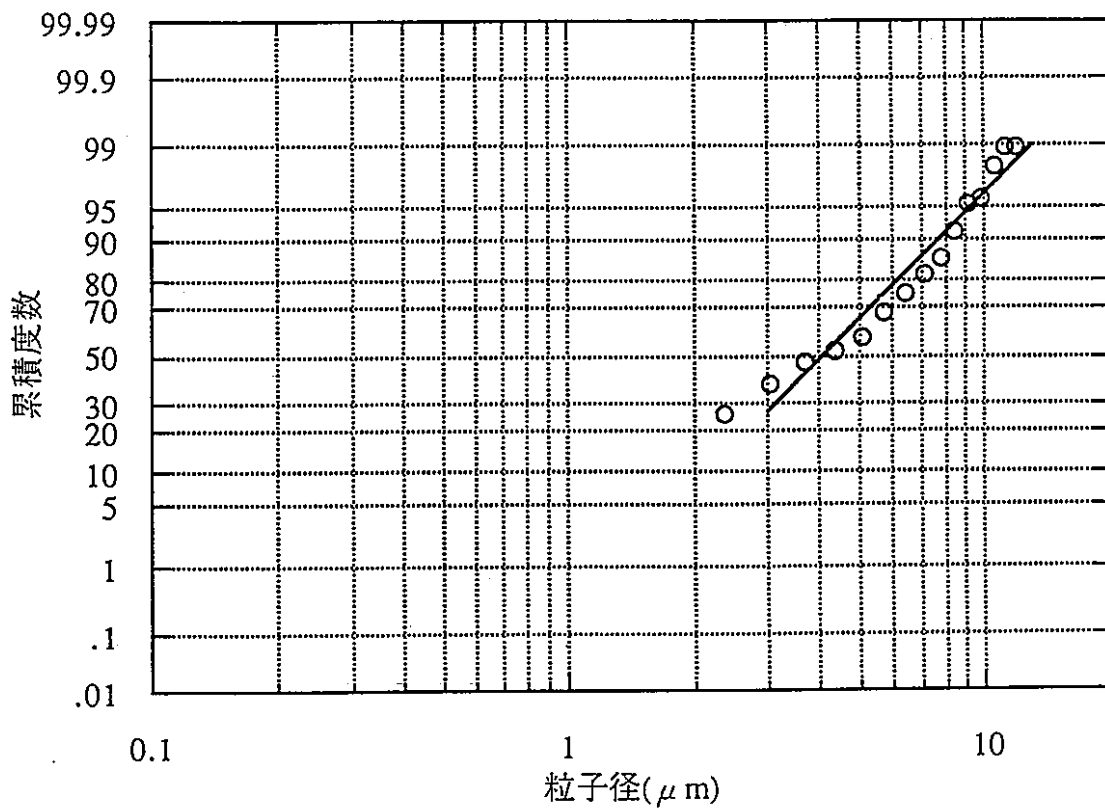


図 6.19-2 分析試料採取工程の粒子径累積度数 (画像)



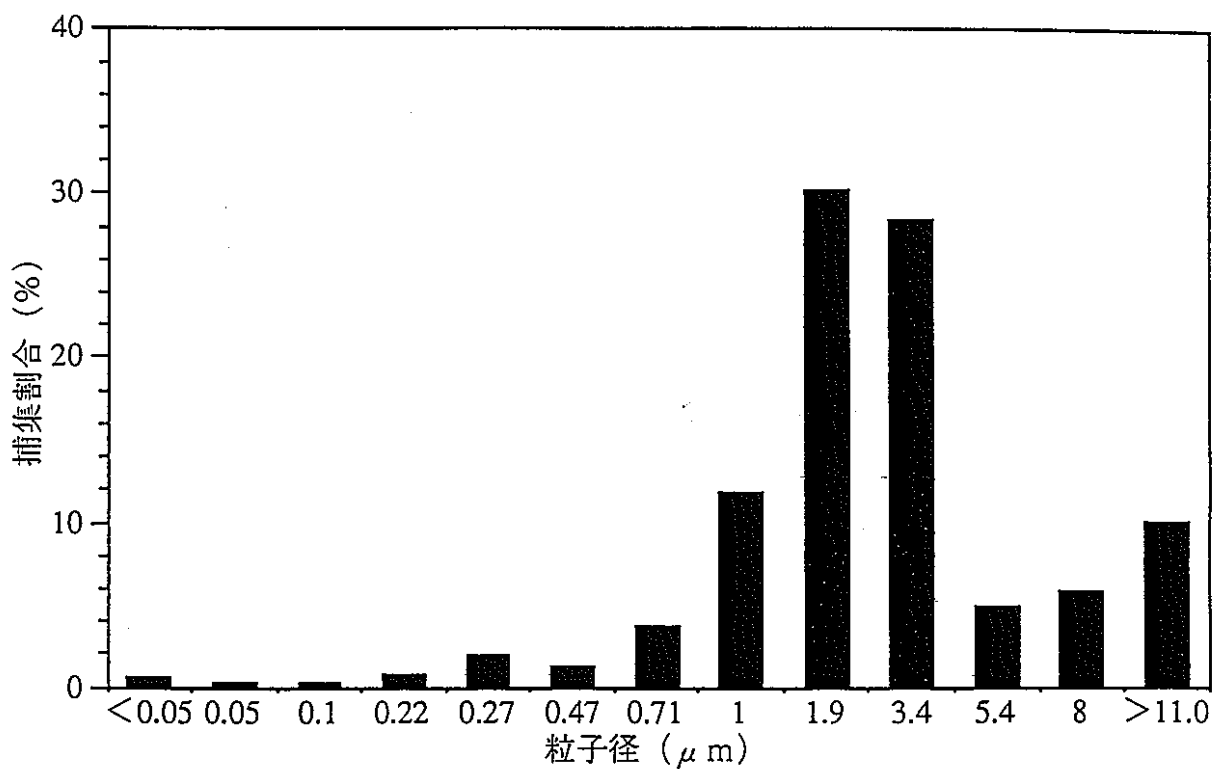


図6.20-1 焙焼還元工程の粒子径分布 (カスケードインパクト)

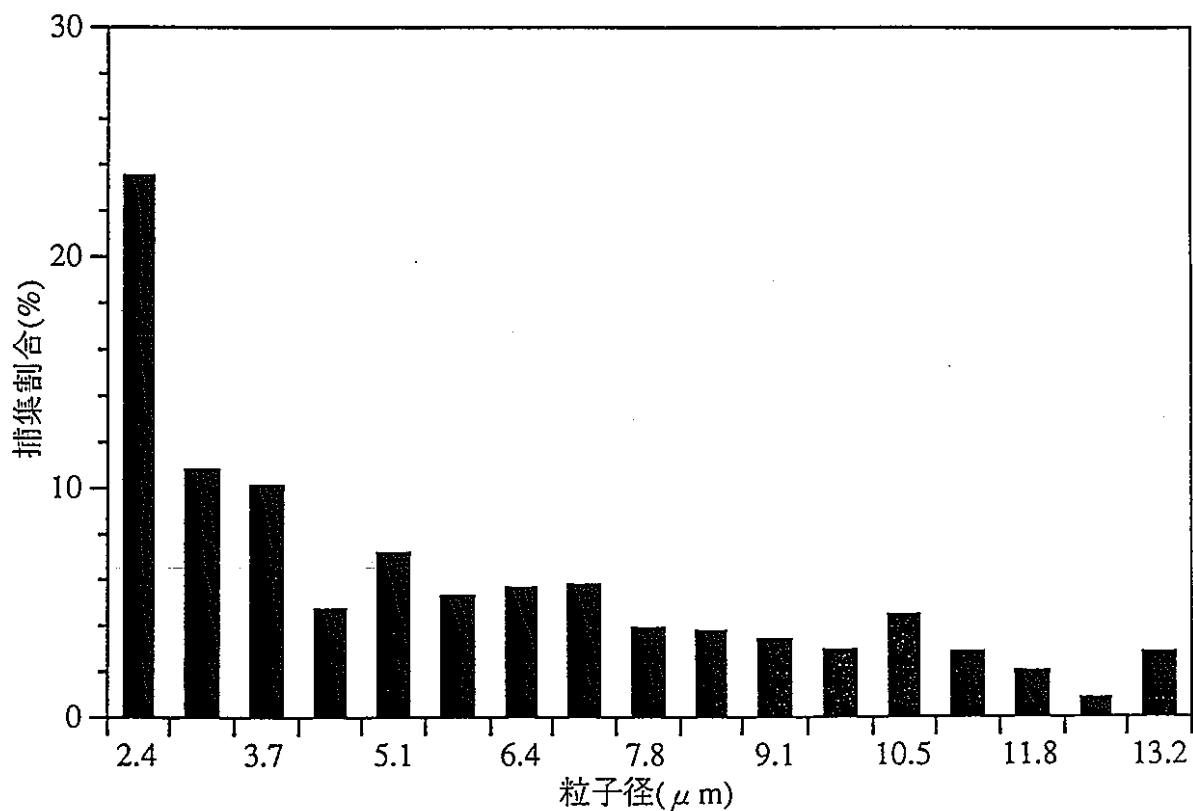


図6.20-2 焙焼還元工程の粒子径分布 (画像)

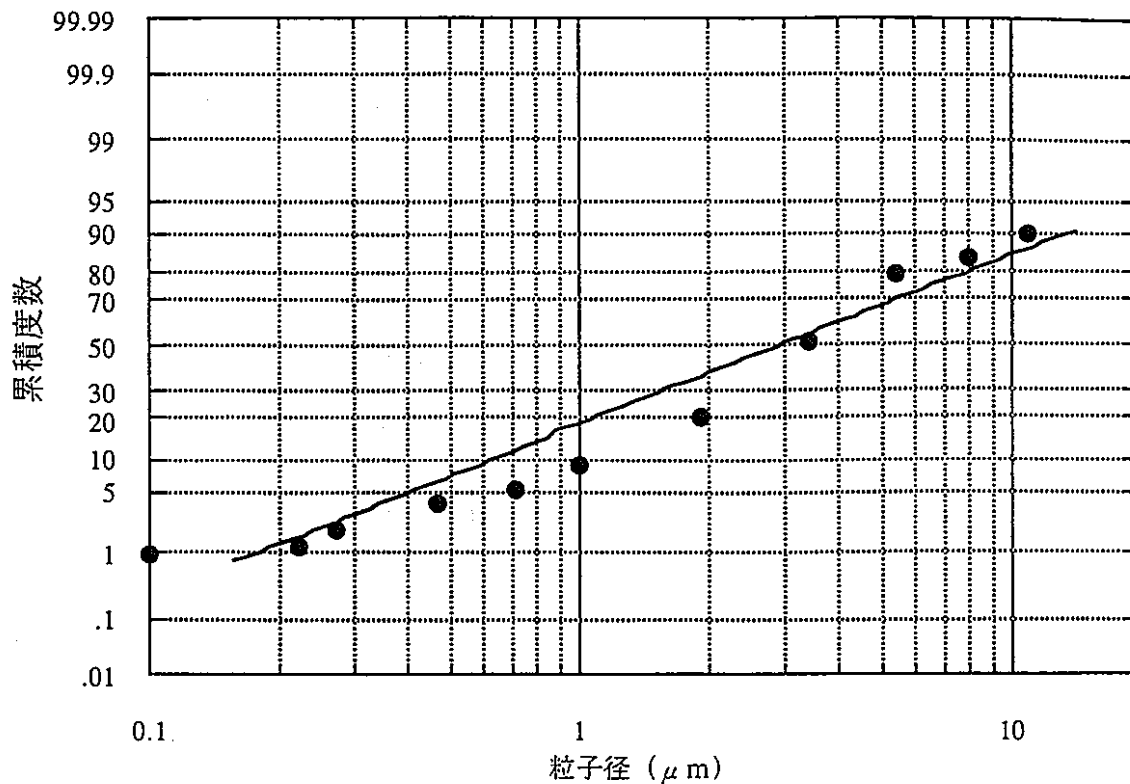


図 6.2 1-1 焙焼還元工程の粒子径累積度数 (カスケードインパクト)

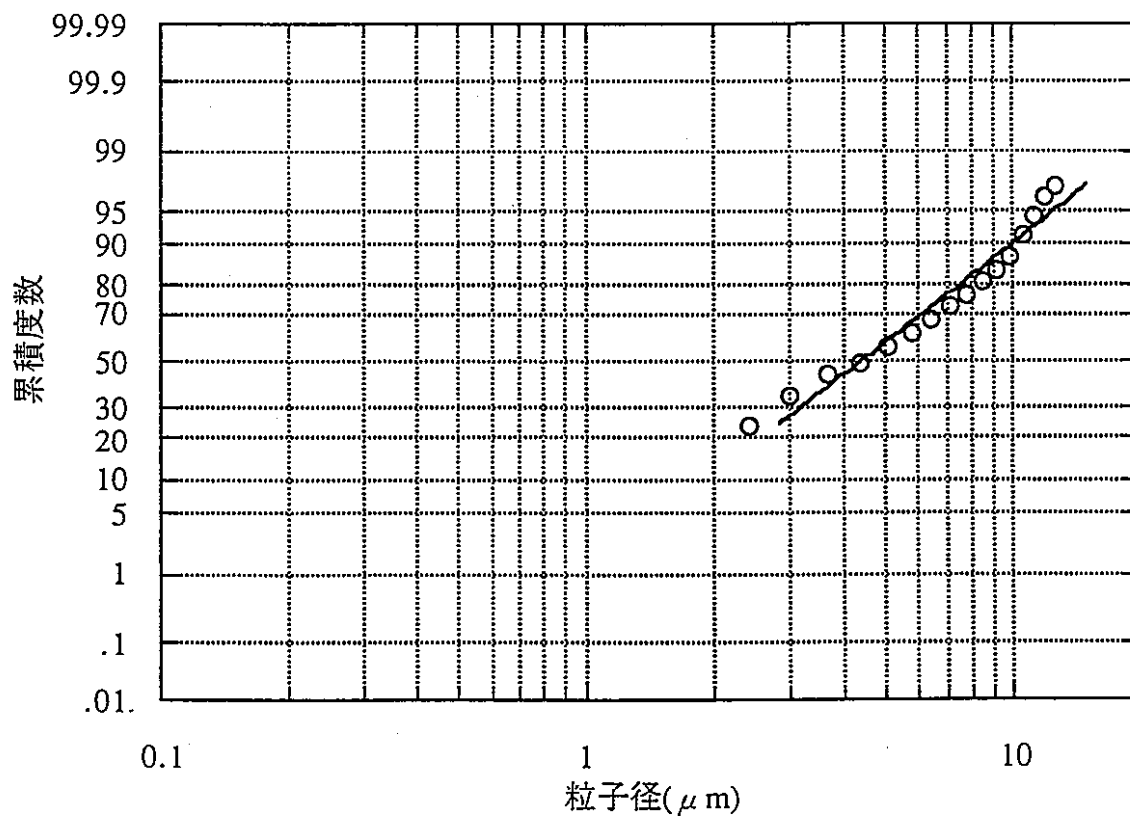


図 6.2 1-2 焙焼還元工程の粒子径累積度数 (画像)

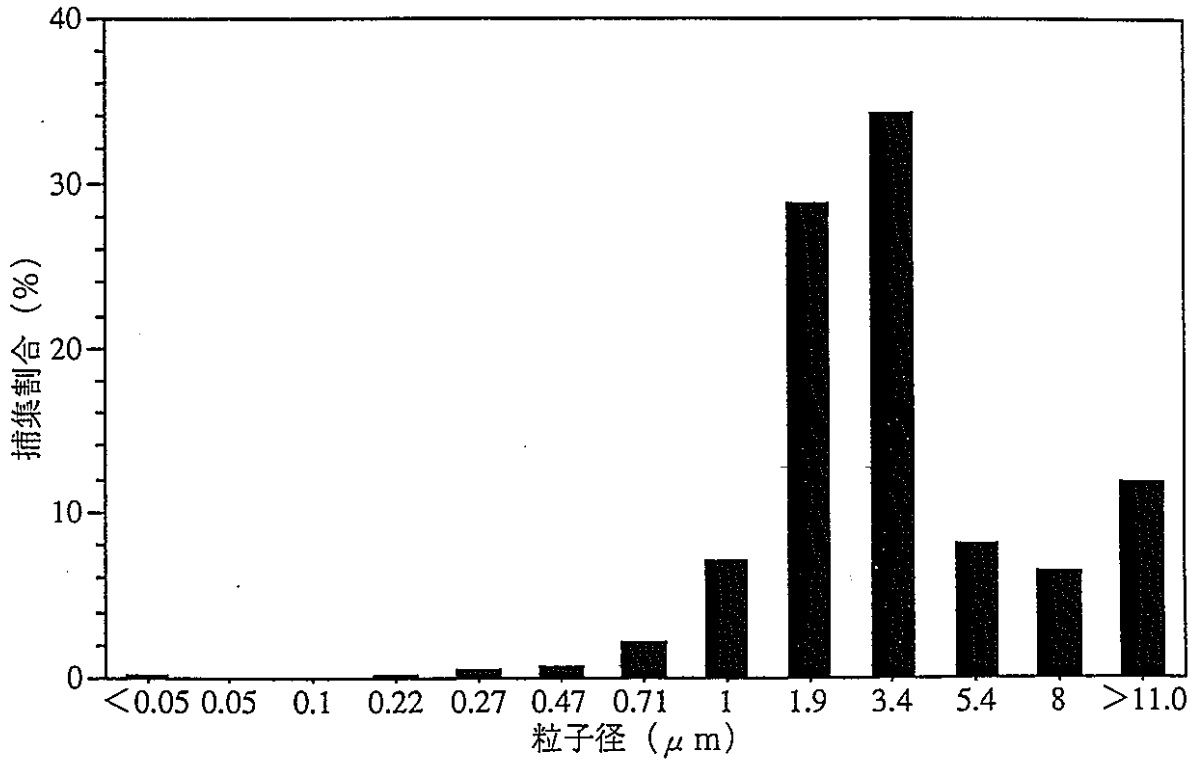


図 6.2 2 - 1 廃液蒸発処理工程の粒子径分布 (カスケードインパクト)

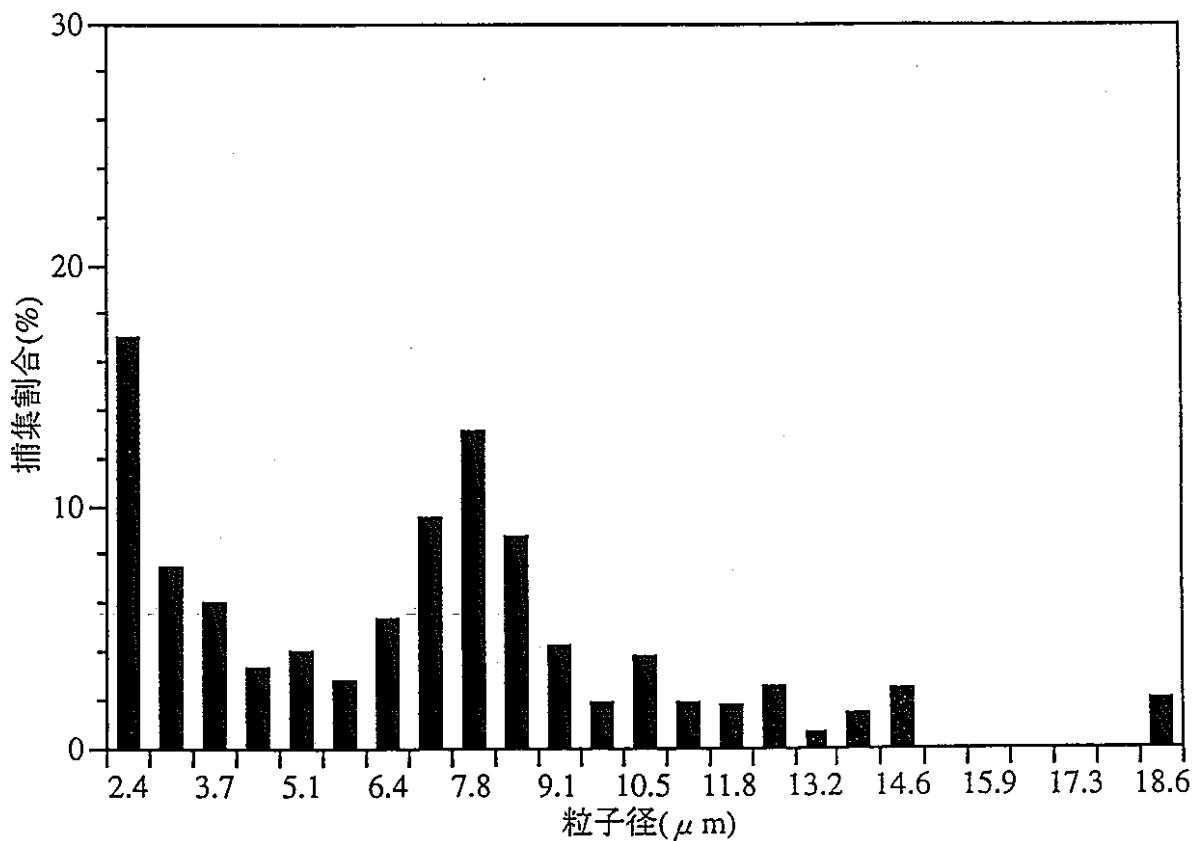


図 6.2 2 - 2 廃液蒸発処理工程の粒子径分布 (画像)

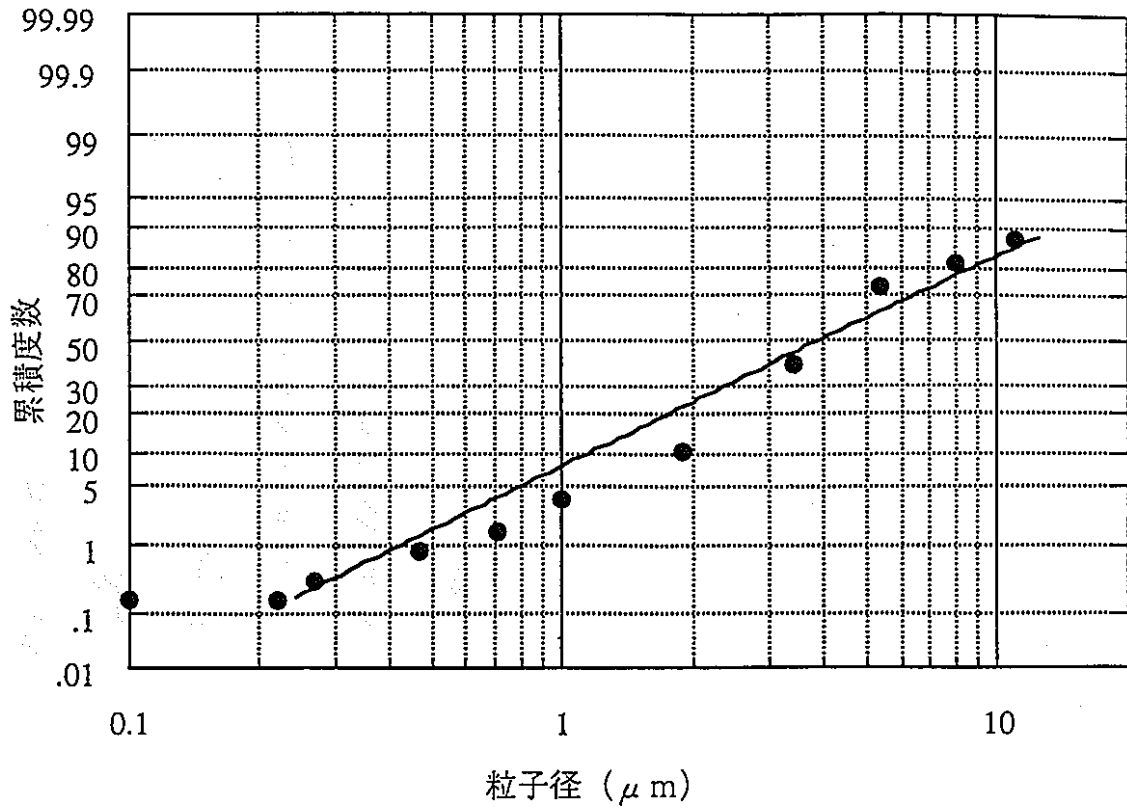


図 6.23-1 廃液蒸発処理工程の粒子径累積度数 (カスケードインパクト)

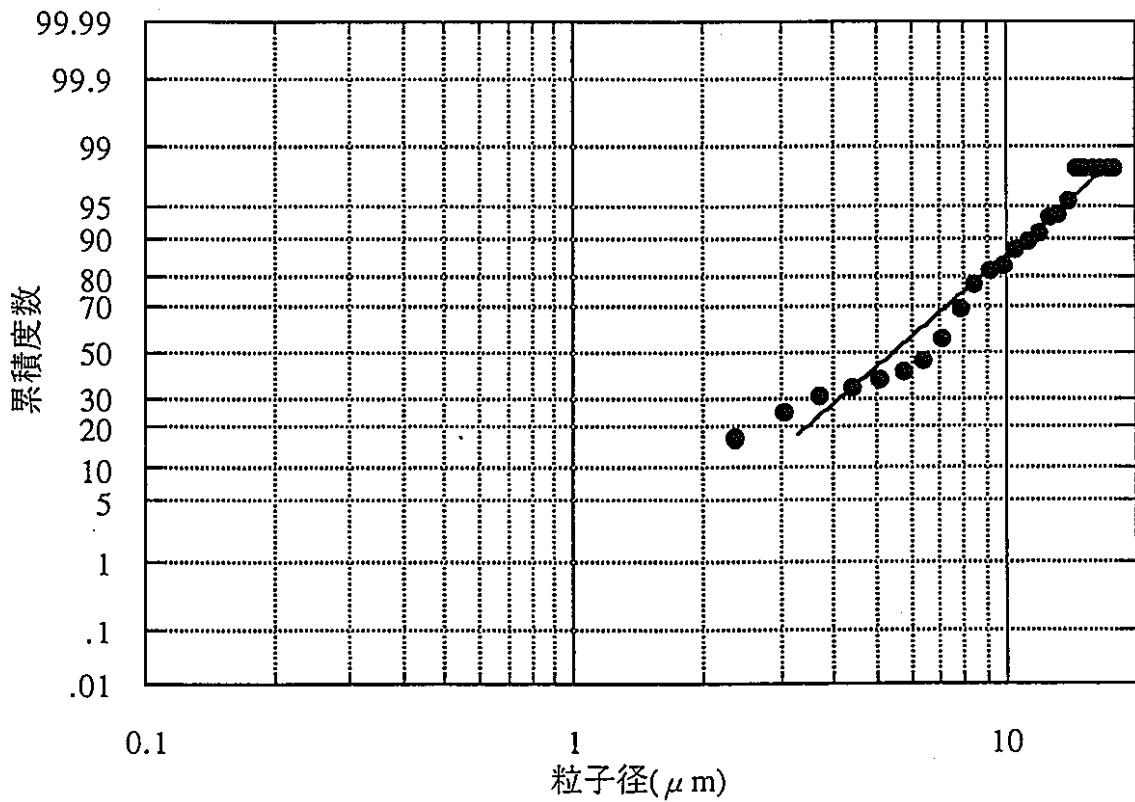


図 6.23-2 廃液蒸発処理工程の粒子径累積度数 (画像)