90. 銀-アルミナ吸着材を用いた自動交換方式 放射性ヨウ素モニタの試作と特性

三河 広治*, 船橋 清美*, 加藤 洋明*, 伊藤 哲男*

(1981年 4月23日 受理)

Characteristics of Prototype Radioactive Iodine Monitor with Silver-Impregnated Alumina Adsorber Exchanged Automatically

By Hiroji MIKAWA, Kiyomi FUNABASHI, Yomei KATO and Tetsuo ITO

In nuclear power stations, the measurement of radioactive iodine(^{131}I) concentration in the atmosphere is necessary for keeping health of employees. The ^{131}I concentration is so low that specific adsorption method and measurements are needed.

This report describes the minimum detection limit of radioactive iodine monitor which uses silver-impregnated alumina. This monitor is composed of a collector which concentrates iodine gas, an exchanger which exchanges the collectors automatically, and NaI(Tl) scintillation counter which measures ^{131}I activity. The collector contains silver-impregnated alumina.

The removal efficiency of iodine collector for methyl iodide in this monitor is more than 95% when relative humidity is 60%. Total detection efficiency for ^{131}I is 12%. The minimum detectable concentration is $7.5 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ for 1 h sampling period.

KEYWORDS: radioactive iodine, radiation monitor, nuclear power stations, collectors, silver-impregnated alumina, detection, iodine 131, efficiency, accuracy, absorbents

I. 緒 言

放射性ヨウ素は人体の甲状腺に蓄積する性質があり、原子力発電所従業員の健康を管理する上で精度よく測定することが必要である。

従来、建屋内の放射性ヨウ素は活性炭に吸着させて検出していたが、活性炭は高湿度下においてヨウ素の吸着性能が低下する傾向を有していた。近年、活性炭に比べて高湿度下におけるヨウ素の吸着性能が良い銀-アルミナ吸着方式が開発され^{(1)~(3)}、ヨウ素モニタの吸着材として使用できる見通しが得られた。

本研究は、銀-アルミナ吸着方式を用いて、建屋内雰囲気中の放射性ヨウ素を一定周期ごとに自動検出する装置を試作し、放射性ヨウ素の検出限界濃度を求め、活性炭と異なる吸着材(銀-アルミナ)を利用した自動交換方式のヨウ素モニタの可能性を明らかにすることを目的に行なったものである。

II. 放射性ヨウ素検出装置の構成

1. 装置の設計方針

建屋内雰囲気中の放射性ヨウ素はきわめて希薄であり、吸着材を充填した捕集器で捕集、濃縮させた後に検出する必要がある。Fig. 1は放射性ヨウ素モニタの機器構成の概要であり、放射性ヨウ素検出装置とデータ処理装置に大別される。前者はヨウ素捕集器を自動的に交換し、空気中のヨウ素を捕集、濃縮してγ線を検出する。後者はγ線検出器の信号を処理し、放射性ヨウ素の濃度を算出する。今回は、前者の放射性ヨウ素検出装置を次の方針に基づいて設計し試作した。

(1) ヨウ素吸着材：銀-アルミナは活性炭をはじめとした他の吸着材に比べて高湿度下におけるヨウ素の吸着効率が優れており^{(1)~(3)}、さらに、大気中の NO_2 、 SO_2 等の影響を受けにくい特性を有している⁽⁴⁾。

* (株)日立製作所エネルギー研究所 (Energy Res. Lab., Hitachi Ltd.)

Fig. 1 Configuration of radioactive iodine monitor

(2) ヨウ素捕集器：銀-アルミナを充填したヨウ素捕集器を使い捨てにせず、効率的な運用を図るためヨウ素の減衰をまって繰り返し使用する方式とした。

(3) 捕集器交換機構：構造を簡略化するため回転板によりヨウ素捕集器を落下交換させる方式とした。

(4) γ 線検出器：メンテナンスの容易な NaI (TI) シンチレーションカウンタを使用する。

(5) 検出限界濃度：法令⁽⁵⁾で定められている¹³¹Iの最大許容空気中濃度の1/100($7.5 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)を1h以内で検出することを目標とした。さらに、軽水型原子炉における放出放射性物質の測定に関する指針⁽⁶⁾での測定下限濃度、 $2 \times 10^{-13} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ (最少計測頻度：1週間に1回)の検出可能性について検討することにした。

2. ヨウ素捕集器の形状

放射性ヨウ素は銀-アルミナを充填した捕集器に取り込まれ、 γ 線検出器でヨウ素の濃度が測定されるが、装置設計の基礎となるヨウ素捕集器の形状について検討した。ヨウ素捕集器内に試料ガスを通過させると、捕集器内の微小厚さ内に吸着されるヨウ素量は次式で示される⁽⁷⁾。

$$Y(x, x+x') = Y_0 e^{-\mu x} (1 - e^{-\mu x'}) \quad (1)$$

ここで、

$Y(x, x+x')$ ：吸着材厚方向の距離 x における微小厚さ(x')内のヨウ素量 (μCi)

Y_0 ：捕集器に流入した試料ガス中の全ヨウ素量 (μCi)

μ ：吸着定数 (cm^{-1})

x ：ヨウ素吸着材の厚さ方向の距離 (cm)

1例として、湿度60%の時の実験結果より吸着定数 μ を計算し($\mu = 2.1$)、ヨウ素吸着材を0.1 cmの厚さに分割して、分割要素ごとのヨウ素吸着割合を求めるとFig. 2 Aとなる。

Fig. 2 Iodine adsorption bed depth vs. detection efficiency (calculated)

一方、ヨウ素捕集器からの γ 線を検出できる確率は、ヨウ素捕集器と検出器の幾何学的位置で定まる γ 線の通過確率と、ヨウ素の γ 線エネルギーで定まるNaI検出器の発光効率とより計算できる。ここでは、計算を簡略化するため、ヨウ素捕集器からの γ 線が検出器を通過する確率を検討する。ヨウ素捕集器を円柱とすると、薄い円板を複数枚重ねたものとして考えることができる。薄い円板の1枚1枚を放射線源とし、放射線が円柱状検出器を通過する確率は次式となる⁽⁷⁾。

$$T = \frac{100}{\pi R^2} \int_0^R x dx \int_{-\pi/2}^{\pi/2} d\phi \left[\int_0^{\tan^{-1}\{D_0/(\lambda_0 + t_0)\}} \left\{ 1 - \exp\left(\frac{-t_0}{\cos\theta}\right) \right\} \sin\theta d\theta \right. \\ \left. + \int_{\tan^{-1}\{D_0/(\lambda_0 + t_0)\}}^{\tan^{-1}(D_0/\lambda_0)} \left\{ 1 - \exp\left(\frac{-D_0}{\sin\theta} + \frac{h_0}{\cos\theta}\right) \right\} \sin\theta d\theta \right] \quad (2)$$

ただし, $D_0 = -x \sin\phi + \sqrt{x^2 \sin^2\phi - (x^2 - r_0^2)}$
 ここで, T : 放射線が円柱状検出器を通過する
 確率 (%)

R : 円板状線源の半径 (cm)

r_0 : 円柱状検出器の半径 (cm)

h_0 : 線源と検出器の距離 (cm)

t_0 : 検出器の円柱長さ (cm)

θ : 線源と検出器の中心軸よりの
 角度 (rad)

ϕ : 検出器の円周角度 (rad)

x : 線源中心軸よりの距離 (cm)

円柱状検出器の直径を 7.6 cm (3 in.), 長さを 7.6 cm (3 in.), 円板状線源の直径を 6 cm (ヨウ素捕集器の直径を検出器の直径とほぼ等しい 7 cm, 吸着材の有効直径を 6 cm と設計した) とし, 線源と検出器の距離 h_0 を変化させて (2) 式を計算した結果を Fig. 2 ③ に示す。

試料ガス中のヨウ素を吸着して吸着材よりの γ 線が検出器を通過する確率は, 微小分割した要素ごとのヨウ素吸着割合 (Fig. 2 ④) と (2) 式により得られた確率 (Fig. 2 ③) とを乗算し, 吸着材厚さ方向に積分した値 (Fig. 2 ⑤) となる。実際の検出効率は NaI 検出器の発光効率 (γ 線エネルギーの関数となる) を考慮する必要があるが, Fig. 2 ⑤ より低い値となるが, ほぼ相似特性になると予想される。ヨウ素の検出感度を高めるためには検出効率が高いことが望ましく, Fig. 2 ⑤ の結果では吸着材の厚さを 1~2 cm 以上にすればよいことがわかる。一方, 試作装置では第 III 章で述べるように, ヨウ素捕集器を重ねておく方式としたため捕集器の厚さを制限する必要があるため 2 cm と設計した。このときの吸着材の有効厚さは 1.4 cm であり, 上記 1~2 cm の範囲内に入っている。

Photo. 1 にヨウ素捕集器の外観を示す。銀-アルミナの充填量は約 50 g であり, 金網を通して試料空気を取り込まれる。ヨウ素が吸着されると吸着効率が低下することが予想されるため, 試料空気に放射性ヨウ化メチルと非放射性ヨウ化メチルを混合させて加速試験を実施した。このときのヨウ化メチルの濃度は, 室内空気中のヨウ化メチルの濃度の約 10,000 倍になるように調整した。実験の結果, ヨウ素の吸着による捕集効

率および吸着放射能分布の変化がほとんどないことを確認したので, 本試作装置ではヨウ素の減衰を待って捕集器を再使用する方式とした。この場合, 吸着放射能によって減衰させる割合が定まる。例えば, 放射能濃度を 2 桁以上低下させる場合の減衰期間は, ^{131}I の半減期 (8.04 d)⁽¹⁰⁾ より 53 d となる。これより, サンプリング周期を 1 d に設定した場合のヨウ素捕集器必要数は 53 個となる。

Photo. 1 Iodine collector

3. ヨウ素捕集器交換機構

ヨウ素検出装置の主要部は, ヨウ素捕集器を供給する部分, 空気中のヨウ素を捕集する部分, 放射性ヨウ素よりの γ 線を検出する部分, ヨウ素捕集器を回収する部分で構成した。主要部分は回転円板の同一円周上に配置し, 円板が $\frac{1}{4}$ 回転することによりヨウ素捕集器が順々に送り出され, ヨウ素の捕集, γ 線の検出, 捕集器の回収が行われる。回転円板上での各部の配置状況を **Photo. 2** に示す。

(1) 捕集器供給部: ヨウ素捕集器は **Photo. 2** で示す捕集器ホルダーに 20 個重ねておかれ, 最下段の捕集器が回転円板に接している。円板が $\frac{1}{4}$ 回転すると円板に開けた穴に重力で落下して 1 個ずつ供給される。ホルダー内の捕集器を全部使用した時はホルダーごと交換する方式とした。

(2) ヨウ素捕集部: 試料空気は **Fig. 3** に示す系統で取り込まれ, 粒子捕集用フィルタで塵が取られる。空気ポンプ, 流量計はヨウ素捕集器の後に設けたが, これは, 試料空気が装置の外部に洩れるのを防止するためにフィルタと捕集器を負圧にすること, および流量計測で圧力の影響をなくすことを考慮したためである。空気ポンプでの空気流量は 30 l/min (ヨウ素捕集

Photo. 2 Rotational table arrangement

Fig. 3 Arrangement of iodine absorption unit

器での流速は 18cm/s)である。

(3) γ 線検出部: 放射性ヨウ素が吸着された捕集器は γ 線検出部に送られて直径

7.6cm, 長さ7.6cmのNaI(Tl)シンチレーションカウンタで検出される。検出器は厚さ5cmの鉛遮蔽物に入れ、ヨウ素捕集器の試料入口側が検出器側となるようにした。なお、ヨウ素捕集部と γ 線検出部を別の位置に設けたのは、 γ 線検出部での放射性物質付着を防止して検出感度を向上させるためである。

(4) 捕集器回収部: ヨウ素捕集器はヨウ素の減衰を待って再使用するため回収する。円板が $\frac{1}{4}$ 回転するごとに下部に設けられた回収用ホルダーに落下する方式とした。

4. 全体構成

前節までに放射性ヨウ素検出装置の主要部について構成を説明したが、全体外観図をPhoto. 3に示す。ヨウ素捕集器供給部、ヨウ素捕集部、 γ 線検出部、捕集器回収部等は装置の中段に設置し、フィルタ、ポンプ、流量計および回転円板駆動機構は下部に配置した。

Ⅲ. 放射性ヨウ素の検出限界濃度

放射性ヨウ素検出装置での検出限界は、ヨウ素の捕集効率、捕集器からの γ 線計測効率、装置設置場所のバックグラウンド計数率等で定まる。

1. ヨウ素の捕集効率と吸着分布

空気中のヨウ素を捕集器に吸着させた時の吸着分布を実験で確認した。実験はFig. 4で示すように、ヨウ

Photo. 3 Radioactive iodine detection apparatus

素捕集部出口にバックアップ用のヨウ素捕集器を6個接続し、各捕集器での吸着量を γ 線検出器で測定し、捕集効率を算出した。試料ガスは、室内空気と放射性ヨウ化メチルならびに非放射性ヨウ化メチルを混合させて作製した。

Fig. 4 Efficiency of radioactive iodine adsorption (experimental)

実験結果はFig. 4に示すとおりで、相対湿度が60%のとき最初の捕集器に95%以上吸着されることがわかる。捕集効率が95%の場合、捕集器内のヨウ素吸着分布は次式ようになる。

$$y(a, l+v) = e^{-2.14} (1 - e^{-2.14v}) \quad (3)$$

ここで、 $y(a, l+v)$: 微小厚さ(l')内のヨウ素吸着割合
 l : ヨウ素捕集器の厚さ方向の距離 (cm)

2. 放射線源の位置と計測効率との関係

装置の計測効率は放射線源と検出器の位置関係および γ 線エネルギーで定まる。この関係を試作装置で確認するため、直径6 cm, 厚さ2 mmの標準線源を捕集器に入れて γ 線を検出して効率を求めた。使用線源は ^{57}Co (0.122 MeV), ^{51}Cr (0.320 MeV), ^{54}Mn (0.835 MeV), ^{22}Na (1.24 MeV)の4核種を用いた。

捕集器中の標準線源位置を変化させて実験し、Fig. 5の結果が得られた。Fig. 5を用いて装置の総合計測効率を求めると次のようになる。

ヨウ素捕集器は薄い円板状吸着材を複数枚重ねたものと考え、ヨウ素の捕集効率95%時の円板1枚ごとのヨウ素吸着割合を(3)式により計算した。次に、各円板ごとの検出効率をFig. 5の実験データ①, ②, ③を用いて補間計算し、円板1枚ごとのヨウ素吸着割合と検出効率を乗算し、これらを合計して装置の総合計測効率を求めた。計算の結果、 ^{131}I では装置の総合計測効率は12%である。

Fig. 5 Total absolute efficiency (experimental)

3. 検出限界濃度

γ 線検出器よりの信号は、ヨウ素捕集器中の放射能による信号とバックグラウンド信号(BG)とが含まれており、両者を識別する必要がある。いま両者の計測時間 T が等しく、BGのカウント数が N_B の時にヨウ素捕集器からの検出限界近傍の γ 線カウント数を N_I とする。 N_B, N_I には統計誤差がおのおの $\sqrt{N_B}, \sqrt{N_I}$ 含まれているが、 N_I が N_B に近いときには、両者の差での統計誤差 σ_N は次式で示される。

$$\sigma_N = \sqrt{N_B + N_I} \div \sqrt{2 N_B} \quad (4)$$

ヨウ素捕集器よりの信号が $3\sigma_N$ より大きい場合にBGとの識別ができるとすると、検出限界濃度計算式は次のようになる。

$$A_I = \frac{3\sqrt{2N_B} \times 100}{3.7 \times 10^4 T \eta_T V} Kd \quad (5)$$

ここで、 A_I : 検出限界濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)

T : 試料とBGの両方の計測時間 (s)

η_T : 装置の総合計測効率 (%)

V : 試料空気通気量 (cm^3)

Kd : 減衰補正

なお、 Kd は ^{131}I の半減期が試料のサンプリング時間および計測時間と比較して十分長くないので、その補正をするもので次式のようになる。

$$Kd = \frac{\lambda_I T_s}{1 - \exp(-\lambda_I T_s)} \cdot \frac{\lambda_I T}{1 - \exp(-\lambda_I T)}$$

ここで, λ_I : ^{131}I の壊変定数 (s^{-1})

T_s : サンプルング時間 (s)

T : 計測時間 (s)

Fig. 6 は, 計測時間とサンプルング時間を等しくした場合の ^{131}I 検出限界濃度を (5) 式で計算した結果である。測定位置における BG が 4 cps 程度であれば, 法令⁽⁵⁾で定められている ^{131}I の最大許容空气中濃度の 1/100 ($7.5 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) を 1 h 以内に検出できる。さらに, 軽水型原子炉における放出放射性物質の測定に関する指針⁽⁶⁾での測定下限濃度 $2 \times 10^{-13} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ はサンプルング時間 1 週間で検出できる可能性がある。

Fig. 6 Sampling and measuring time vs. minimum detection limit (calculated)

IV. 結 言

建屋内の放射性ヨウ素を一定周期ごとに自動検出する装置を試作し, ^{131}I の検出限界濃度を確認した結果を述べたが, これをまとめると次のようになる。

- (1) 放射性ヨウ素捕集材は, 厚さ 1~2 cm 以上で γ 線検出効率がほぼ一定となる。これよりヨウ素捕集器の厚さを 2 cm, 吸着材の有効厚さを 1.4 cm とした。
- (2) 放射性ヨウ素検出装置は, ヨウ素捕集器供給部, ヨウ素捕集部, γ 線検出部, 捕集器回収部を回転円板の同一円周上に設置し, 円板が $\frac{1}{4}$ 回転

するごとにサンプルングと計測を行う。

- (3) ヨウ素の捕集効率は相対湿度が 60% のとき 95% 以上, 装置の総合計測効率は ^{131}I で 12% である。
 - (4) 装置設置場所のバックグラウンドが 4 cps の時, ^{131}I の濃度 $7.5 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ はサンプルング周期 1 h, $2 \times 10^{-13} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ はサンプルング周期 1 週間で検出できる可能性がある。
- 試作装置の主要仕様を Table 1 にまとめておく。

Table 1 Specification of radioactive iodine monitor

Item	Specification
Condition of sampled air	Relative humidity: 10~90% Flow rate: 30 l/min
Iodine collector	Collector size: 70 mm ϕ $\times$ 20 mm Iodine adsorber: Silver-impregnated alumina (Diameter: 1~2 mm ϕ) (Packing weight: 50 g)
γ -ray detector	NaI(Tl) (76 mm ϕ $\times$ 76 mm)
Minimum detectable concentration (Sampling time, i.e. measuring time)	$7.5 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ (1 h) $2 \times 10^{-13} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ (1 week)

最後に, 本装置の開発にあたり, 当初の段階から多大のご助力をいただいた東京電力(株)原子力開発研究所および原子力管理部の諸氏, ならびに(株)日立製作所エネルギー研究所の谷口 薫所長を初め関係者各位に謝意を表します。

—参考文献—

- (1) KIKUCHI, M., et al.: Removal of radioactive methyl iodine by silver-impregnated alumina and zeolite, *Nucl. Eng. Design*, **47**, 283~287 (1978).
- (2) MURATA T., et al.: Development of gaseous radioactive waste treatment systems, *Nuclex 78 Technical Meeting*, B 2/9, (1978).
- (3) KITAMURA, M., et al.: Silver impregnated alumina for removal of radioactive methyl iodine, *ANS Meeting*, Washington D.C., (1979).
- (4) KIKUCHI, M., et al.: Adsorption of radioactive methyl iodine by silver-impregnated alumina, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, **45**(4), 279~288 (1980).
- (5) 放射線を放出する同位元素の数量等を定める件, 科学技術庁告示第22号, (昭35.9.30).
- (6) 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, 原子力委員会, (昭53.9.29).
- (7) HEATH, R.L.: Scintillation spectrometry gamma-ray spectrum catalogue, AEC Res. Development Rep. *Ido-16408*, (1957), Phillips Petroleum Co.