

JAERI-M
82-148

制動X線検出型トリチウムモニタの開発(I)

—サンプリング容器形状と感度との関係,
トリチウム濃度モニタリング範囲—

1982年11月

備後 一義・吉田 真・千田 徹・川崎 克也

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

制動X線検出型トリチウムモニタの開発 (I)

—— サンプリング容器形状と感度との関係,
トリチウム濃度モニタリング範囲 ——

日本原子力研究所東海研究所 保健物理部
備後一義・吉田 真・千田 徹・川崎克也

(1982年9月30日受理)

制動X線を検出し空気中トリチウム濃度を連続測定するモニタの開発試験を実施した。試作した原型トリチウムモニタは、サンプリング容器・ガス循環系、NaI(Tl)検出器、増幅器、多重波高分析器より構成されている。サンプリング容器の形状を208mm ϕ ×290; 170; 70mmH, 133mm ϕ ×292; 172; 72mmH; 55mm ϕ ×294, 174, 74mmHの9種類とし、性能の異なるNaI(Tl)検出器3個を用い、原型トリチウムモニタの感度を求めた。感度は12~57 cps/ μ Ci \cdot cm⁻³の範囲内であった。エネルギー4~17 keVの制動X線によるパルスを計数するようにウィンド幅を設定したとき、原型トリチウムモニタの測定下限濃度が低くなり、空気中トリチウム濃度 5.2×10^{-3} μ Ci/cm³の測定が可能である。

感度の測定、測定下限濃度の評価実験の結果、制動X線検出型トリチウムモニタの濃度モニタリング範囲を、 1×10^{-2} ~ 1×10^3 μ Ci/cm³とすることが十分可能であることが実証された。

Development of Bremsstrahlung Detection Type Tritium Gas
Monitoring System (1)

— Relation between sensitivities and sizes of sampling cylinders,
a monitoring range of tritium concentration in air —

Kazuyoshi BINGO, Makoto YOSHIDA, Tohru CHIDA
and Katsuya KAWASAKI

Division of Health Physics,
Tokai Research Establishment, JAERI
(Received September 30, 1982)

A tritium monitoring system by means of bremsstrahlung detecting was developed. A prototype system consisted of a sampling cylinder, a gas circulating apparatus, an NaI(Tl) detector, an amplifier and a multichannel analyzer. The sizes of sampling cylinders used 208 mm ϕ \times 290; 170; 70 mmH, 133 mm ϕ \times 292; 172; 72 mmH and 55 mm ϕ \times 294; 174; 74 mmH, respectively. The sensitivity of prototype system was from 12 to 57 cps/ μ Ci \cdot cm $^{-3}$, depending on the size of sampling cylinder and an efficiency of NaI(Tl) detector. When pulses due to bremsstrahlungs with energy from 4 to 17 keV were counted, the minimum detectable concentration of the prototype tritium monitoring system was obtained to be 5.2×10^{-3} μ Ci/cm 3 . It was evaluated that the detectable range of concentration was from 1×10^{-2} to 1×10^3 μ Ci/cm 3 .

Keywords: Tritium Gas Monitor, 3 H β -ray, Bremsstrahlung,
NaI(Tl) Detector, Gas Circulating.

目 次

| | |
|-----------------------------------|----|
| 1. 緒 言 | 1 |
| 2. 制動X線検出型トリチウムモニタの概念的構成 | 2 |
| 3. 原型トリチウムモニタの感度および測定可能濃度範囲 | 7 |
| 3.1 実験方法 | 7 |
| 3.2 モニタの感度 | 8 |
| 3.3 測定下限濃度, 上限濃度 | 8 |
| 4. 実験結果の検討 | 18 |
| 4.1 実験系内トリチウムガスの攪拌と濃度の均一性 | 18 |
| 4.2 隔離膜の性能 | 18 |
| 4.3 サンプリング容器壁面での制動X線発生 | 18 |
| 4.4 感度評価の誤差 | 19 |
| 5. 結 論 | 19 |
| 参 考 文 献 | 20 |

CONTENTS

| | |
|---|----|
| 1. Introduction | 1 |
| 2. Conceptual structure of tritium gas monitoring system by means of bremsstrahlung detecting | 2 |
| 3. Sensitivity of the prototype system and a detectable range of concentration of bremsstrahlung detection type monitoring system | 7 |
| 3.1 Experimental method | 7 |
| 3.2 Sensitivity of prototype system | 8 |
| 3.3 The minimum and maximum detectable concentration | 8 |
| 4. Discussion | 18 |
| 4.1 Tritium gas circulation and uniformity of tritium gas concentration in sampling cylinders | 18 |
| 4.2 Permeability of tritium gas to isolation sheet | 18 |
| 4.3 Emission of bremsstrahlungs at the surface of cylinder's inner wall | 18 |
| 4.4 Error in the sensitivity evaluation | 19 |
| 5. Conclusion | 19 |
| References | 20 |

1. 緒 言

核融合研究開発の進展に伴い、その燃料となるトリチウムの製造、精製、処理処分などに関する研究もまた活発に実施されている。そして、トリチウム使用研究施設が増加し、その使用量も従来の数mCi、数Ci程度から数万、数十万Ciに増大するものと予想される。トリチウムの使用施設や使用量の増加に対応した放射線管理体制を確立することが必要である。その一環として、濃度範囲 $1 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^3 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ を測定対象とするトリチウムモニタを開発することとした。空気中のトリチウム許容濃度 $2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ と比較して非常に高い濃度が測定対象である。気密室で使用(貯蔵)中のトリチウム $1 \times 10^5 \text{ Ci}$ のうち 0.01% が容積 100 m^3 の実験室に漏洩したとき、実験室内の平均トリチウム濃度は $0.1 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となる。使用量が多い場合、わずかな漏洩であっても高濃度の空気汚染となる危険性があり、高濃度トリチウムモニタが必要となる。

施設内の空気中トリチウム濃度を連続モニタリングするとき、一般に広く使用されているのは内容積数10ℓの通気式電離箱である。^{1, 2)} このような大型電離箱トリチウムモニタでは、許容濃度 $2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ を精度よく測定することが目標であり、測定上限濃度は比較的 low $1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度であることが多い。照射線量率 $1 \text{ mR}/\text{h}$ の γ 線に伴う放射線場では、電離箱の電離電流はトリチウム濃度 $9.3 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ に相当する。自然環境でのバックグラウンドは約 $10 \mu\text{R}/\text{h}$ であり、³⁾ トリチウム濃度約 $1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ に対応する。電離箱の遮蔽や γ 線補償を行い他の放射線による影響を少なくすることが必要である。他の放射性ガスとの区別が困難なこと、内部汚染による指示値の上昇などが電離箱型トリチウムモニタの欠点である。上記のような欠点はあるが、誘導空気中濃度(DAC)⁴⁾ $8 \times 10^5 \text{ Bq}/\text{m}^3$ ($\approx 2.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$, HTO), $2 \times 10^{10} \text{ Bq}/\text{m}^3$ ($\approx 5.4 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$, HT) より低い濃度のトリチウムのリアルタイム測定が可能であり、電離箱型トリチウムモニタは今後とも広く使用されるものと思われる。しかし、トリチウム濃度が高い場合は、電離イオンの再結合、内部汚染等のため、電離箱型モニタでは測定が困難である。このため、高濃度トリチウムモニタの開発に当っては、制動X線を検出し濃度を測定評価する方法を採用した。³H β 線の最大エネルギーが 18.6 keV と低いため、^{5, 6)} 制動X線の発生率が低い。発生率の低い制動X線を検出するにはトリチウム濃度が高いことが必要であり、高濃度トリチウムモニタに適した測定方法である。制動X線検出型濃度測定方法は、着色、油脂成分の混入などの原因で液体シンチレーション測定が困難な液体試料や金属などの固体試料の測定に利用されている。^{1, 7~11)} しかし、空気中トリチウム濃度の測定に応用された例はないものと思われる。

本報告では、制動X線検出型トリチウムモニタの概念的な構成について記述する。トリチウムガスを連続サンプリングし制動X線検出器を設置する容器の形状とモニタの感度(単位放射能濃度当りの計数率)との関係の実測実験および測定下限濃度を求めるための実験の結果について述べる。また、連続監視可能な空気中トリチウム濃度の測定範囲について検討する。

2. 制動X線検出型トリチウムモニタの概念的構成

空気中許容濃度 $2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ と比較して非常に高い濃度 $1 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の測定対象の中心と想定しているため、モニタを設計構成する場合、点検作業者の被曝線量低減、検出器の汚染防止など留意すべき点が多い。制動X線検出型トリチウムモニタの概念的な構成を Fig. 1 に示す。被曝防止のためトリチウム高濃度室内の空気を連続サンプリングする方法を採用し、サンプリング容器内の ^3H β 線による制動X線をNaI(Tl) 検出器で計測し空気中トリチウム濃度を連続モニタリングする。制動X線に対する吸収係数の小さい低原子番号薄膜を制動X線入射窓に張り隔離膜とすることによりNaI(Tl) 検出器の汚染を防止する。混在する放射線による計数率の増加を防ぐため、検出器を遮蔽することも必要である。サンプリング装置や検出器の点検・修理の際の点検者の被曝防止のため、吸排気可能な室または大型容器内にこれらの装置を格納することも必要である。電源、増幅器、波高分析器 (single channel analyzer = SCA)、濃度指示計 (ratemeter) 等は一般の清浄作業室に設置する。

空気中トリチウム濃度が一定であってもサンプリング容器の内容積や形状によってモニタの感度 (濃度当りの計数率, $\text{cps}/\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$) が異なるものと想定される。このため、Fig. 2 に示されているように直径および高さの異なる9種類のサンプリング容器を直列に接続した実験系を作製した。サンプリング容器および検出器挿入筒の形状の1例を Fig. 3 に示す。サンプリング容器は内径 55mm 高さ 74; 174; 294mm, 内径 133mm 高さ 72; 172; 292mm, 内径 208mm 高さ 70; 170; 290mm である。^{*} 隔離膜には厚さ $1.64 \text{mg}/\text{cm}^2$ の mylar 膜を使用した。制動X線は隔離膜から検出器へ入射する。入射膜面の直径は 55mm である。系内のトリチウム濃度は直列に接続された電離箱で連続測定する。電離箱は内容積 $1.48 \times 10^3 \text{cm}^3$ の円筒形ステンレス鋼製である。トリチウムガスに対する校正試験は実施済である。¹²⁾ トリチウムガス導入部およびU字管型水銀マンオメータを除く全配管は $1/4$ in の銅パイプである。バルブは全て真ちゅう製ベローバルブである。系内のガス攪拌に使用したダイアフラムポンプの能力は $16 \text{l}/\text{min}$ である。

実験に使用した検出器は直径 50.8mm 厚さ 1mm の NaI(Tl) 検出器である。入射窓は厚さ 0.127mm (5mil) の Be 窓であり口径は 48mm である。同型 5本の検出器の性能を ^{55}Fe , ^{109}Cd X線線源で比較した。 ^{55}Fe , ^{109}Cd 線源のX線エネルギーおよび強度を Table 1 に示す。⁵⁾ 線源からNaI(Tl) 前面までの距離を 100mm としたときの正味計数率 (X線によるパレスのほぼ全数を計数するように多重波高分析器の channel 幅を選択) を Table 2 に示す。エネルギーの高い ^{109}Cd 線源に対する計数率は平均 $168 \pm 4 \text{cps}$ であり、5本の検出器の性能は一致しているが、エネルギーの低い ^{55}Fe 線源の場合計数率が検出器ごとに異なっている。Na 983, 985, 986 の3本の検出器を選択し、各検出器ごとに増幅器、多重波高分析器を用意し、3系統

* 高さは底面から隔離膜までの距離。内径 133mm, 208mm の容器の場合、Fig. 3 に示されているように上部 10mm の部分が内径がせまくなっている。

の制動X線計測装置を使用した。Fig. 2.3で示されているサンプリング容器および検出器挿入筒，ガス循環系および制動X線計測装置を原型トリチウムモニタと名付ける。*

* 実際のモニタの場合は多重波高分析器ではなく，Fig. 2のようにSCA，濃度指示計が使用される。

Table 1 Nuclear-Decay Data of X-ray Sources

| Nuclide | Half Life | Radiation Type | Energy (keV) | Intensity (%) |
|-------------------|-----------|----------------------|--------------|---------------|
| ^{55}Fe | 2.7 y | X-ray $K_{\alpha 2}$ | 5.88765 | 8.2 |
| | | X-ray $K_{\alpha 1}$ | 5.89875 | 16.3 |
| | | X-ray K_{β} | 6.49 | 3.3 |
| ^{109}Cd | 464 d | X-ray $K_{\alpha 2}$ | 21.9903 | 29.1 |
| | | X-ray $K_{\alpha 1}$ | 22.16290 | 55.1 |
| | | X-ray K_{β} | 24.9 | 17.8 |
| | | γ -ray | 88.0320 | 3.73 |

(cited from NCRP Report No. 58)⁵⁾

Table 2 Response of NaI(Tl) Detector to X-rays

| Detector Number | Counting rate at 100mm from source to detector (counts/s) | |
|-----------------|---|-------------------|
| | ^{55}Fe | ^{109}Cd |
| 732 | 62.5 | 163 |
| 983 | 78.3 | 173 |
| 984 | 58.4 | 167 |
| 985 | 63.1 | 168 |
| 986 | 77.0 | 170 |

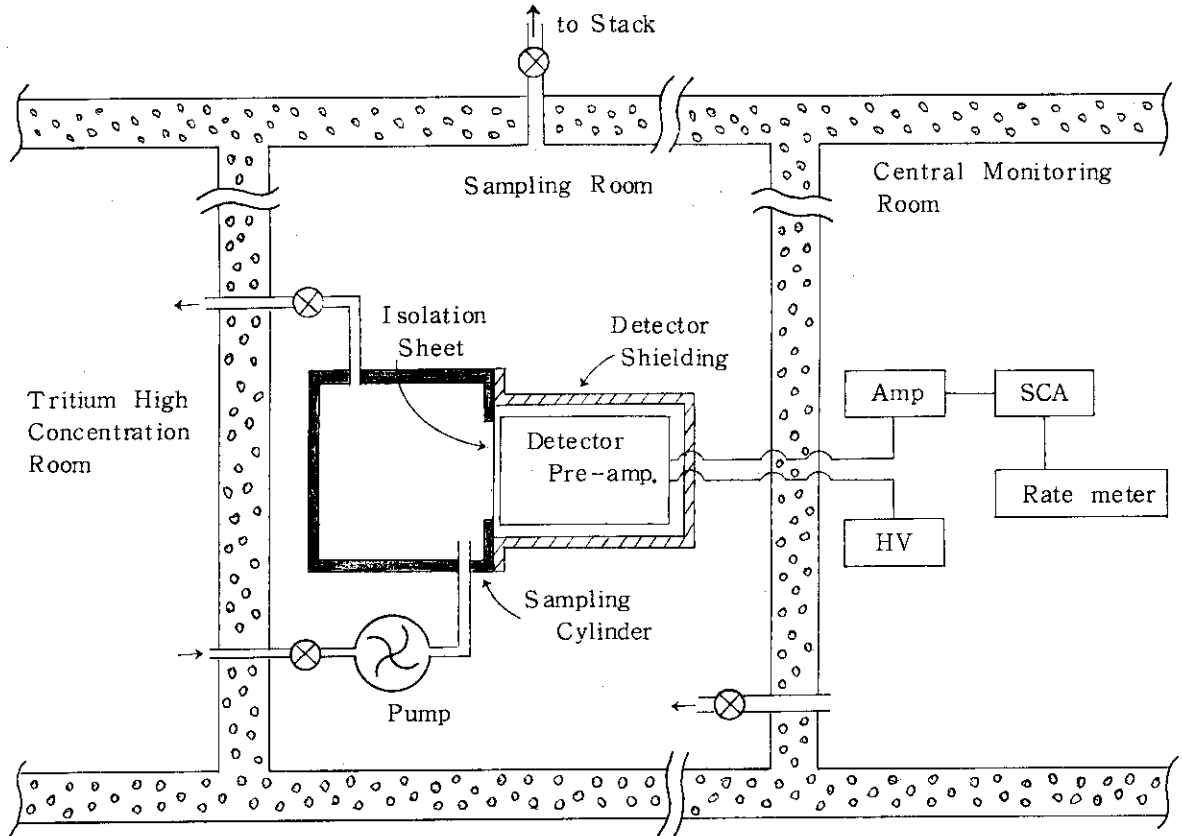


Fig. 1 Conceptual structure of tritium gas monitoring system.

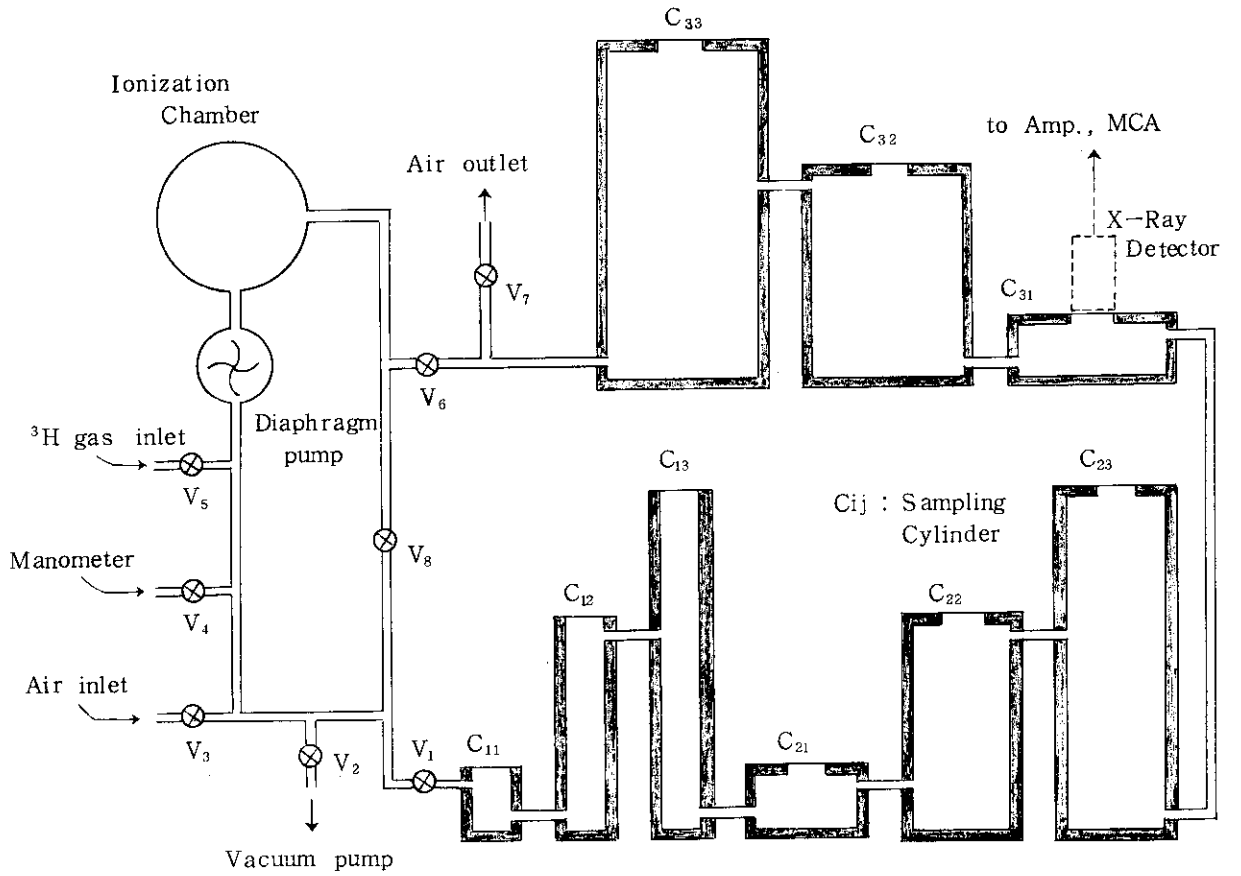


Fig. 2 Tritium gas circulating and concentration measuring apparatus.

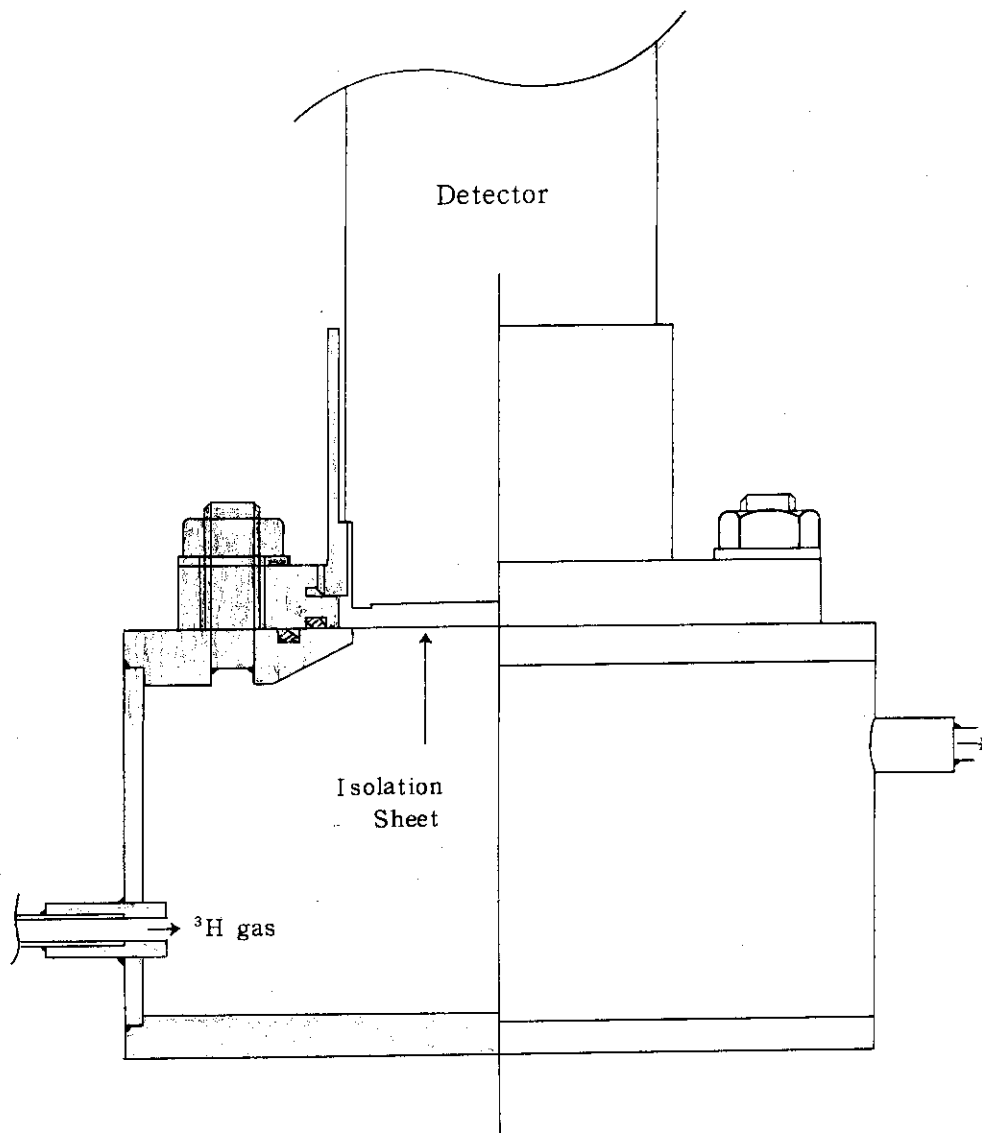


Fig. 3 Cut-away view of a tritium gas sampling cylinder.

3. 原型トリチウムモニタの感度および測定可能濃度範囲

3.1 実験方法

実験系を酢酸ビニール膜で作製した簡易テント内に設置し、テントの一端を化学実験フードに接続し、トリチウムガスが系外に漏洩した場合外部に排気されるようにした。検出器を除く制動X線測定装置、電離箱の出力電流測定用振動容量電位計および記録計はテント外に設置した。実験は次の順序で実施した。

- 1) 検出器への印加電圧は 1000 V 固定とし、チャンネル当り 0.2 keV となるように増幅器の増幅率を調整した。増幅率の調整には ^{55}Fe , ^{65}Zn , ^{85}Sr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{109}Cd X線線源を使用した。制動X線測定装置の調整後、各サンプリング容器ごとのバックグラウンド測定を行う。
- 2) 高圧ポンプ内で十分に経時した乾燥空気を実験室内に導入し、実験系内の空気を乾燥空気とする (Fig. 2 のバルブ V_2 , V_5 , V_6 を閉じ、 V_3 を開き乾燥空気を系内に入れ、開状態のバルブ V_7 から系外に排気することにより空気を置換する)。十分に置換した後 V_3 , V_7 を閉じる。 V_2 を開き真空ポンプで徐々に排気し系内圧を 730 mm Hg とし V_2 を閉じる。 V_1 , V_6 を閉じサンプリング容器内に乾燥空気を保持する。
- 3) トリチウムガスを実験系内に導入するため、トリチウムガス線源を取付けるとともに、 V_2 を開け電離箱部分 (バルブ V_1 , V_6 で区分された左側部分) を真空とする。真空であることをマンメータで確認し V_2 を閉じ真空引きを終了する。ガス線源を開け系内にトリチウムガスを導入し V_5 を閉じる。
- 4) バルブ V_5 を閉じ、 V_1 , V_6 を開けダイアフラムポンプを動作させトリチウムガスが系内で一様な濃度となる様に攪拌する。攪拌を停止し、高圧ポンプからの乾燥空気を V_3 より導入し、系内を若干負圧の 730 mm Hg とする。^{*}攪拌を再開し、電離箱により系内のトリチウム濃度を連続測定し、一様に攪拌されたことを確認する。
- 5) 攪拌を停止した状態で制動X線によるパルスの波高分布を測定する。検出器を順次移動し、全サンプリング容器について制動X線によるパルスの波高分布を測定する。この間、数度の攪拌と系内トリチウム濃度の測定を実施する。

系内トリチウムガス濃度を連続監視した電離箱の電離電流の記録例を Fig. 4 に示す。ダイアフラムポンプを停止すると電離電流は一定値を示し続ける。ポンプを動作すると経過時間 4 ~ 9 min の指示値で示されているように攪拌により一定値となるが指示値のゆれ幅がやや大きい。攪拌を終えると若干低い一定の指示値となる。ポンプ動作時よりも停止時の方が指示値が低いのは配管の抵抗のためポンプの送風側に位置している電離箱内の気圧が全系内の平均気圧よりも高くなるためである。電離箱部分とサンプリング容器を結ぶ配管が長く細いため電離箱からのトリチウムの拡散が遅くほぼ一定の指示値のまま推移し、攪拌後にサンプリング容器の

* 気圧が 400 mmHg 以上の場合 電離効率是一定値となるので、放射能濃度測定が可能である¹²⁾。

隔離膜からの漏洩に対応したやや低い指示値となることが Fig. 4 からわかる (4.2 節参照)。ポンプ動作終了直後の電離電流からその時刻における系内のトリチウム放射能濃度を求めた。放射能濃度と経過時間との関係を Fig. 5 に示す。ポンプ動作中は配管抵抗により各サンプリング容器に気圧差が生じサンプリング容器ごとの放射能濃度が不明となる。ポンプ停止時に制動 X 線を測定した。隔離膜からの浸透拡散により放射能濃度が低下するが、制動 X 線測定時の放射能濃度は Fig. 5 で示されている曲線から求めた。

3.2 モニタの感度

3 系統の制動 X 線測定装置を同時に使用し、各サンプリング容器ごとの制動 X 線によるパルスの波高分布を測定した。検出器番号 983, 986, 985 に対応した測定器系をそれぞれ No. 1, 2, 3 と呼ぶ。波高分布の測定結果の例を Fig. 6 a, b, c に示す。横軸は X 線 (光子) エネルギーで表示した。サンプリング容器の直径が小さくなるに従って波高分布のピーク位置のエネルギー (波高値) が低下している。低エネルギー X 線に対する計数性能の悪い検出器を使用した No. 3 の測定器系の波高分布のピーク位置が他の測定器系の場合よりも約 0.5 keV 高い。また、単位放射能濃度単位エネルギー幅当りの計数率が他の測定器系の場合よりも低い。

制動 X 線によるパルスの波高値は Fig. 6 a, b, c で示されているような波高分布であるため、パルス計数のウィンド幅によって原型トリチウムモニタの感度が異なる。制動 X 線による波高分布の測定結果から求めた原型トリチウムモニタの感度を Table 3 に示す。また、感度の一部を Fig. 7 に示す。原型トリチウムモニタの感度が、サンプリング容器の形状、測定器系、パルス計数のウィンド幅によって異なることがわかる。原型トリチウムモニタの感度とサンプリング容器の高さとの関係を Fig. 8 に示す。パルス計数のウィンド幅は 4 ~ 17 keV である。^{*} 高さが高くなるにつれトリチウム放射能が増加するにも拘らず感度一定 (55mmφ) または中間の高さで感度が高くなるのは容器の壁面で制動 X 線が発生する割合が高いためと想定される (5.3 節参照)。

3.3 測定下限濃度, 上限濃度

トリチウム放射能濃度の測定下限は、モニタの感度、バックグラウンド計数率および指示計の時定数によって定まる。バックグラウンド計数率 N_b から分離可能な正味の計数率の最小値 N_{min} として計数誤差の K 倍をとる。 N_{min} は次の式で与えられる。¹³⁾

$$N_{min} = \frac{K}{2} \left\{ \frac{K}{2\tau_m} + \sqrt{\left(\frac{K}{2\tau_m}\right)^2 + 2N_b \left(\frac{1}{\tau_m} + \frac{1}{\tau_b}\right)} \right\} \quad (1)$$

ここで、 τ_m 、 τ_b は計数率がそれぞれ $N_{min} + N_b$ 、 N_b のときの濃度指示計の時定数である。原型トリチウムモニタの感度を S cps/ $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$ とするとき測定下限濃度 C_{min} は

* エネルギー範囲 4 ~ 17 keV の制動 X 線によるパルスを計数する。

$$C_{\min} = N_{\min} / S \quad (2)$$

で表される。

各測定器系ごとに全サンプリング容器についてバックグラウンド計数の場合の波高分布を長時間計数して求めた。サンプリング容器ごとのバックグラウンド計数に有意な差が認められないので N_b については各測定器系でのみ区別した。バックグラウンドのパルス波高分布を Fig. 9 に示す。バックグラウンド計数率はパルス計数のウィンド幅によって異なるので、感度を定めた時を同様に各ウィンド幅ごとにバックグラウンド計数率を求めた。濃度指示計として原研放射線管理用モニタ規格で採用されているログレートメータ 339 と同様の規格品を使用するものと仮定する。ログレートメータ 339 の計数率と時定数との関係を Fig. 10 に示す。 N_b に対応して τ_b を Fig. 9 から求めることができるが、 N_{\min} が未知であるから τ_m が定まらない。このため、第 1 回目の計算では $\tau_m^{(1)} = \tau_b$ として (1) 式より $N_{\min}^{(1)}$ を定める ($K=3$)、第 2 回目の計算では $N_{\min}^{(1)} + N_b$ に対応する時定数 $\tau_m^{(2)}$ を τ_m として $N_{\min}^{(2)}$ を求める。 $\tau_m^{(i+1)} = \tau_m^{(i)}$ 、 $N_{\min}^{(i+1)} = N_{\min}^{(i)}$ となるまで $i+1$ 回の計算を続行し N_{\min} ($=N_{\min}^{(i+1)}$) を定める。このようにして定めた N_{\min} を (2) 式に代入し原型トリチウムモニタの測定下限濃度を求める。パルス計数のウィンド幅ごとに求めた原型トリチウムモニタの測定下限濃度を Table 4 に示す。さらに、その一部を Fig. 11 に示す。ウィンド幅を制動 X 線のエネルギー 4 ~ 17 keV に対応する位置に設定したとき測定下限濃度が低くなり、最良の測定条件であることがわかる。* Fig. 7 に示されているように弁別レベルが低くなりウィンド幅が広くなると原型トリチウムモニタの感度が高くなるにも拘らず、測定下限濃度が高くなるのは弁別レベルが低くなるとバックグラウンド計数率が高くなり、(2) 式の分子 N_{\min} もまた大きな値となるためである。測定器系 No. 2、ウィンド幅 4 ~ 17 keV 相当、サンプリング容器 208 $\phi \times$ 290H (mm) のとき測定下限濃度が最も低く $5.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ である。

ログレートメータ 339 の上限計数率は 10^5 cps である。原型トリチウムモニタの感度は 12 ~ 57 cps/ $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$ であるから、 $10^3 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ までの測定は十分可能である。

* 低エネルギー X 線に対する計数性能の悪い No. 985 検出器を用いた No. 3 測定器系の場合は、ウィンド幅を 4.5 ~ 17 keV 相当に設定したとき測定下限濃度が最低となる。

Table 3 Sensitivity of prototype tritium gas monitoring system

| Window width (keV) | Cylinder size (mm) | | Sensitivity (cps/ $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$) | | | | | | | | | | | |
|--------------------|--------------------|-----------------|---|------|------|------|------|------|------|------|------|--|--|--|
| | System number | diameter height | 208 | | | 133 | | | 55 | | | | | |
| | | | 290 | 170 | 70 | 292 | 172 | 72 | 294 | 174 | 74 | | | |
| 3.0 ~ 17.0 * | 1 | 1 | 57.2 | 53.2 | 38.3 | 41.4 | 51.0 | 42.8 | 27.0 | 28.2 | 27.1 | | | |
| | 2 | 2 | 54.6 | 51.6 | 36.3 | 40.7 | 48.2 | 39.8 | 27.3 | 26.9 | 25.5 | | | |
| | 3 | 3 | 38.4 | 35.4 | 24.9 | 28.9 | 34.5 | 28.4 | 17.5 | 17.6 | 18.0 | | | |
| 3.5 ~ 17.0 | 1 | 1 | 54.7 | 50.8 | 36.2 | 39.2 | 48.4 | 40.5 | 25.4 | 26.4 | 25.5 | | | |
| | 2 | 2 | 52.1 | 50.0 | 34.2 | 38.5 | 45.9 | 38.8 | 25.6 | 25.2 | 24.5 | | | |
| | 3 | 3 | 37.3 | 34.5 | 24.0 | 27.8 | 33.1 | 28.4 | 16.9 | 17.1 | 16.7 | | | |
| 4.0 ~ 17.0 | 1 | 1 | 48.8 | 45.3 | 31.8 | 34.7 | 43.2 | 35.8 | 21.7 | 23.3 | 22.5 | | | |
| | 2 | 2 | 47.1 | 43.9 | 30.4 | 34.3 | 41.1 | 33.6 | 22.6 | 22.3 | 21.5 | | | |
| | 3 | 3 | 35.2 | 32.2 | 22.6 | 26.0 | 32.1 | 25.8 | 15.8 | 15.9 | 15.8 | | | |
| 4.5 ~ 17.0 | 1 | 1 | 42.8 | 39.7 | 27.4 | 30.0 | 37.8 | 31.2 | 18.9 | 20.1 | 19.5 | | | |
| | 2 | 2 | 41.9 | 39.2 | 26.5 | 30.3 | 36.7 | 29.6 | 19.7 | 19.4 | 18.7 | | | |
| | 3 | 3 | 32.4 | 29.5 | 20.5 | 23.5 | 28.2 | 23.4 | 14.3 | 14.3 | 14.2 | | | |
| 5.0 ~ 17.0 | 1 | 1 | 36.3 | 33.6 | 22.9 | 25.2 | 31.7 | 26.3 | 15.6 | 16.8 | 16.3 | | | |
| | 2 | 2 | 35.1 | 32.8 | 21.7 | 24.9 | 30.5 | 24.4 | 16.2 | 16.1 | 15.6 | | | |
| | 3 | 3 | 28.5 | 25.8 | 17.9 | 20.4 | 24.7 | 20.6 | 12.4 | 12.4 | 12.5 | | | |

* $^3\text{H} \beta$ - rays' Bremsstrahlungs with energy from 3.0 to 17.0 keV are measured

Table 4 Minimum measurable tritium concentration of prototype tritium gas monitoring system

| Window width (keV) | Cylinder size (mm) | | Minimum measurable tritium concentration (nCi/cm^3) | | | | | | | | | | | | | | |
|--------------------|--------------------|--------------------|---|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|----|----|----|----|----|----|----|
| | System number | diameter height | 208 | | | | | 133 | | | | | 55 | | | | |
| | | | 290 | 170 | 70 | 292 | 172 | 72 | 294 | 174 | 74 | | | | | | |
| 3.0 ~ 17.0 * | 1 | 1 | 7.2 | 7.7 | 11 | 9.9 | 8.1 | 9.6 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 |
| | 2 | 2 | 6.5 | 6.9 | 10 | 8.7 | 7.3 | 8.9 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 |
| | 3 | 3 | 11 | 12 | 16 | 14 | 12 | 14 | 23 | 23 | 23 | 23 | 23 | 23 | 23 | 23 | 23 |
| 3.5 ~ 17.0 | 1 | 1 | 6.3 | 6.8 | 9.5 | 8.8 | 7.1 | 8.5 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 |
| | 2 | 2 | 5.6 | 5.8 | 8.5 | 7.5 | 6.3 | 7.4 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 |
| | 3 | 3 | 8.4 | 9.1 | 13 | 11 | 9.5 | 11 | 19 | 19 | 19 | 19 | 19 | 19 | 19 | 19 | 19 |
| 4.0 ~ 17.0 | 1 | 1 | 5.8 | 6.3 | 8.9 | 8.1 | 6.5 | 7.9 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 |
| | 2 | 2 | 5.2 | 5.6 | 8.0 | 7.1 | 5.9 | 7.3 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 | 11 |
| | 3 | 3 | 7.5 | 8.2 | 12 | 10 | 8.2 | 10 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 |
| 4.5 ~ 17.0 | 1 | 1 | 5.8 | 6.2 | 9.1 | 8.3 | 6.6 | 7.9 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 |
| | 2 | 2 | 5.4 | 5.8 | 8.6 | 7.5 | 6.2 | 7.7 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 | 12 |
| | 3 | 3 | 7.0 | 7.8 | 11 | 9.7 | 8.1 | 9.7 | 16 | 16 | 16 | 16 | 16 | 16 | 16 | 16 | 16 |
| 5.0 ~ 17.0 | 1 | 1 | 6.2 | 6.7 | 9.8 | 8.9 | 7.1 | 8.6 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 | 14 |
| | 2 | 2 | 6.0 | 6.4 | 9.7 | 8.5 | 6.9 | 8.6 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 | 13 |
| | 3 | 3 | 7.2 | 8.0 | 12 | 10 | 8.3 | 10 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 | 17 |

* $^3H \beta$ - rays' bremsstrahlungs with energy from 3.0 to 17.0 keV are measured

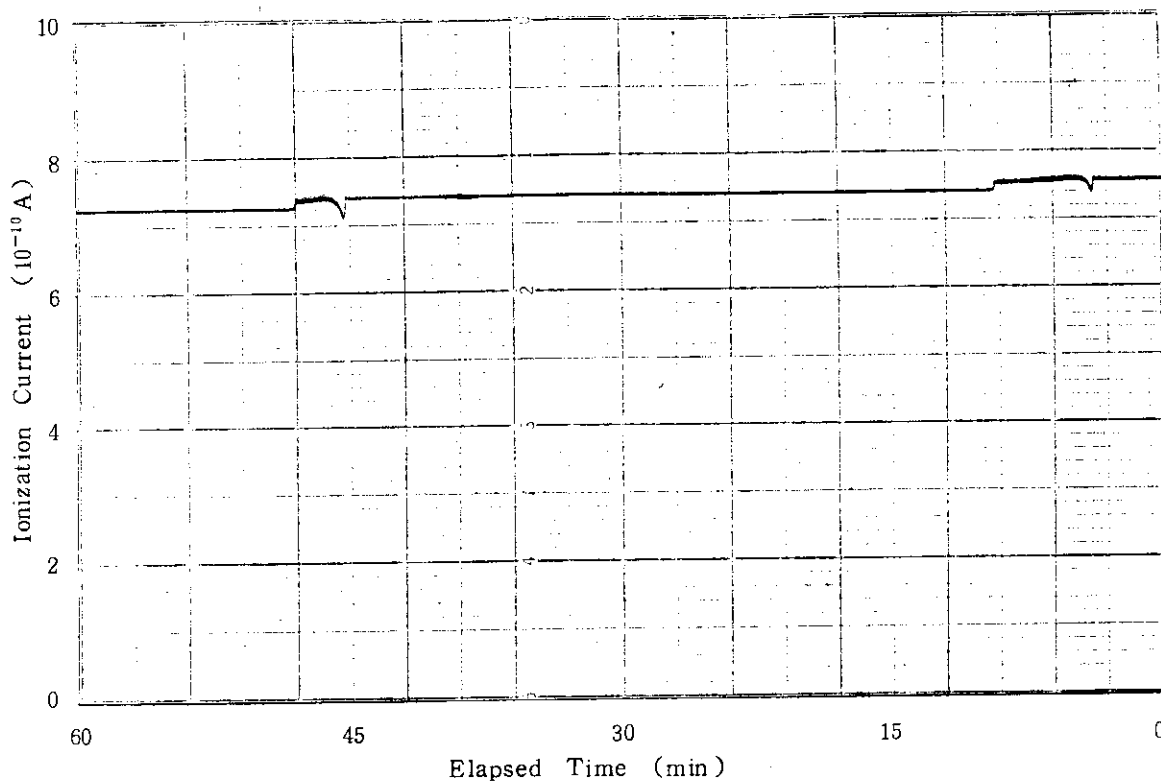


Fig. 4 Out put current of ionization chamber for tritium gas concentration measurement.

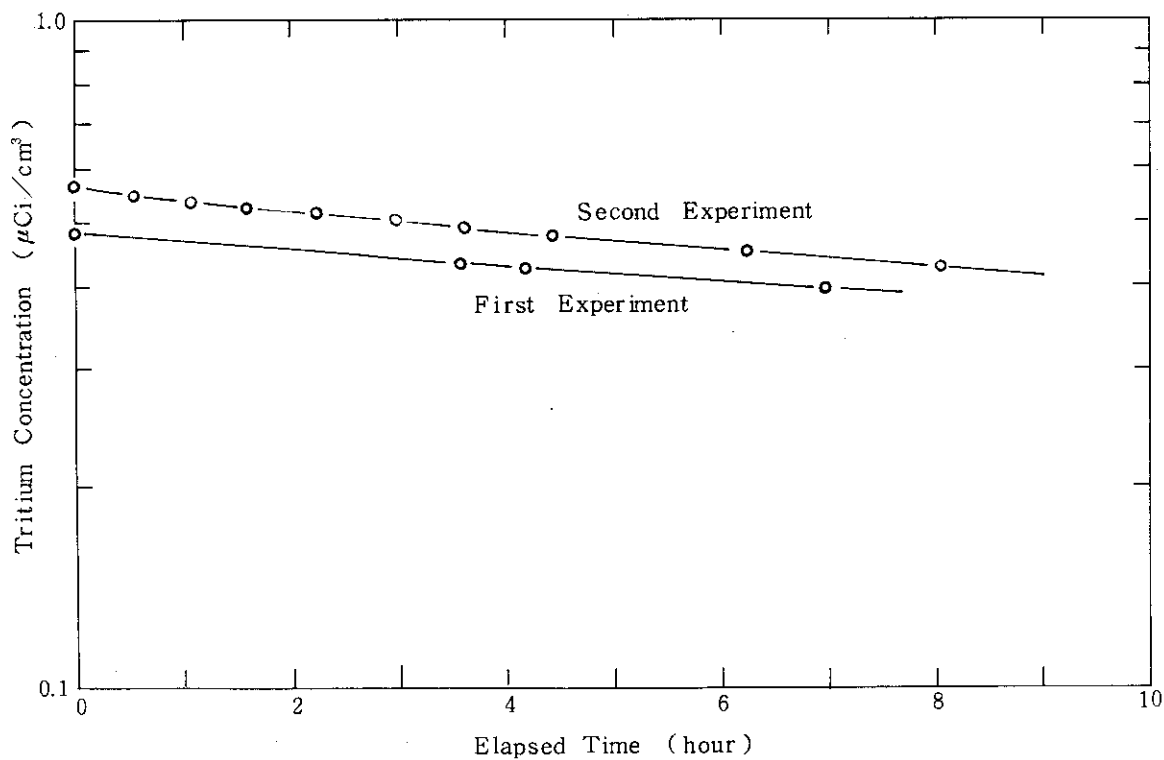
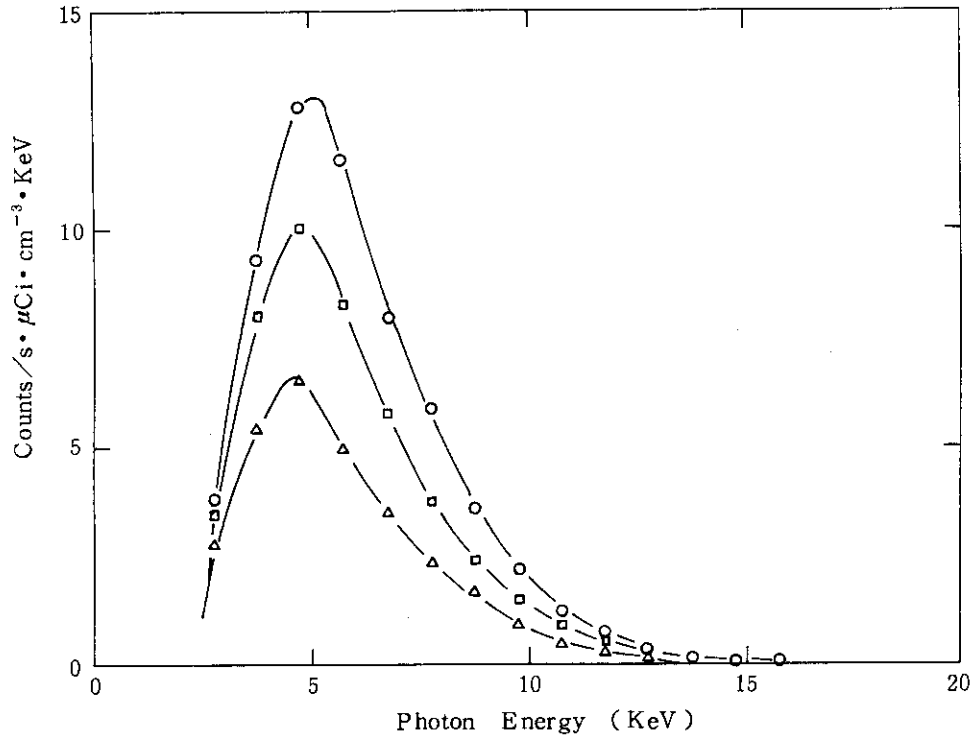
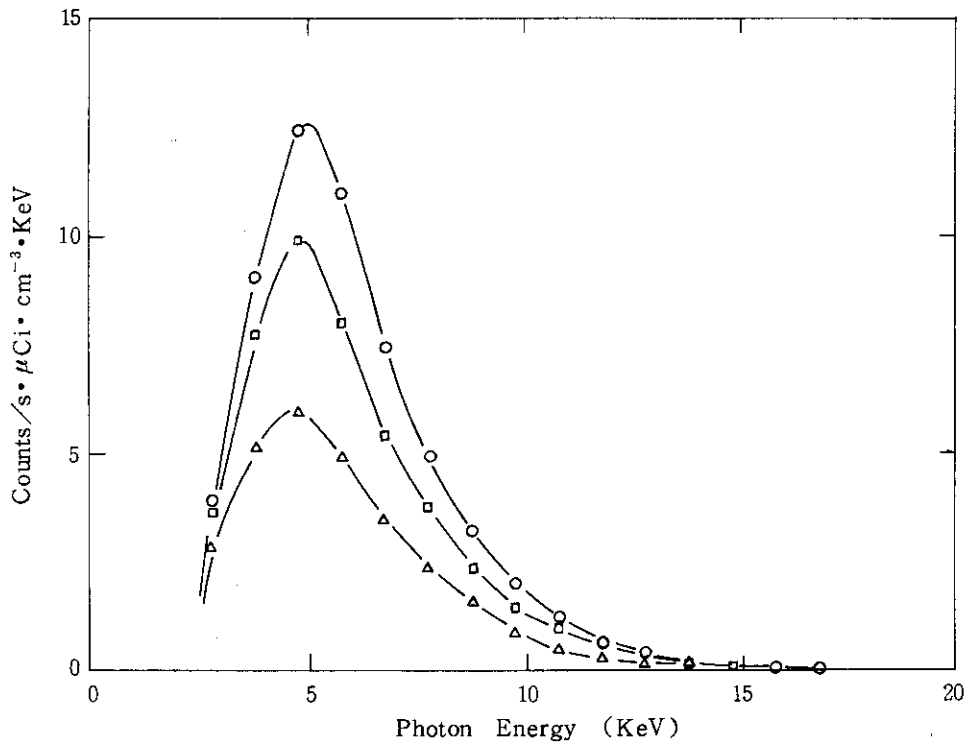


Fig. 5 Tritium gas concentration in the apparatus.



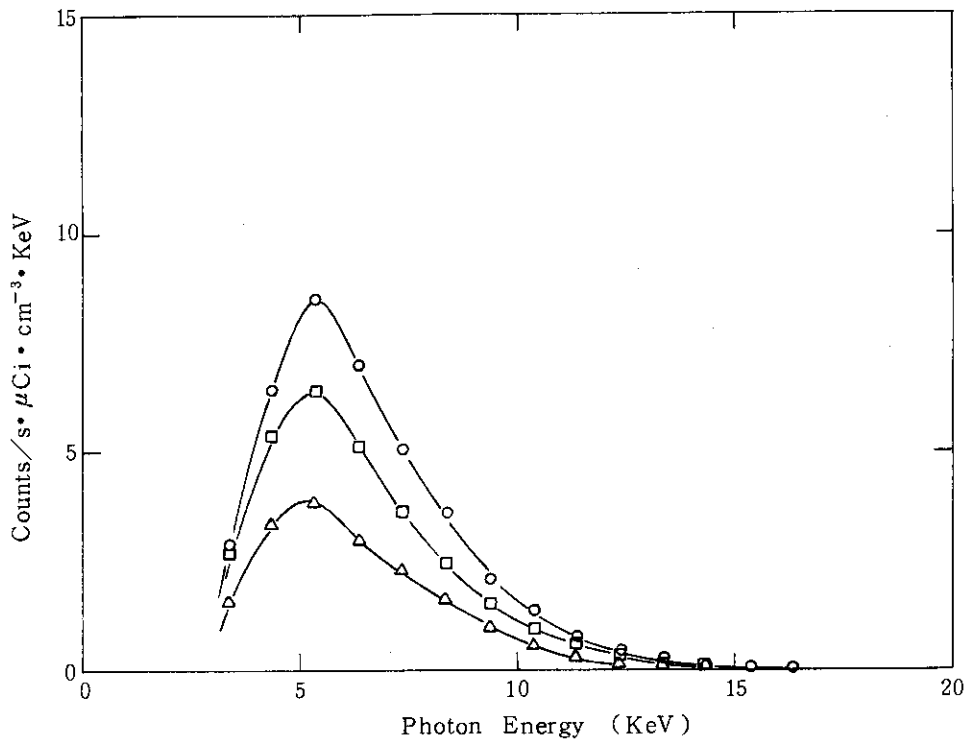
(a) Measuring system No.1 (the detector number 983)



(b) No. 2 (id. 986)

Fig. 6 Pulse height distribution of ^3H β -ray bremsstrahlungs

- : 208 mm ϕ \times 290 mm H
- : 133 mm ϕ \times 292 mm H
- △ : 55 mm ϕ \times 294 mm H



(c) No 3 (id. 985)

Fig. 6 Pulse height distribution of ^3H β -ray bremsstrahlung

- : 208 mm ϕ \times 290 mm H
- : 133 mm ϕ \times 292 mm H
- △ : 55 mm ϕ \times 294 mm H

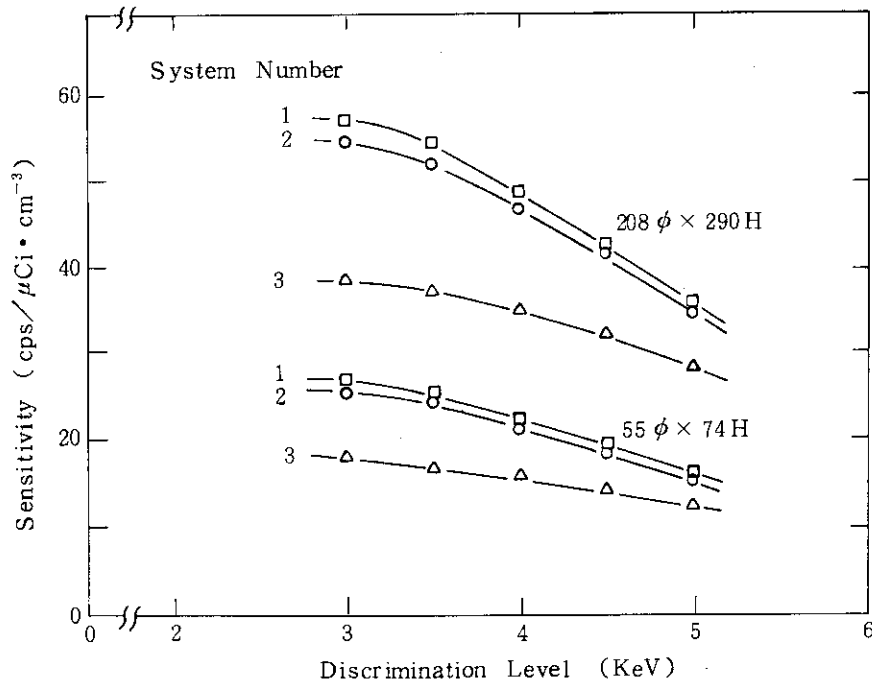
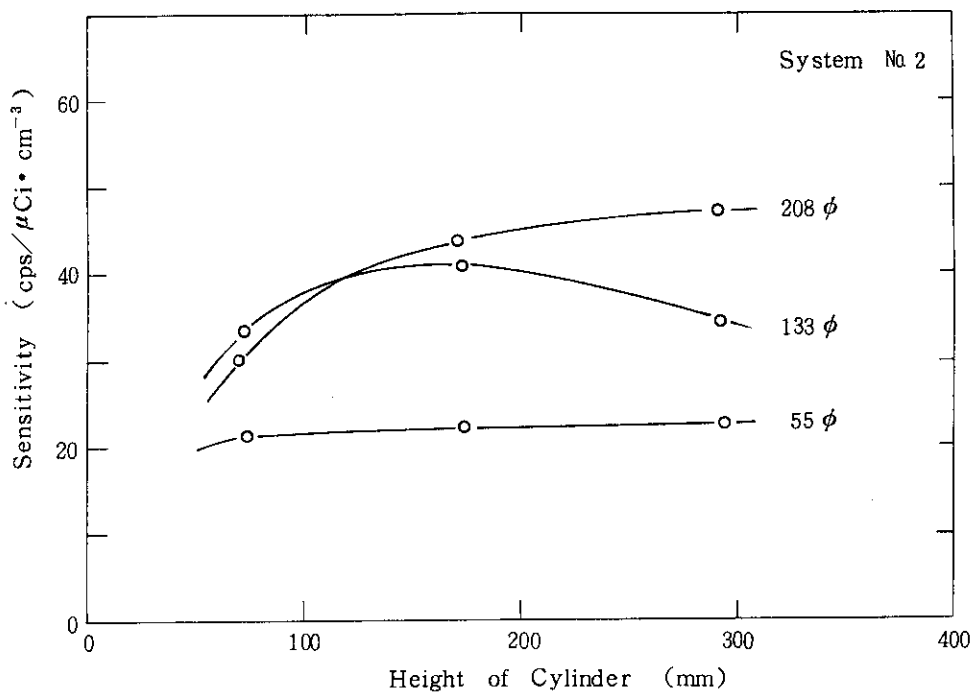
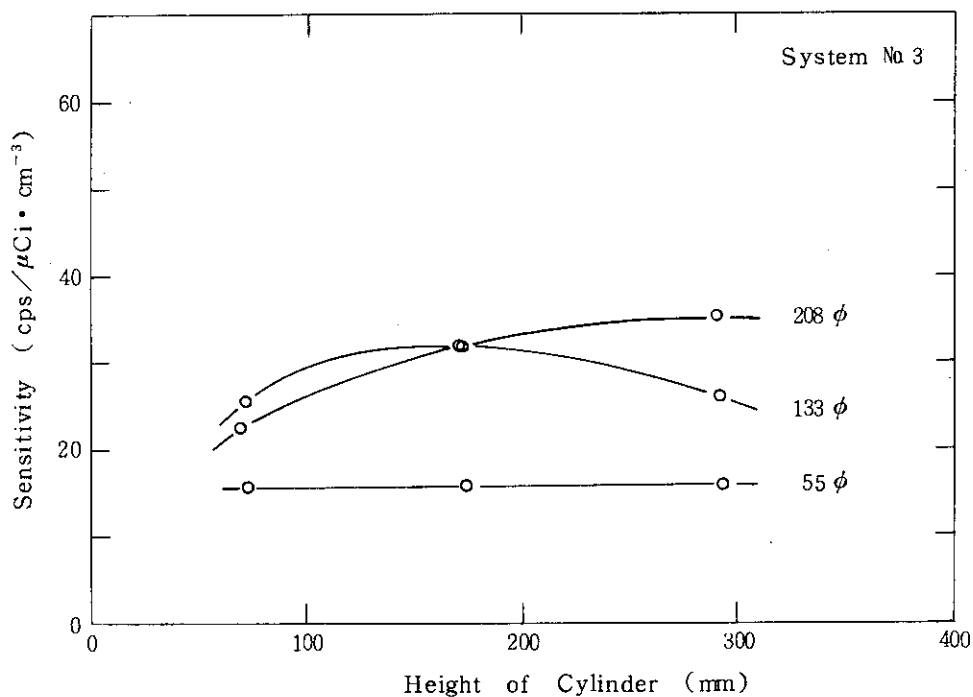


Fig. 7 Sensitivities of the prototype tritium gas monitoring system as a function of discrimination level.

When the discrimination level is set up at E keV, bremsstrahlung with energy from E to 17 keV are measured.



(a) System No 2



(b) System No 3

Fig. 8 The sensitivity as a function of sampling cylinder's height.

Bremsstrahlungs with energy from 4.0 to 17.0 keV are measured.

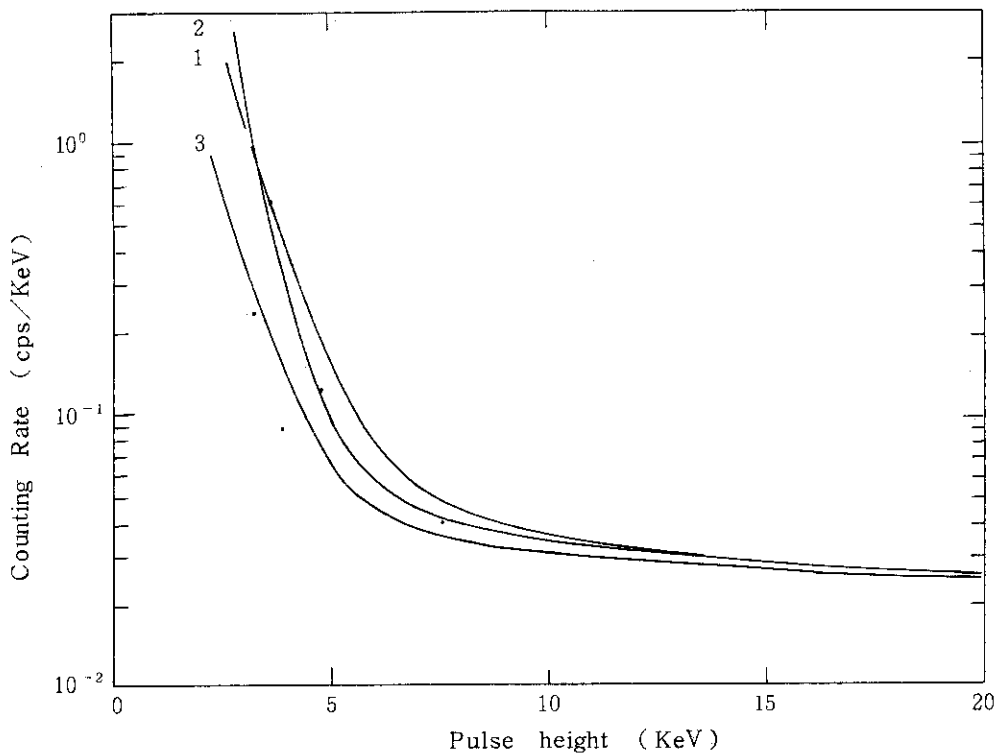


Fig. 9 Pulse height distribution at background measurement.
Parameters show the system number.

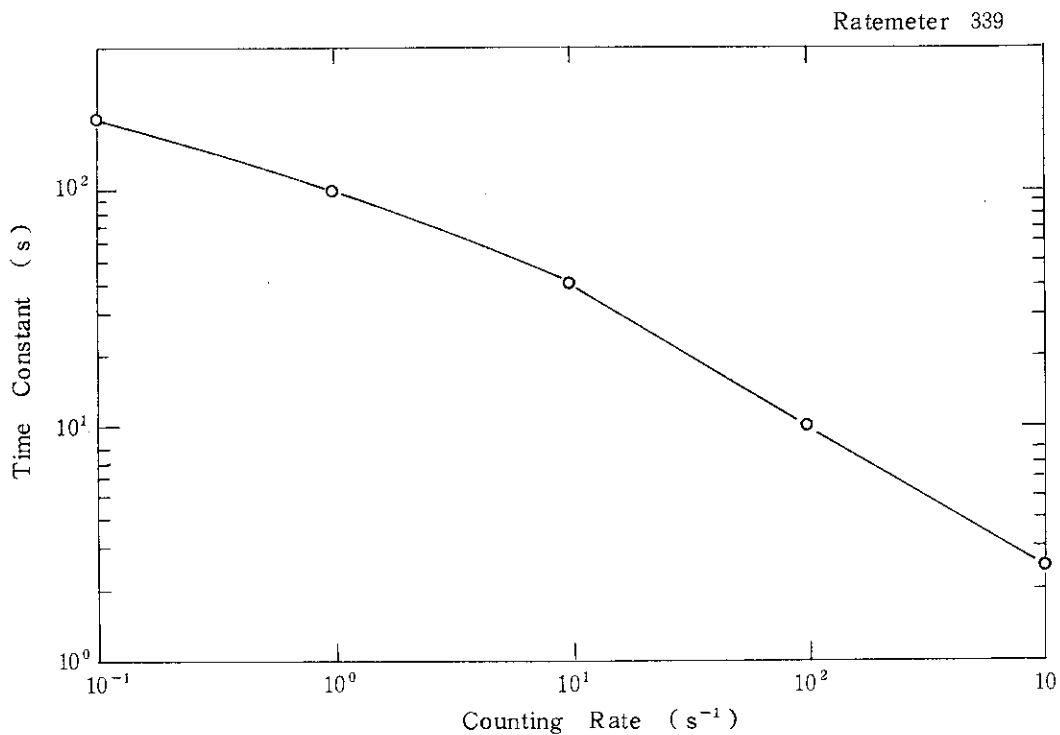


Fig. 10 Time constant of the ratemeter JAERI No 339
as a function of counting rate.

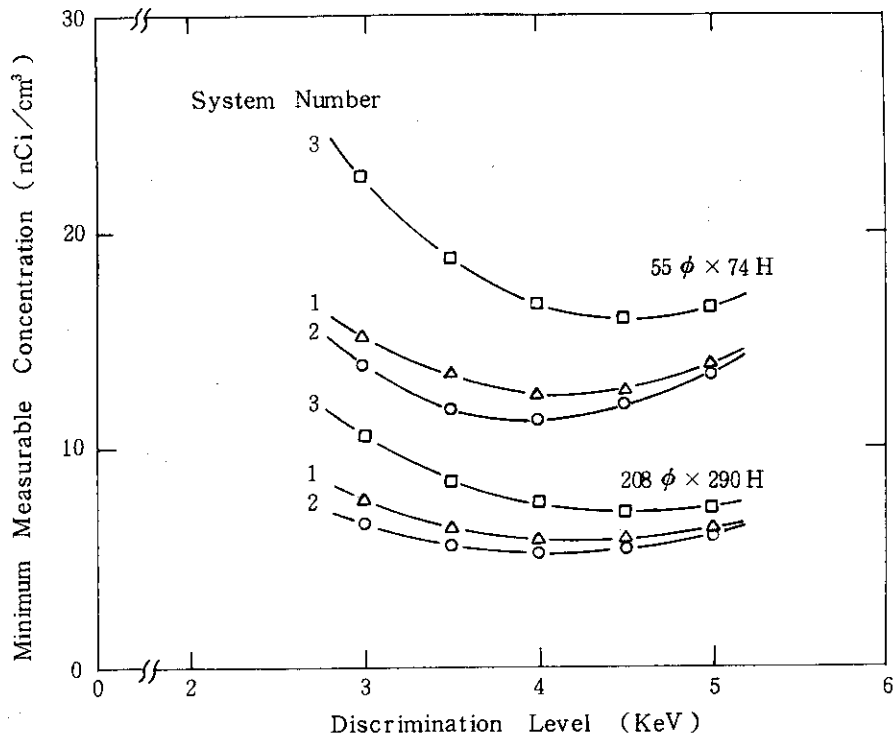


Fig. 11 Relation between the minimum detectable concentration and the discrimination level.

When the discrimination level is set up at E keV, bremsstrahlungs with energy from E to 17 keV are measured.

4. 実験結果の検討

4.1 実験系内トリチウムガスの攪拌と濃度の均一性

攪拌・系内トリチウム濃度の測定、数個のサンプリング容器の制動X線測定を順次繰返し実施し、各測定器ごとに9個のサンプリング容器とも2度の順回測定を行った。1順目の測定よりも2順目の測定の方が攪拌回数が多い。攪拌回数に差があるにも拘らず第1、第2回目の感度測定値に有意差がない。また、日時およびトリチウム濃度の異なる2回の実験でも感度の測定値に有意差がない。これらのことから、攪拌が十分に実施され、各サンプリング容器内のトリチウム濃度は均一に保たれたものと推定される。

4.2 隔離膜の性能

実験経過時間とともに系内のトリチウム濃度が低下した。これは隔離膜からの浸透拡散によるものである。サンプリング容器の形状に依存せず隔離膜の面積にのみ比例するものとして厚さ 1.64 mg/cm^2 の mylar 膜に対するトリチウム浸透率を求めると約 $5 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/cm}^2 \cdot \text{s}$ である。制動X線測定中も浸透拡散しているが実験系内の濃度に比べ非常に低い濃度であり、浸透拡散したトリチウムガスによる制動X線測定への影響は無視できる。しかし、制動X線検出型トリチウムモニタとして実用化する場合には、隔離膜の材質・厚さなどについて十分検討し、トリチウムの浸透率が低く、制動X線に対する吸収係数の小さい膜を採用すべきである。また、検出器側に清浄空気を通気し浸透拡散したトリチウムガスを排気する方法を採用することも有効であろう。

4.3 サンプリング容器壁面での制動X線発生

サンプリング容器 $208 \text{ mm } \phi \times 70 \text{ mm H}$ 、 $133 \text{ mm } \phi \times 72 \text{ mm H}$ を使用したときの原型トリチウムモニタの感度を比べると、内容積が2.3倍大きい $208 \text{ mm } \phi$ のサンプリング容器の方がやや感度が低い (Fig. 8 参照)。電子が原子番号 Z の原子の Coulomb 場で転回し制動X線を発生する反応の断面積は Z^2 に比例する。^{14~16)} 衝突物質の厚い場合、制動X線の発生強度は Z に比例する。¹⁷⁾ ${}^3\text{H}$ β 線の最大エネルギーが 18.6 keV であり空気中の飛程が 0.86 mg/cm^2 (20°C の空気中では 7.1 mm) であり、空気中または容器壁での制動X線発生強度は厚い場合に相当するものと思われる。容器壁からの距離最大 7.1 mm 以内のトリチウムからの β 線によってのみ壁面または底面で制動X線が発生するが、銅の原子番号は 29 であり空気の 7.22 に比較して4倍であるので、容器壁で制動X線が発生する割合はかなり高い。内容積が小さくトリチウム総量が少ないにも拘らず $133 \text{ mm } \phi \times 72 \text{ mm H}$ のサンプリング容器のときの感度が $208 \text{ mm } \phi \times 70 \text{ mm H}$ のサンプリング容器の感度よりも高い値となる理由は、制動X線発生割合が高い壁

面から検出器までの距離が直径 133mm のサンプリング容器の方が短いためである。

サンプリング容器の形のみならず材質（原子番号）* についても制動 X 線検出器型トリチウムモニタを実用する場合は検討することが必要である。

4.4 感度評価の誤差

サンプリング容器の大小に関係なく 400 秒間の測定結果から原型トリチウムモニタの感度を評価した。感度の低い直径 55mm のサンプリング容器の場合計数誤差が最も大きい。この場合でも正味の計数率を求めるときの誤差は± 1.9 % 以下である。系内の放射能濃度測定のための電離電流の読取り誤差は± 1 % 以下であり、Fig. 5 で示されている経過時間と放射能濃度との関係の読取り誤差も± 1 % 以下である。放射能濃度の測定に使用した電離箱の校正に関する実験誤差は± 4 % である。¹²⁾ これらの要因を総合した感度評価に伴う誤差は± 6.4 % である。

5. 結 論

制動 X 線検出型トリチウムモニタを開発するため、測定対象室内の空気を連続サンプリングする容器・循環系、有効口径 48mm の NaI (Tl) 検出器、増幅器、多重波高分析器より構成された原型トリチウムモニタを作製した。検出器の性能、サンプリング容器の形状によって原型トリチウムモニタの感度が異なる。また、パルス計数のウィンド幅によっても異なる値となる。検出器、容器の形状、ウィンド幅が種々に異なる実験の結果、原型トリチウムモニタの感度は 12 ~ 57 cps/ $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$ であった。エネルギー 4 ~ 17 keV の制動 X 線によるパルスを計数するようにウィンド幅を設定したとき、原型トリチウムモニタの測定下限濃度が低くなり、空気中トリチウム濃度 $5.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の測定が可能である。

感度、測定下限濃度の評価測定実験の結果から、制動 X 線検出型トリチウムモニタの測定対象濃度範囲を $1 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^3 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ とすることが十分可能であることが実証された。

制動 X 線検出型トリチウムモニタを実用化する場合、トリチウムの浸透率が低く制動 X 線の透過し易い隔離膜の選択、適切なサンプリング系（トリチウム吸着の少ない材質、長耐用年数、修理・保守時の安全性等）の作製等が残された検討課題である。

本開発試験研究に対し激励、討論等御援助下さいました線量計測課沼宮内弼雄課長に感謝致します。

* メッキ等表面の材質

面から検出器までの距離が直径 133mm のサンプリング容器の方が短いためである。

サンプリング容器の形のみならず材質（原子番号）* についても制動 X 線検出器型トリチウムモニタを実用する場合は検討することが必要である。

4.4 感度評価の誤差

サンプリング容器の大小に関係なく 400 秒間の測定結果から原型トリチウムモニタの感度を評価した。感度の低い直径 55mm のサンプリング容器の場合計数誤差が最も大きい。この場合でも正味の計数率を求めるときの誤差は± 1.9% 以下である。系内の放射能濃度測定のための電離電流の読取り誤差は± 1% 以下であり、Fig. 5 で示されている経過時間と放射能濃度との関係の読取り誤差も± 1% 以下である。放射能濃度の測定に使用した電離箱の校正に関する実験誤差は± 4% である。¹²⁾ これらの要因を総合した感度評価に伴う誤差は± 6.4% である。

5. 結 論

制動 X 線検出型トリチウムモニタを開発するため、測定対象室内の空気を連続サンプリングする容器・循環系、有効口径 48mm の NaI (Tl) 検出器、増幅器、多重波高分析器より構成された原型トリチウムモニタを作製した。検出器の性能、サンプリング容器の形状によって原型トリチウムモニタの感度が異なる。また、パルス計数のウィンド幅によっても異なる値となる。検出器、容器の形状、ウィンド幅が種々に異なる実験の結果、原型トリチウムモニタの感度は $12 \sim 57 \text{ cps}/\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$ であった。エネルギー 4 ~ 17 keV の制動 X 線によるパルスを計数するようにウィンド幅を設定したとき、原型トリチウムモニタの測定下限濃度が低くなり、空気中トリチウム濃度 $5.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の測定が可能である。

感度、測定下限濃度の評価測定実験の結果から、制動 X 線検出型トリチウムモニタの測定対象濃度範囲を $1 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^3 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ とすることが十分可能であることが実証された。

制動 X 線検出型トリチウムモニタを実用化する場合、トリチウムの浸透率が低く制動 X 線の透過し易い隔離膜の選択、適切なサンプリング系（トリチウム吸着の少ない材質、長耐用年数、修理・保守時の安全性等）の作製等が残された検討課題である。

本開発試験研究に対し激励、討論等御援助下さいました線量計測課沼宮内弼雄課長に感謝致します。

* メッキ等表面の材質

参 考 文 献

- 1) NCRP; "Tritium Measurement Techniques," NCRP Report No.47 (1976), National Council on Radiation Protection and Measurements, Washington.
- 2) R. J. Budmtz; Tritium Instrumentation for Environmental and Occupational Monitoring A Review, Health Phys., 26, 165 (1974).
- 3) 阿部史朗; わが国における自然の空間放射線分布の測定(資料), 保健物理, 17, 169 (1982).
- 4) ICRP; 作業者による放射性核種の摂取の限度, Part 1 (ICRP Publication 30 (1978) の訳本, (1980) 日本アイソトープ協会, 東京.
- 5) NCRP; "A Handbook of Radioactivity Measurements Procedures", NCRP Report No.58 (1978), National Council on Radiation Protection and Measurements, Washington.
- 6) C. M. Lederer and V. S. Shirley (eds.); "Table of Isotopes" (1978), John Wiley & Sons, Inc., New York.
- 7) T. Westormark, L. Devell and N. A. Ghanem; On the Use of Bremsstrahlung for Determination of Tritium in Aqueous and Organic Systems, Nucl. Instrum. Methods, 9, 141 (1960).
- 8) J. C. Rosen, G. R. Laurer and M. Eisenbud; Carbon - 14 and Tritium Measurement by means of Bremsstrahlung Emissions, Science, 157, 77 (1967).
- 9) M. L. Curtis, Detection and measurement of tritium by bremsstrahlung counting, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 23, 17 (1972).
- 10) K. Nishizawa, Y. Endo and M. Shinagawa; Application of NaI(Tl) Scintillation Detector to Measurement of Tritium Concentration, J. Nucl. Sci. Technol., 14, 705 (1977).
- 11) J. F. Cameron, J. R. Rhodes and P. F. Berry; Tritium Bremsstrahlung and Its Applications, AERE-R 3086 (1963).
- 12) 吉田 真, 千田 徹, 備後一義, 川崎克也, 三原 明, 岩田幸生; トリチウム・ガスに対する円筒形電離箱の校正, JAERI-M 9089 (1980).
- 13) 浜田達二(編); 作業環境の放射線モニタリング——計画立案から評価まで——, p. 109 (1978), 日本アイソトープ協会, 東京.
- 14) W. Heitler; The Quantum Theory of Radiation (1954), Oxford University Press, Oxford. 沢田克郎訳; 輻射の量子論 (1957), 吉岡書店, 京都.
- 15) H. A. Bethe and J. Ashkin; Passage of Radiations through Matter, in "Experimental Physics", Vol 1, pp. 166 ~ 357 (ed. E. Segre, 1953), John Wiley & Sons, Inc., New York.

- 16) H. W. Koch and J. W. Motz ; Bremsstrahlung Cross Section Formulas and Related Data, Rev. Mod. Phys., 31, 920 (1959).
- 17) R. D. Evans ; "The Atomic Nucleus", p. 611 (1955), McGraw-Hill, New York.