

分置

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。

01.10.-4

[技術情報室]

# 放射能強度絶対測定法に基づくガスモニタ校正技術 に関する研究(I)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1996年3月

名古屋大学工学部

本資料の全部または一部を複製・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)

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒319-11  
茨城県那珂郡東海村大字村松4-23  
動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所  
技術開発推進部・技術管理室



## 放射能強度絶対測定法に基づくガスモニタ校正技術に関する研究 (I)

森 千鶴夫<sup>※1</sup>, 呉 幼陽<sup>※1</sup>, 柳田 勝男<sup>※1</sup>  
宮原 洋<sup>※1</sup>, 揚村 寿英<sup>※2</sup>

## 要 旨

表記の研究は、原子力関連施設などで用いられている放射性ガスモニタ（以下「ガスモニタ」という。）の校正を容易にかつ高精度で行えるような方法・装置を開発し、測定精度などを検討・評価して、実用化を図ることを目的としている。

ガスモニタの校正には、放射能強度を絶対測定する基準系と、ガスモニタを校正する校正系の二つのガスループを、サンプリング容器で介して結合した装置を用いる。校正系内の試料ガスの一部をサンプリング容器で基準系に分取し、基準系において長軸比例計数管内拡散法（DLPC法）を用いて測定した放射能強度を基準にしてガスモニタの校正を行う。

本年度は、DLPC法によって得られる放射能強度の測定精度を上げるために要求される校正装置、周辺機器を作製した。サンプリング容器の体積測定、DLPC法における最適計数時間の測定、壁効果と低エネルギー損失の放射能強度への補正量の割合など、この装置を用いたガスモニタの校正に必要な諸因子を評価した。また、定量性と簡便性を備えた試料ガスのシステムへの注入方法も検討した。

来年度は、これらの結果をふまえて標準電離箱の校正を行い、今回検討している方法が有効であることを確認して、実用化に向けたガスモニタ校正装置の設計を行う。

本報告書は、名古屋大学教授 森 千鶴夫 が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究成果である。  
契約番号 :

事業団担当部課室及び担当者 : 東海事業所 安全管理部 放射線管理第一課 (江花 稔)

※1 : 名古屋大学工学部原子核工学科

※2 : 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻博士前期課程

## 目 次

1. はじめに	1
1.1 研究の背景	1
1.2 研究の目的	2
2. ガスモニタ校正装置	3
2.1 校正装置の概要	3
2.2 校正装置	3
2.2.1 校正装置の作製	3
2.2.2 サンプリング容器の体積測定	3
2.3 周辺機器の作製	4
2.3.1 前置増幅器の作製	4
2.3.2 循環ポンプの作製	5
2.4 その他の機器について	6
3. ガスモニタの校正方法	7
3.1 長軸比例計数管内拡散法 (DLPC 法)	7
3.2 ガスモニタの校正方法	8
3.3 換算係数の決定における $F_{h+w}$ の評価	10
3.3.1 壁効果と低エネルギー損失	10
3.3.2 壁効果の測定法	11
3.3.3 壁効果と低エネルギー損失の計算	11
3.3.4 壁効果の測定結果と計算結果	13
3.4 注入方法の検討	14
4. まとめ	15
4.1 平成七年度報告のまとめ	15
4.2 平成八年度の予定	15
参 考 文 献	17
図 集	18

## 図 表 の 目 次

Table 1	Volume of sampling chamber	4
Table 2	Properties of pre-amplifiers	4
Table 3	Volume gas flow rate	5
Fig.1	Block diagram of the instrument ( gas monitoring system and signal processing system )	19
Fig.2	View of the gas monitoring instrument for calibration	20
Fig.3	Circuit of the pre-amplifier	21
Fig.4	Design of the circulation pump : part 1	22
Fig.4	Design of the circulation pump : part 2	23
Fig.4	Design of the circulation pump : part 3	24
Fig.4	Design of the circulation pump : part 4	25
Fig.5	Relative counting rate $y(t)$ as a function of diffusion time of injected sample	26
Fig.6	Relative error of measured radioactivity as a function of counting time calculated with eq.(3.6)	27
Fig.7	Optimized counting time determined from eq.(3.6) and Fig.6 as a function of radioactivity of injected sample	28
Fig.8	Energy distributions of $\beta$ particles	29
Fig.9	Measured and calculated correction factors for wall effect of $^{41}\text{Ar}$	30
Fig.10	Calculated correction factors for wall effect and low energy loss of $^{85}\text{Kr}$	31
Fig.11	Gas injection method 1 ( left part )	32
Fig.12	Gas injection method 2 ( right part )	32

# 放射能強度絶対測定法に基づくガスモニタ校正技術に関する研究 (I)

## 1. はじめに

### 1.1 研究の背景

原子力関連施設における周辺環境管理や放出される放射性ガスの管理のため、種々の放射性ガスモニタが使用されている。これらのガスモニタによって得られる測定値の信頼性を確保するために、実際の放射性ガスを用いた校正が行われている。従来のガスモニタ校正方法は、放射能濃度既知の放射性標準ガスを外国から購入し、ガスモニタに導入して校正する方法と、国家標準の通産省電子総合技術研究所（以下、電総研）によって校正された標準ガスモニタとの比較によって校正する方法がある。これらの方法ではあまりよい測定精度が得られず、また手間もかかるため、容易にかつ高い測定精度が得られるようなガスモニタの校正方法の開発が望まれている。

ガスモニタの校正で重要なことの一つは、放射性ガスの放射能強度の絶対値を求めることである。この放射能強度の絶対測定法としては、従来米国の NIST などで開発された長さ補償比例計数管法 [1] がある。この方法は三本の比例計数管を必要とするが、これらの計数管の端の構造を全く同様にすることが困難であることから、測定精度は 2~3% しか得られない。測定精度をさらに向上させるため、長軸比例計数管内拡散法 (the Diffusion in Long Proportional Counter Method 以下、DLPC 法) [2] を開発し、種々検討を重ねている。この方法は、試料ガスを計数管中央部に注入して計数管内を拡散していく過程でその計数を測定して全放射能強度を決定するという非常に簡便な方法である。この方法を用いて達成できる測定精度は約 0.3% である。

ガスモニタの校正のために、DLPC 法に基づいてガスモニタ内の放射性ガス濃度を決定する方法が検討・確立されている [3]。これは、まず DLPC 法によって放射性ガスの放射能の絶対値と計数率との関係を校正しておき、次に放射性ガスが混合した空気をガスモニタを含むループ内に満たし、ガスモニタの出力電流値を読みとった後その一部を分取し、長軸比例計数管に導入して放射能を測定する方法である。この方法では、分取の際比例計数ガスに少量ではあるが空気が混入して計数率が低下するため、その割合を評価して補正しなければならない。

## 1.2 研究の目的

DLPC法では、測定時間を長くして精度を高めるために、圧力を高くして試料ガスの拡散速度を遅くすることが重要となる。このため高圧力下でも使用できる校正装置を開発する必要がある。また比例計数管への空気の混入を避ける方法を検討する必要もある。本研究は、上記の必要性を考慮したプロトタイプのカスマニタ校正装置を作製し、カスマニタの校正に必要な諸因子を検討・評価して、実用化のためのカスマニタ校正装置を設計する。

## 2. ガスモニタ校正装置

### 2.1 校正装置の概要

校正装置の概略図を Fig.1 に示す。校正装置は、比例計数管を含む基準ガス測定のための系統（基準系：Standard system）と、ガスモニタを含む校正のための系統（校正系：Calibration system）とを、ガスサンプリング容器で介した二つの部分で構成されている。信号処理系は、比例計数管の両端から得られる信号を前置増幅器，比例増幅器，対数増幅器によって整形した後，ADC でデジタル信号に変換し，ADC コントローラで同時・非同時の判別を行い，磁気テープ（MT）に記録する。

### 2.2 校正装置

#### 2.2.1 校正装置の作製

測定精度の向上のため，耐高圧ガスモニタ校正装置を作製した。校正装置の外観図を Fig.2 に示す。サンプリング容器，圧力計，真空計，バルブを銅管で配管してアルミパネルに組み込んでいる。このアルミパネルをアングルで骨組みした枠に取り付け，鉛で遮蔽した比例計数管，循環ポンプ，真空ポンプ，電離箱が置ける。

#### 2.2.2 サンプリング容器の体積測定

サンプリング容器は，市販のサンプリングチャンバー（SWAGELOK 304L SS DOT-3E 1800）と，バルブ取り付け用の銅管とを合わせてサンプリング容器となる。ガスモニタの校正の詳しい方法については 3.2 節で述べる。校正系内に均一に分布した試料ガスの一部を基準系に分取した後のガスモニタ内の放射能濃度は，サンプリング容器で分取した放射能濃度に等しい。従って，DLPC 法で測定した放射能強度を，サンプリング容器の体積で割った値がガスモニタ内の放射能濃度の値となる。このためサンプリング容器の体積を正確に測定しておく必要がある。



サンプリング容器の体積測定は、容器内に満たした純水の重量を測定する方法で行った。測定時の純水の温度は 17℃ で、密度は 0.9987776 g/cm<sup>3</sup> である。測定結果を Table 1 に示す。

Table 1 Volume of sampling chamber

	純水の重量 [g]	体積 [cm <sup>3</sup> ]
1	43.335(57)	43.388(57)
2	43.171(57)	43.224(57)
3	43.182(57)	43.235(57)
avg.		43.282(33)

## 2.3 周辺機器の作製

### 2.3.1 前置増幅器の作製

試料ガス導入後の計数管内での試料拡散の様子を見るためには、位置検出を行わなければならない。位置検出においては反射電流の影響を小さくし、電荷の分割比を適当な範囲に収めるようにする必要がある[4]。この必要性を満たす前置増幅器を作製した。その回路図を Fig. 3 に示す。

作製した前置増幅器の特性試験を行った。パルスジェネレータで電圧パルスを入力し、各部のパルス波形を観測し、時定数、増幅度、入力電荷量と出力電圧の比例関係を調べた。結果を Table 2 に示す。入力電荷量は入射した放射線のエネルギーに比例するため、出力電圧との比例関係を保つ必要がある。

Table 2 Properties of pre-amplifiers

前置増幅器	時定数 $\tau = RC_2$ [μs]		増幅度 A (測定値)	R [MΩ]	C <sub>2</sub> [pF]
	計算	実測			
①	100	100	~20000	10	10
②	100	100	~20000	10	10

### 2.3.2 循環ポンプの作製

DLPC法では、比例計数ガスの圧力を高くし、試料ガスの拡散速度を遅くして計数時間を長くすれば、計数の統計誤差を小さくできる。ガスモニタの校正で重要なパラメータとなる換算係数(3.2節)は、試料ガスを計数管内に注入してDLPC法で放射能強度を測定した後、循環ポンプを用いて均一に系内に試料ガスを分布させ、その時の計数率を測定してその比を取る。従って、系内に分布する試料ガスの濃度を早く均一に分布させるための循環用の耐高圧ポンプが必要である。この必要性を満たす安価なポンプは市販されていないので、金魚飼育用などに用いられる市販の1 atmのポンプを耐高圧用に改良した。改良に必要な圧力容器の設計図をFig.4に示す。

換算係数を正確に知るためには、試料ガスが系内に均一に分布していなければならない。このため作製した循環ポンプの体積流量率を測定し、試料ガスが系内に均一に分布するまでどのくらいの時間がかかるかを知っておく必要がある。体積流量率の測定はメスシリンダー法を用いて行った。結果をTable 3に示す。基準系の体積は約1 l、校正系は電離箱の体積となる約1.5 lなので、圧力1 atmの条件では、試料を10回循環させるのに、それぞれ約3分、4分かかかる(ポンプ1の場合)。また、改造したポンプの体積流量率は改造前に比べて、ポンプ1で約30%、ポンプ2で約15%減少した。

Table 3 Volume gas flow rate

回数	流量 [ml]	ポンプ1		ポンプ2	
		時間[s]	体積流量率 [ml/s]	時間[s]	体積流量率[ml/s]
1回目	100-1050	13.96	68.05	10.67	89.03
2回目	100-1100	14.14	70.72	11.76	85.03
3回目	100-1150	15.67	67.01	12.51	83.93
4回目	100-1200	17.8	64.4	13.51	81.42
5回目	150-1050	11.78	76.4	10.13	88.85
6回目	150-1100	13.33	71.27	10.72	88.62
7回目	150-1150	14.15	70.67	11.57	86.43
8回目	150-1200	17.08	66.46	11.99	87.57

## 2.4 その他の機器について

比例計数管は同軸円筒型で、陰極には内径 40 mm、厚さ 6 mm、長さ 920 mm のステンレス鋼管を、陽極には直径 15  $\mu\text{m}$ 、全抵抗 5.8 k $\Omega$  のニクロム線を用いた。計数管中央部には注射器で試料ガスを注入する注入孔がある。注入孔の左右には位置校正用の線源を取り付けることができ、左右に付けた線源の位置スペクトルのピーク位置から、位置検出型比例計数管法[5]における限定体積を決定する。

対数増幅器は、 $\beta$ 線の最大エネルギーが高い核種（特に  $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{41}\text{Ar}$ ）におけるデジタル誤差の軽減と、ディスクリミネーションレベル以下の計数を過剰に除去することを防ぐために、小さな入力パルスに対しては大きな増幅率を持ち、大きな入力パルスに対しては小さな増幅率を持つような増幅器である[6]。詳しくは ref.6 を参照していただきたい。

電離箱は、大倉電気株式会社製の 1.5 l ガス用電離箱 TYPE RD1210B10 No.2RA626001，TYPE I-409601 No.00041 の二台を、振動容量電位計は、同社の MODEL-RD1210A を用いた。この二台の濃度換算係数はそれぞれ 0.218 pA/(Bq/cm<sup>3</sup>)，0.219 pA/(Bq/cm<sup>3</sup>)（それぞれ誤差は  $\pm 10\%$ ）で、これらの値は同じ体積の電離箱を用いた過去の値[3][7]と誤差の範囲でよく一致している。

注入装置、方法については 3.4 節で述べる。

### 3. ガスモニタの校正方法

#### 3.1 長軸比例計数管内拡散法 (DLPC 法)

比例計数管を用いて放射能を測定する場合、計数管の端での電場が弱いために計数されない領域があり、試料ガスがその領域内であれば計数損失を引き起こす（端効果）。この影響を避けるために開発された DLPC 法は、試料ガスを計数管の中央に注入し、試料ガスが有効計数領域を出ないうちに計数を測定し、その全放射能強度を求めるのが基本的な原理である。このため、精度を上げるためには、試料ガスの拡散を遅くして測定時間をできるだけ長くしたほうがよい。同じ条件下では測定時間が長くなれば計数の統計誤差は小さくなるが、必要以上に長くすると試料ガスが有効計数領域を出て端効果を引き起こし、系統誤差が大きくなる。従って、DLPC 法ではこの二つの誤差の両方を含む全相対誤差が最小になる時間、即ち最適計数時間を検討することが重要となる。以下に簡単にその方法を述べる（詳しくは ref.8 参照）。

この方法で実験的に求めることのできる放射能強度  $A$  は次の式で表すことができる。

$$A = N(T) / \int_0^T Y(t) dt \quad (3.1)$$

ここで  $N(T)$  は測定時間  $T$  の間に実験的に得られる計数である。

また時刻  $t$  における  $Y(t)$  は次の式で表せる。

$$Y(t) = \frac{\text{実効計数率 [cps]}}{\text{全放射能強度}} \quad (3.2)$$

この値はある一定の時間間隔で計数率  $n(t)$  を測定し、有効計数領域内での計数率の平均値で規格化（相対計数率曲線：Fig.5）することで実験的に求めることができる。 $Y(t)$  はこの実験値に合うように次式におけるパラメータ  $a_1, a_2, a_3, t_0$  を決める。

$$Y(t) = \begin{cases} 1 & t \leq t_0 \\ -a_1 t^{a_2} + a_3 & t < t_0 \end{cases} \quad (3.3)$$

この相対計数率曲線を用いて、測定時間  $T$  内で端効果のために起こる計数の損失量を計数時間の損失に換算した値は、次の式で計算できる。

$$\Delta T = \int_0^T [1 - Y(t)] dt = T - \int_0^T Y(t) dt \quad (3.4)$$

従って実験的に求められる放射能強度  $A$  は次の式で表せる。

$$A = \frac{N(T) \pm \sqrt{N(T)}}{T - \Delta T \pm p\Delta T} \quad (3.5)$$

ここで  $p$  は相対計数率曲線から予想できる計数時間損失の補正誤差である。

放射能強度  $A$  の相対誤差  $R$  は次の式で表せる。

$$R = \sqrt{\left[ \frac{\sqrt{N(T)}}{N(T)} \right]^2 + \left[ \frac{p\Delta T}{T - \Delta T} \right]^2} = \sqrt{\frac{1}{N(T)} + \left[ p \left( \frac{T}{\int_0^T Y(t) dt} - 1 \right) \right]^2} \quad (3.6)$$

(3.6) 式を用いて、最小の相対誤差に対応する計数時間、即ち最適計数時間がわかる。計数ガスの圧力を高くすると、試料ガスの拡散が遅くなるため最適計数時間が長くなり、同じ放射能強度に対する相対誤差を減らすことができる。従って DLPC 法においては高い計数ガスの圧力下で測定したほうが有利である。

P-10 ガス 1 atm 中に  $^{85}\text{Kr}$  を注入したときの相対計数率曲線を Fig.5 に、Fig.5 のデータから決定した  $Y(t)$  をもとに (3.6) 式を用いて相対誤差を計算した結果を Fig.6 に、これから求めた注入放射能強度と最適計数時間の関係を Fig.7 に示す。

実際のガスモニタの校正で用いる換算係数の測定では、得られる値の信頼性を確保するために繰り返し測定を行う。各測定は、まずバックグラウンドを測定した後試料ガスを計数管中央に注入し計数を始める。試料ガスが計数管の有効計数領域外へ出ない適当な時間内に先に一度計数率を測定し、バックグラウンドを差し引いて注入放射能強度の概略値を求める。この値と Fig.7 に示す関係から最適な計数時間を求める（この間計数は続けられている）。計数を止める時刻は最適計数時間で決まる。その後試料ガスを循環ポンプを用いて系内に均一に分布させてから計数率を測定し、放射能強度との比を取る。この測定を繰り返し行う。

### 3.2 ガスモニタの校正方法

ガスモニタの校正のために DLPC 法に基づいて放射性ガスの濃度を決定する方法が吉田らによって検討・確立されている[3]。しかしこの方法では、サンプリングガスを基準系に分取するときに比例計数ガスに少量の空気が混入して計数率が低下す

るため、その割合を補正しなければならない。補正には誤差が伴うため、得られる測定値の信頼性をさらに向上させるためには、空気の混入を避ける方法を検討しなければならない。このため、今回はガスモニタの校正は以下のように考える。

#### 1) 換算係数 $k$ の決定

P-10 ガスを満たした基準系内の長軸比例計数管の中央に試料ガスを注入し、DLPC 法により注入された試料の放射能強度  $A$  [Bq] を絶対測定する。ただし  $A$  は壁効果による計数損失の割合と、ディスクリミネーションレベル以下の  $\beta$  スペクトルの計数損失の割合を補正しなければならない。従って  $A$  は、

$$A = \frac{R_{DLPC}}{1 - F_{th+w}} \quad (3.7)$$

となる。ここで  $R_{DLPC}$  は DLPC 法で測定された計数率、 $F_{th+w}$  は比例計数管の出力波高スペクトルとディスクリミネーションレベルに基づいて決定できる補正係数である。

放射能が決定された試料ガスを基準系内に均一に分布させた後の比例計数管での計数率を  $r_0$  [1/s] とすると、換算係数  $k$  [Bq·s] は次の式で与えられる。

$$k = \frac{A}{r_0} \quad (3.8)$$

換算係数  $k$  は繰り返し測定で精度良く決定できる。

#### 2) 放射能濃度 $C$ の決定

$N_2$  ガスを圧力 0.1 atm 程度で満たした校正系内に試料を導入し、系内に均一に分布させる。

サンプリング容器内のサンプリングガスを基準系に分取し、基準系内に均一に分布させた後、比例計数管で計数率  $r$  [1/s] を測定する。このときのサンプリングガスの放射能濃度  $C$  [Bq/cm<sup>3</sup>] は、換算係数  $k$  とあらかじめ体積測定しておいたサンプリング容器の体積  $v$  [cm<sup>3</sup>] を用いて次の式で表せる。

$$C = \frac{k \cdot r}{v} \quad (3.9)$$

サンプリングガスの放射能濃度とサンプリングガスを基準系に分取した後のガスモニタ内の放射能濃度は等しい。

### 3) ガスモニタの校正

校正系を満たしていた  $N_2$  ガス圧力の  $1/4$  の圧力の  $O_2$  ガスを校正系内に導入し、その後空気を  $1 \text{ atm}$  まで導入しガスモニタの出力電流を測定する。求めたガスモニタ内の放射能濃度と測定した電離電流を用いて単位放射能濃度あたりの電離電流を求める。

この方法によってガスモニタの校正を行うことで、比例計数ガスへの空気の混入を避けることができ、測定値の信頼性をさらに向上させることができる。

換算係数決定の際の補正係数  $F_{th+w}$  の評価については次節で述べる。

## 3.3 換算係数の決定における $F_{th+w}$ の評価

### 3.3.1 壁効果と低エネルギー損失

DLPC 法において、計数管内に注入された放射性試料ガスの  $\beta$  線が計数管の内壁近傍の領域で放出されると、計数ガス中で失うエネルギーは非常に少ないためほとんどすべてのエネルギーを壁の中で失い、この場合の  $\beta$  線によって生成されるパルス波高は非常に小さい。ノイズを除去するために ADC のディスクリミネーションレベルをある一定のパルス波高に設定するため、もし生成されたパルスの波高がこのレベルより小さい場合には計数されない。これを壁効果という。

また  $\beta$  線のエネルギー分布はある最大エネルギーをもった連続分布のため、ディスクリミネーションレベル以下のエネルギーに対応する  $\beta$  線によって生成されたパルスも計数されない。これを低エネルギー損失という。

試料ガスから放出される  $\beta$  線のエネルギーが高く、また計数ガスの圧力が低い場合は、壁効果の影響は大きくなる。例えば、 $^{85}\text{Kr}$  を P-10 ガス  $1 \text{ atm}$  中に注入した場合の壁効果による計数の損失は約  $2\%$  程度なので、換算係数  $k$  の測定値の信頼性を確保するためには、この影響を補正する必要がある。

この補正量を調べるため、 $^{41}\text{Ar}$  について圧力外挿法を用いて実験的に壁効果の影響を評価し、またモンテカルロ法を用いて計算によってもこの影響を評価した。ガスモニタの校正では  $^{85}\text{Kr}$  を試料ガスに用いるため、 $^{41}\text{Ar}$  を用いた実験値と計算値の一致を確認して計算の妥当性を示し、 $^{85}\text{Kr}$  を P-10 ガス  $1 \text{ atm}$  中に注入した場合の壁効果と低エネルギー損失による計数損失の割合を、以下で評価する。

### 3.3.2 壁効果の測定法

まず、計数管内に注入した試料ガスと 1 atm の計数ガスを均一に混合し、ある一定のディスクリミネーションレベルを設定し、計数管の端効果の影響がない限定体積内の  $\beta$  線によって生成されたパルスを計数する。次に、計数管内に計数ガスのみを導入して試料ガスと均一に混合し、再度限定体積内の  $\beta$  線によって生成されたパルスを計数する。これを繰り返していろいろな圧力下で測定した結果を、圧力の逆数を横軸に、計数を縦軸にとってプロットし、各データ点を直線でフィッティングしてこの直線を圧力無限大、即ち、圧力の逆数がゼロの点に外挿する。圧力無限大の条件下では、 $\beta$  線のエネルギーは全て計数ガス中で失うと考えることができるため、壁効果の影響は全くない[9]。従って圧力の逆数がゼロの点の計数が、壁効果の影響のない本来の計数ということになる。この結果を Fig.9 に示す。

異なる圧力下でのディスクリミネーションレベルを同じ  $\beta$  線のエネルギーに設定するために、エネルギー校正をしなければならない。ここでは、 $^{37}\text{Ar}$  の EC 崩壊後の L-オーজে電子のエネルギー波高分布を用いて、ディスクリミネーションレベルを 220 eV に設定した。

### 3.3.3 壁効果と低エネルギー損失の計算

ガスモニタの校正のために使用する長軸比例計数管をモデル化し、光子・電子輸送モンテカルロ計算コード EGS4 [10] を用いて解析的に壁効果と低エネルギー損失の影響を評価した。計算の手順は以下のとおりである。

#### 1) 物質データの作成

PEGS4 [10] (EGS4 用の物質データ決定のためのプログラム) を用いて、計数管壁の材料、及び計数ガスの物質における反応断面積、分岐比、散乱係数などの EGS4 に必要なデータを作成する。

比例計数管の材料はステンレス鋼である。ステンレス鋼の成分は Fe 85%, Cr 13%, Ni 2% で密度は  $7.78 \text{ g/cm}^3$  とする。

計数ガスは PR (P-10) ガスを用いる。PR ガスの成分は Ar 90%,  $\text{CH}_4$  10% である。すべての圧力下で計数ガスの温度を  $20^\circ\text{C}$  に設定する。



## 2) 幾何学的形状の決定

比例計数管は長さ 1m, 内径 4cm, 壁厚 0.5cm の両端密閉の円筒型である。計数管の中には試料ガスが均一に分布していると考える。

## 3) $\beta$ 粒子の生成

試料ガスが計数管内に均一に分布しているので、 $\beta$  粒子の生成位置は計数管内で一様に乱数を取って決める。また、 $\beta$  粒子放出方向は  $4\pi$  方向に一様に乱数を取って決める。 $\beta$  粒子のエネルギー分布は以下に示す (3.9) 式から計算できるので、この分布から乱数によって  $\beta$  粒子のエネルギーを決める。

$$n(E) = K \cdot C(W) \cdot F(Z, W) \cdot P \cdot W \cdot (W_m - W) \quad (3.9)^{[11]}$$

ここで、

$n(E)$  : エネルギー分布

$K$  : 定数

$$F(Z, W) = 2\pi\gamma / [1 - \exp(-2\pi\gamma)]^{[12]}$$

$$\gamma = \alpha Z W / P \quad \alpha = 1/137$$

$Z$  : 崩壊後の原子核の電荷

$P$  : 粒子の運動量

$W$  : 粒子の全エネルギー

$W_m$  : 粒子の最大エネルギー

$C(W)$  :

許容遷移時 :  $C(W) = 1$

第一禁止遷移時 :  $C(W) = 1 - 2W_m \cdot W / (W_m^2 - 1) + 2W^2 / (W_m^2 - 1)^{[13]}$

$\beta$  粒子の運動エネルギーを  $E$  (keV), 最大の運動エネルギーを  $E_m$  (keV) とすると,  $W, W_m, P$  は次式で与えられる。

$$W = 1 + E/511$$

$$W_m = 1 + E_m/511$$

$$P = \sqrt{W^2 - 1}$$

$^{41}\text{Ar}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  から放出される  $\beta$  粒子の最大エネルギーはそれぞれ 1.198 MeV, 0.687 MeV [14] である。

#### 4) $\beta$ 粒子の計数ガス中でのエネルギー損失

EGS4 計算コードを用いて、発生した  $\beta$  粒子の物質中での挙動を計算する。 $\beta$  粒子、及びその相互作用によって生成された二次電子が計数ガス中で失ったエネルギーの分布と、試料ガスから放出された  $\beta$  粒子のエネルギー分布を求めた。試料ガス  $^{41}\text{Ar}$ 、計数ガス PR ガスの場合の計算結果を Fig.8 に示す。図に示されているように、試料から放出された  $\beta$  粒子のエネルギーの一部が壁で失われるため、 $\beta$  粒子のエネルギー分布に比べて低エネルギー側にシフトする。また圧力を低くすると、計数ガス中で失うエネルギーが小さくなるため、この場合においても低エネルギー側にシフトしていく。ディスクリミネーションレベルを設定すると、そのエネルギー以下の計数は除去されてしまう。この除去された計数と全計数の比が  $F_{th+w}$  である。図に示されている入射粒子のスペクトルから低エネルギー損失成分を評価することができ、この成分を差し引けば壁効果の成分が評価できる。低エネルギー損失は圧力によらず一定のため、計数ガスの圧力が小さくなるにつれて壁効果の影響が大きくなっていることがわかる。

#### 3.3.4 壁効果の測定結果と計算結果

試料ガス  $^{41}\text{Ar}$ 、計数ガス PR ガスの場合の壁効果の実験結果と計算結果は、Fig.9 に示すように 1 atm 以上の圧力でよく一致している。従って、1 atm 以上の圧力における EGS4 を用いた計算結果は、壁効果及び低エネルギー損失を正しく評価しているものと思われる。

実際のガスモニタの校正では試料ガスに  $^{85}\text{Kr}$  を用いるので、この計算コードを用いて  $^{85}\text{Kr}$  の壁効果及び低エネルギー損失の影響を評価した。その結果を Fig.10 に示す。図に示すように、PR ガス 1 atm 中で、ディスクリミネーションレベルを 220 eV に設定した場合の  $^{85}\text{Kr}$  の  $F_{th+w}$  は、約 1.95% であることがわかった。計数ガスの圧力を高くすれば壁効果及び低エネルギー損失の影響を抑えることができる。

### 3.4 注入方法の検討

現在、マイクロシリンジを用いて試料ガスをシステムに注入している。しかしこの方法では、試料ガスの注入量は注入の度に变化するうえに、注射器の挿入が浅くなることもあり、これらが原因で DLPC 法における相対計数率曲線の実験データが実験者によって変化し、また正確なデータが得られない恐れがある。そこで、実験者によらず定量性と簡便性を備えた導入方法を検討した。

試料の注入方法は以下の二つを検討した。それぞれ Fig.11, Fig.12 に示す。ここで検討している計数ガスの圧力は 1 atm の場合である。

#### 1) 注入方法 1 (Fig.11)

システムを真空にしてから導入チャンバー (0.5 ml) に試料ガスを分取する。次に、導入チャンバーに計数ガスを 1atm になるまで流し込んでから、導入チャンバー内のガスを導入管に分取する。(導入管の長さ 5 m, 体積 3.9 ml, 導入チャンバー内の約 89% が導入管に分取される。この際の導入管の圧力は 0.11atm。)

導入管と導入チャンバーとの間の弁を閉める。計数管内には 1atm, 導入管内には 1.25atm まで計数ガスを導入する。(この際、試料ガスは導入管の前部 0.44 ml に流し込まれる。)

導入チャンバーと計数管の間の弁を開けて試料ガスを注入する。(はじめに、前部の試料ガス 0.44 ml が注入され、その後後部の計数ガス 0.55 ml が注入される。)

#### 2) 注入方法 2 (Fig.12)

比例計数管への注入口の径はできるだけ細くする。また、試料ガスの導入口もできるだけ細くする。

システムを真空にしてから弁①と②の間に試料ガスを分取する方法は 1 の方法と同じである。1.25 atm の計数ガスを導入する場合は、L は x の 4 倍以上あればよい。

注入方法 1 では計数ガスが実際に試料ガスを押し込んでいくのかどうかを、注入方法 2 では③の部分に残る試料ガスの影響を、実験によって確認する必要がある。平成八年度で注入装置を作製し、実験を行う。

## 4. まとめ

### 4.1 平成七年度報告のまとめ

平成七年度は、DLPC法による放射能強度の絶対測定の精度を向上させ、ガスモニタの校正値の信頼性を確保するための装置を作製し、またそれに必要な周辺機器の作製も行った。作製した装置に対して、ガスモニタの校正に必要な基礎データを得るための実験・計算・評価を行った。今年度のまとめとしては以下のとおりである。

- 1) 放射能濃度を決定する際に必要となるサンプリング容器の体積は、純水の重量測定法で測定した結果、 $43.282(33) \text{ cm}^3$ であった。
- 2) 試料を均一に系内に循環させるために必要な時間を知るために、作製した循環ポンプの体積流量率を測定した。その結果、ポンプ1では  $4.12 \text{ l/min}$ 、ポンプ2では  $5.16 \text{ l/min}$ であった。これらの結果は、以前に我々の講座で作製した耐高圧用のポンプと比較して、4~5倍性能が向上していると思われる[15]。
- 3)  $^{85}\text{Kr}$  の P-10 ガス 1 atm 中での DLPC 法の実験も行い、換算係数測定の際に必要な、注入した試料の放射能強度と最適計数時間の関係を得た。しかし、1 atm 以外の圧力の条件での実験は比例計数管でのガス漏れが確認できたため行えなかった。これに伴い、換算係数とガスモニタ (1.5 l 電離箱二台) の濃度換算係数は、今年度中には得ることができなかった。そのため平成八年度早々に、ガスモニタの校正に必要なこれらの諸因子を検討・評価することが課題となった。
- 4) 換算係数の決定における壁効果と低エネルギー損失の評価を EGS4 計算コードを用いて行った。その結果  $^{85}\text{Kr}$  の P-10 ガス 1 atm 中でのこれらの影響は約 1.95% であることが分かった。その他の圧力についても計算した。
- 5) 定量性・簡便性を備えた試料ガスの注入方法も検討した。それに基づく装置を平成八年度に作製・評価し、実用化のための校正装置に反映させる。

### 4.2 平成八年度の予定

本研究は平成八年度も継続する。4.1 で述べたように、早々にガスモニタの校正に必要な諸因子と、検討している注入方法を評価する。平成八年度は、ガスモニタの校正に適した比例計数管を新しく設計・作製して、これと先に検討した諸因子・注入方法も含めた、実用化のためのガスモニタ校正装置の設計を行う。またその他に

も基準電離箱に代わる基準ガスモニタとして、ガスループに比例計数管を組み込む方法も検討してみる。この場合計数管に空気が混入することが問題となるが、酸素吸着剤を通して比例計数管にモニタガス導入する方法や、カーボンを通して酸素を炭酸ガスにして比例計数管にモニタガスを導入し、比例計数ガスに炭酸ガスを用いる方法などを初期的に検討している。

## 参 考 文 献

- [1] S.B.Garfinkel, W.B.Mann, F.J.Schima and M.P.Unterweger, Nucl. Instr. and Meth. 122(1973) 59.
- [2] C.Mori, T.Yamamoto, T.Suzuki, A.Uritani, K.Yanagida, Y.Wu, T.Watanabe and M.Yoshida, Nucl. Instr. and Meth. A312(1992) 189.
- [3] 吉田 真, 吳 幼陽, 大井義弘, 千田 徹, RADIOISOTOPES 42(1993) 452.
- [4] 吳 幼陽, 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻博士論文(1993) 37-51.
- [5] C.Mori, Y.Fuzii and T.Watanabe, Int. J. Radiat. Appl. Instr., A38(1987)371, C.Mori, T.Aratani, T.Watanabe and M.Yoshida, Int. J. Radiat. Appl. Instr., A38(1987)851.
- [6] 吳 幼陽, 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻博士論文(1993) 17-22.
- [7] 原子力安全研究会協会, 環境放射能及び環境放射能の計測に関する研究成果報告テキスト(1980) 142.
- [8] Y.Wu, C.Mori, A.Uritani, K.Yanagida, H.Miyahara, T.Aoyama and M.Yoshida, Nucl. Instr. and Meth. A343(1994) 539.
- [9] T.Yamamoto, Y.Wu, T.Aratani, A.Uritani and C.Mori, Nucl. Instr. and Meth. A330(1993) 158.
- [10] W.R.Nelson, H.Hirayama and D.W.O.Rogers, SLAC-report 265(1985).
- [11] 山田勝美, 森田正人, 藤井昭彦, ベータ崩壊と弱い相互作用 (培風館1974) 28
- [12] 山田勝美, 森田正人, 藤井昭彦, ベータ崩壊と弱い相互作用 (培風館1974) 18-19
- [13] 山田勝美, 森田正人, 藤井昭彦, ベータ崩壊と弱い相互作用 (培風館1974) 114
- [14] 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林昌敏, 放射線データブック (地人書館1982) 67
- [15] Y.Wu, C.Mori, T.Yamamoto, K.Yanagida, A.Uritani, H.Miyahara, T.Aoyama and M.Yoshida, RADIOISOTOPES 42(1993) 209

## 図 集

Fig.1 Block diagram of the instrument ( gas monitoring system and signal processing system )	19
Fig.2 View of the gas monitoring instrument for calibration	20
Fig.3 Circuit of the pre-amplifier	21
Fig.4 Design of the circulation pump : part 1	22
Fig.4 Design of the circulation pump : part 2	23
Fig.4 Design of the circulation pump : part 3	24
Fig.4 Design of the circulation pump : part 4	25
Fig.5 Relative counting rate $y(t)$ as a function of diffusion time of injected sample	26
Fig.6 Relative error of measured radioactivity as a function of counting time calculated with eq.(3.6)	27
Fig.7 Optimized counting time determined from eq.(3.6) and Fig.6 as a function of radioactivity of injected sample	28
Fig.8 Energy distributions of $\beta$ particles	29
Fig.9 Measured and calculated correction factors for wall effect of $^{41}\text{Ar}$	30
Fig.10 Calculated correction factors for wall effect and low energy loss of $^{85}\text{Kr}$	31
Fig.11 Gas injection method 1 ( left part )	32
Fig.12 Gas injection method 2 ( right part )	32

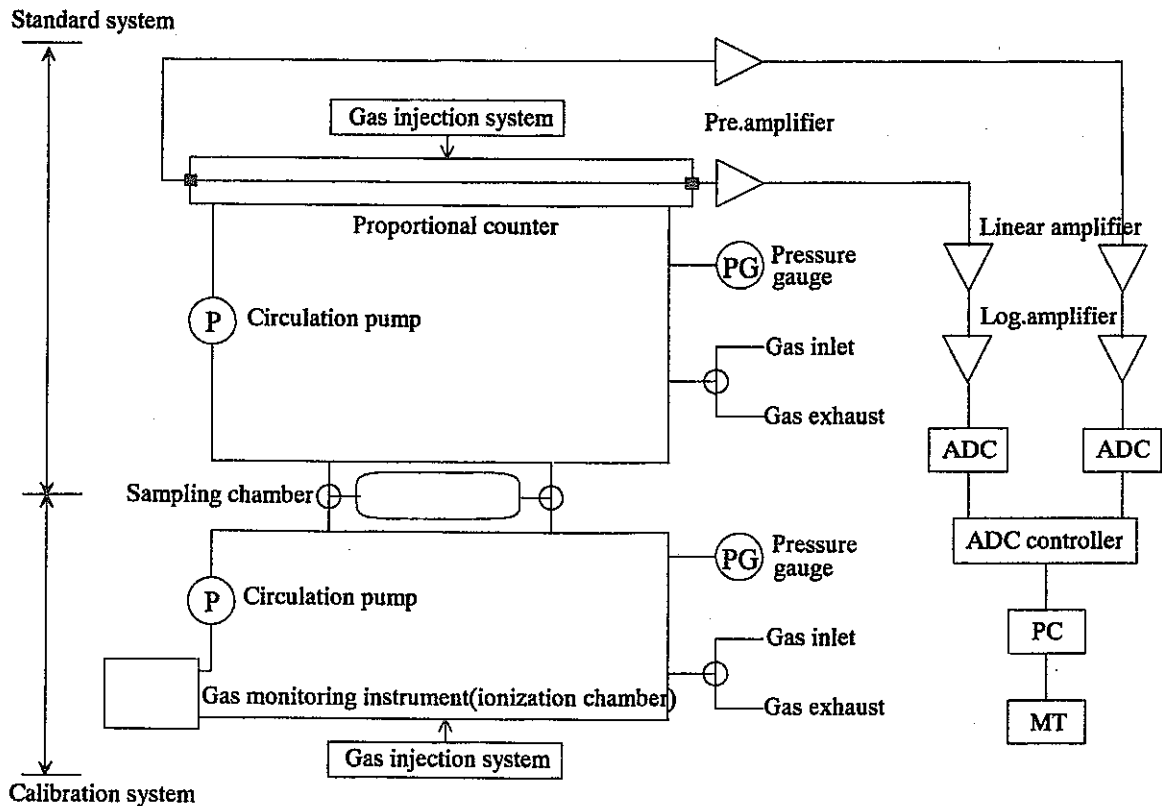


Fig.1 Block diagram of the instrument ( gas monitoring system and signal processing system )



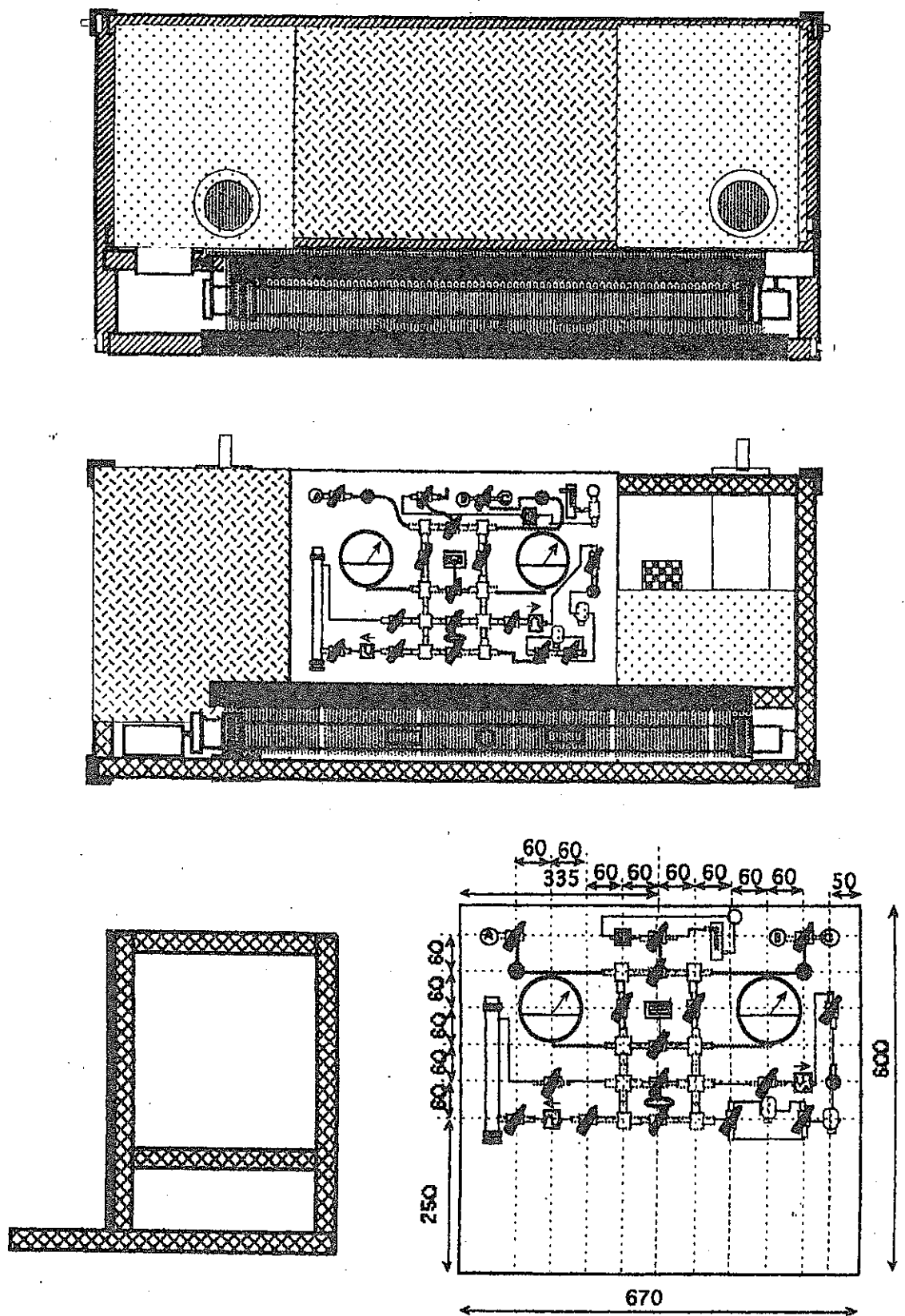


Fig.2 View of the gas monitoring instrument for calibration

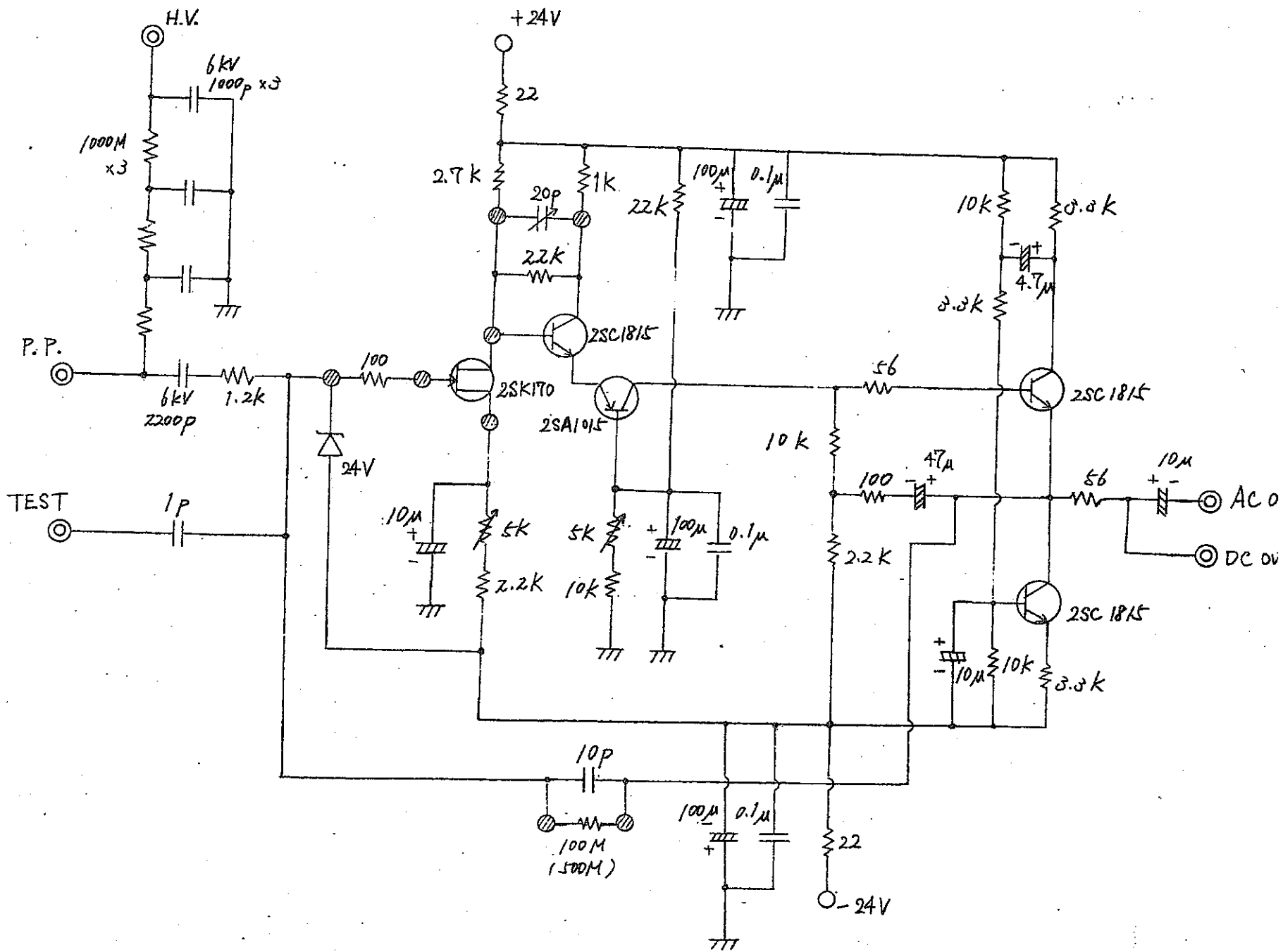
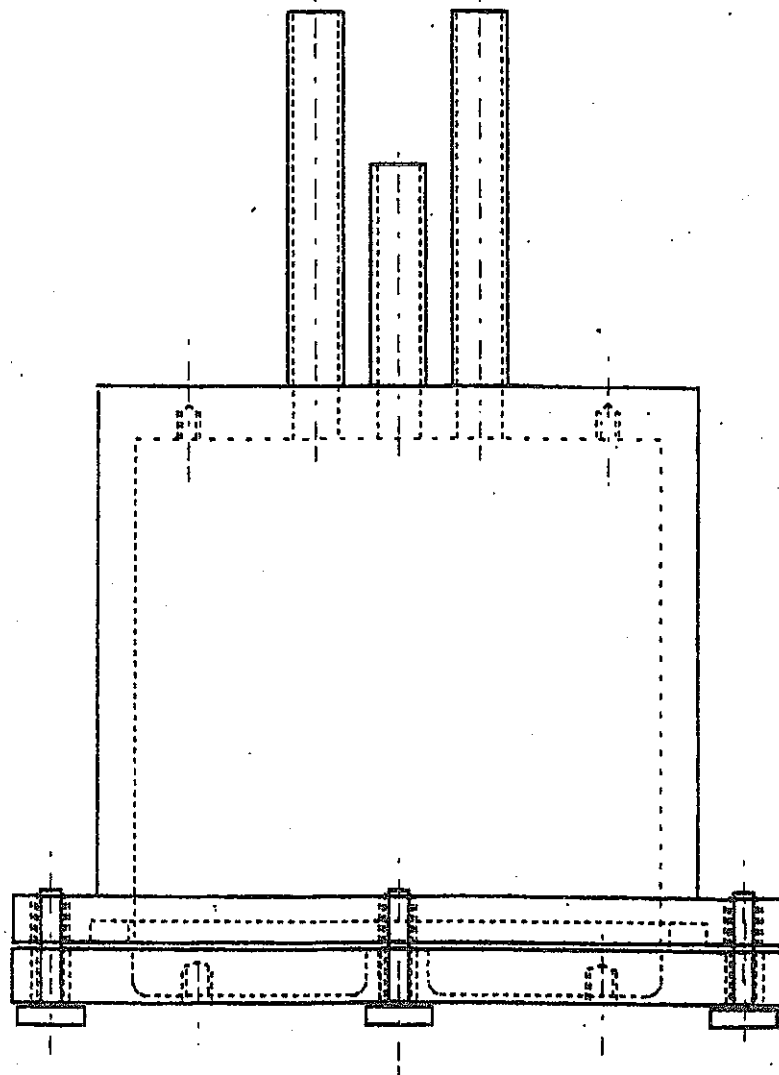


Fig. 3 Circuit of the pre-amplifier

①



3	容器の底部	US	1	耐圧力 10 kg/cm <sup>2</sup>
2	容器	US	1	耐圧力 10 kg/cm <sup>2</sup>
1	完成組立図	US	1	
品番	品名	材質	個数	備考
	1995年9月	1:1		耐高圧用環ポンプ用圧力容器
	名古屋大学工学部	投影法		

Fig.4 Design of circulation pump : part 1

②

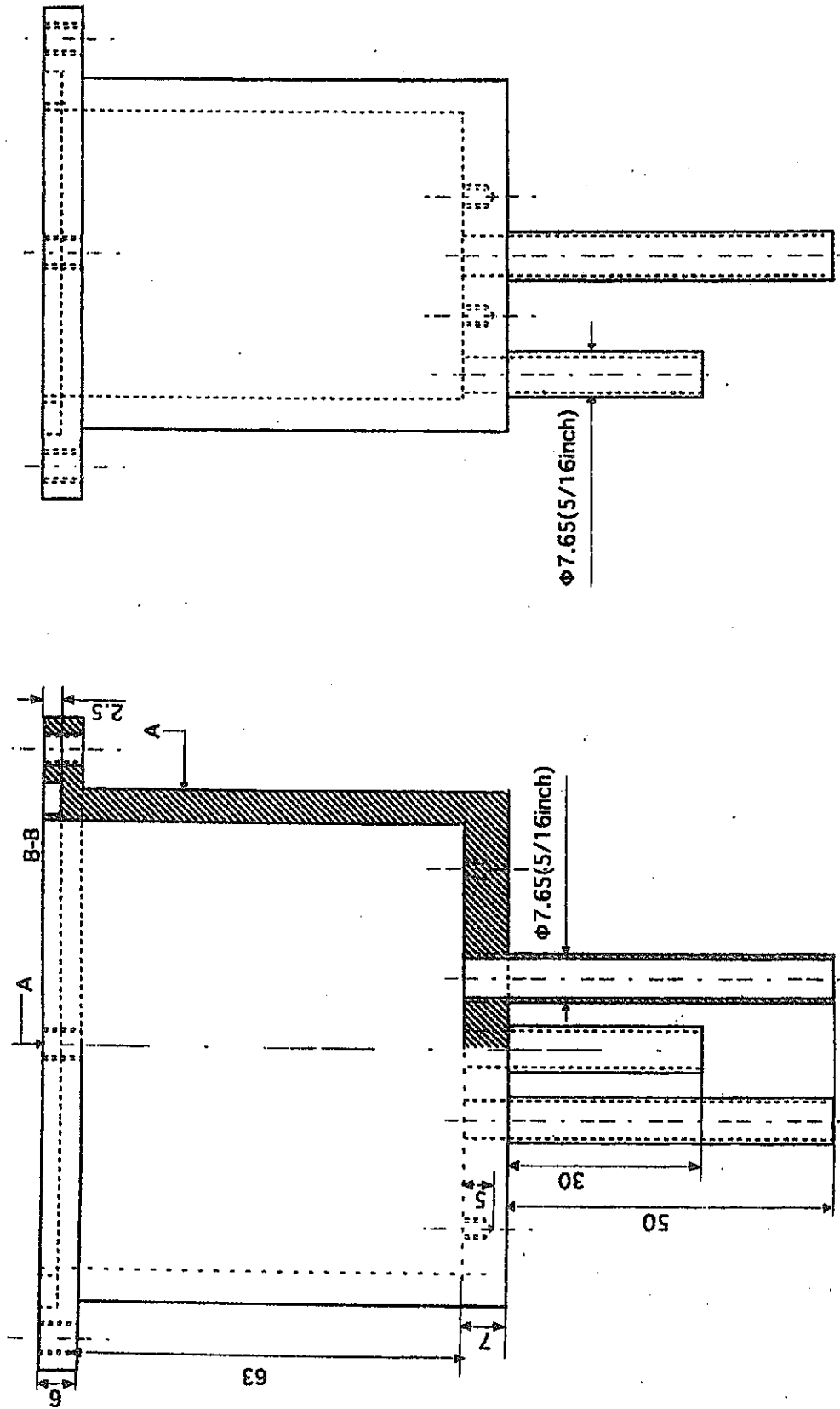


Fig.4 Design of circulation pump : part 2



3

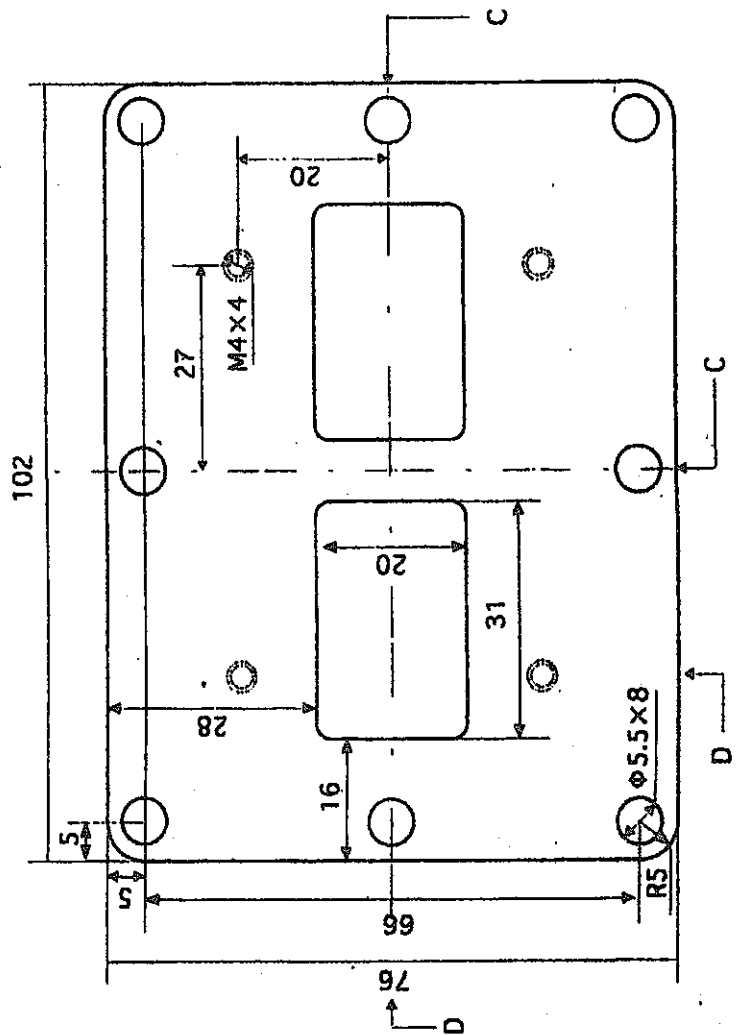
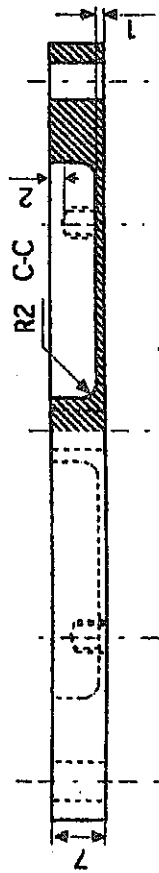
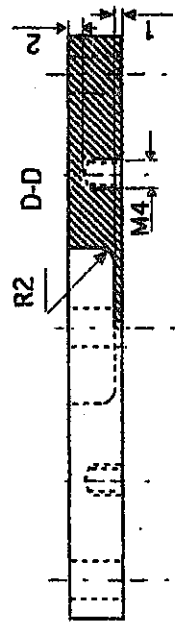


Fig.4 Design of circulation pump : part 4

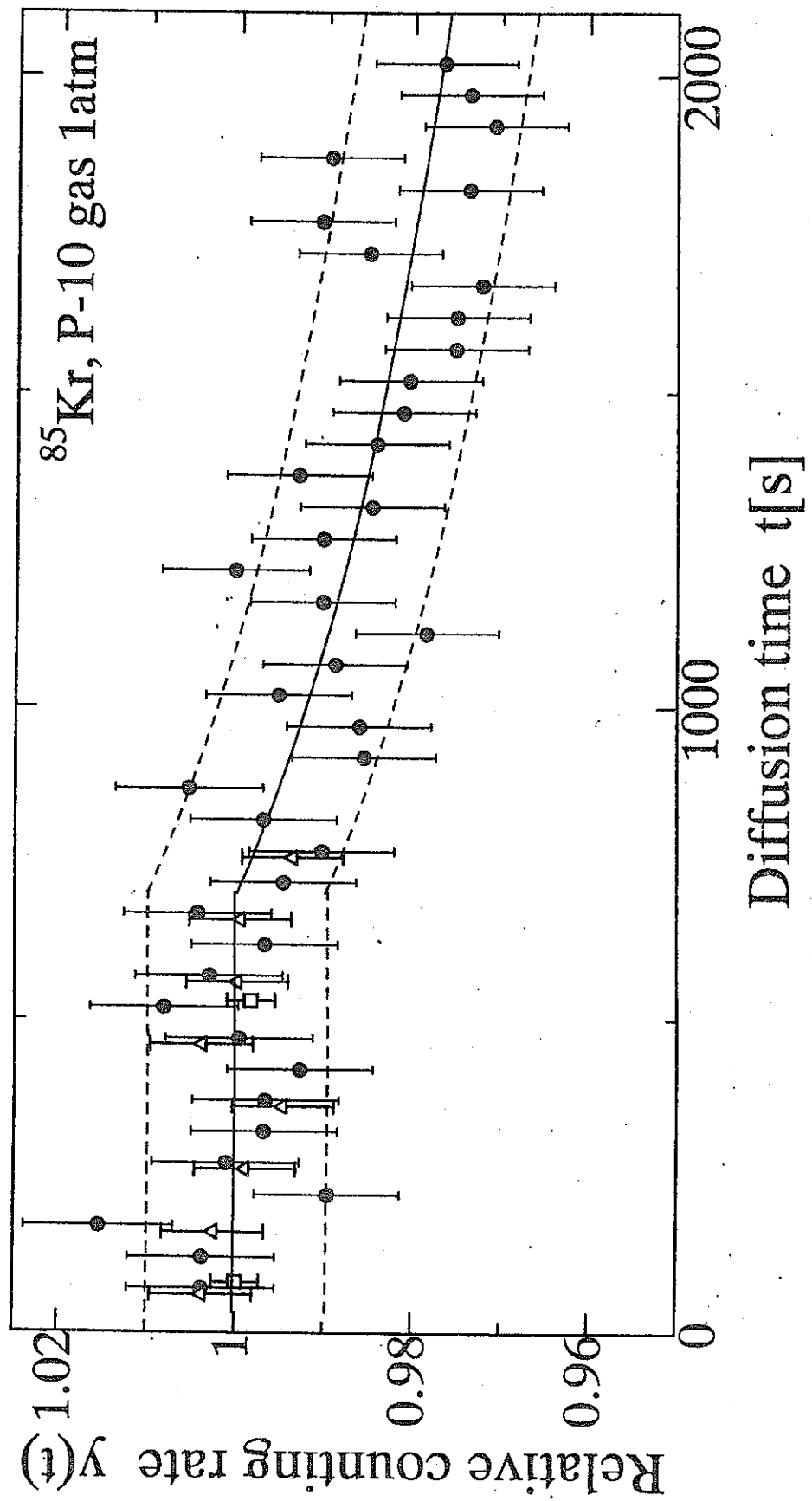


Fig.5 Relative counting rate  $y(t)$  as a function of diffusion time of injected sample

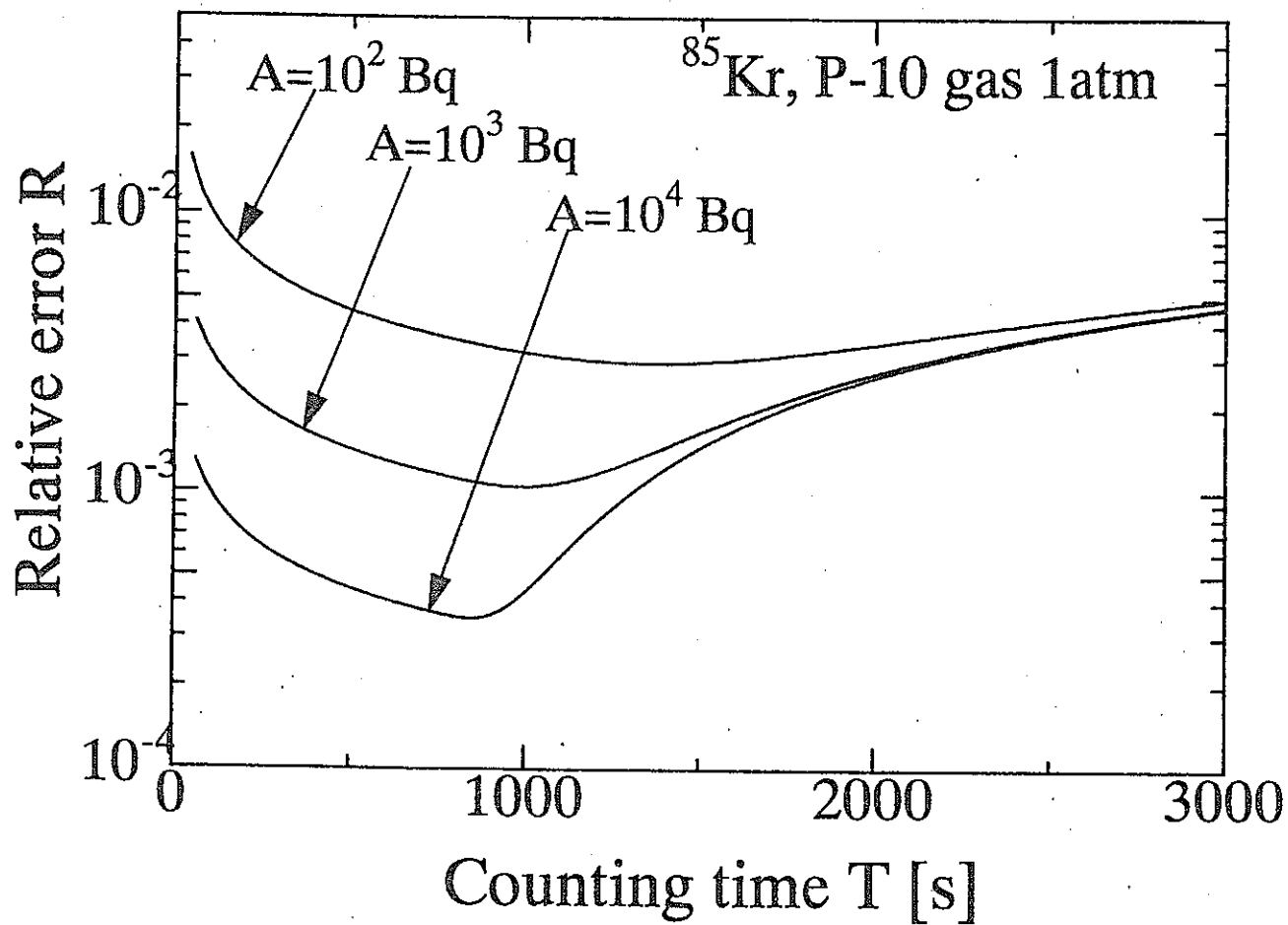


Fig.6 Relative error of measured radioactivity as a function of counting time calculated with eq.(3.6)



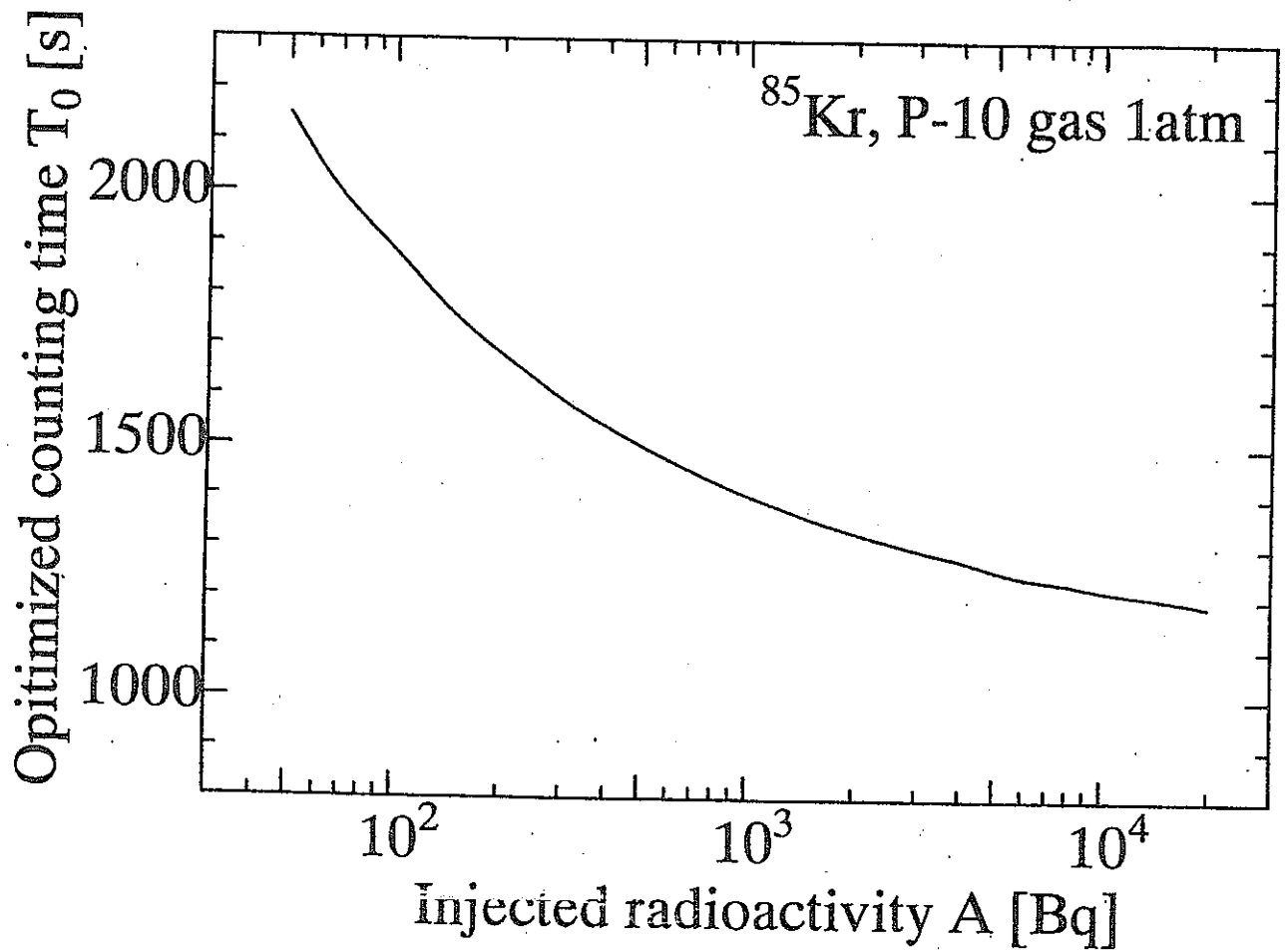


Fig.7 Optimized counting time determined from eq.(3.6) and Fig.6 as a function of radioactivity of injected sample

計数ガス：PRガス、 RI試料： $^{41}\text{Ar}$

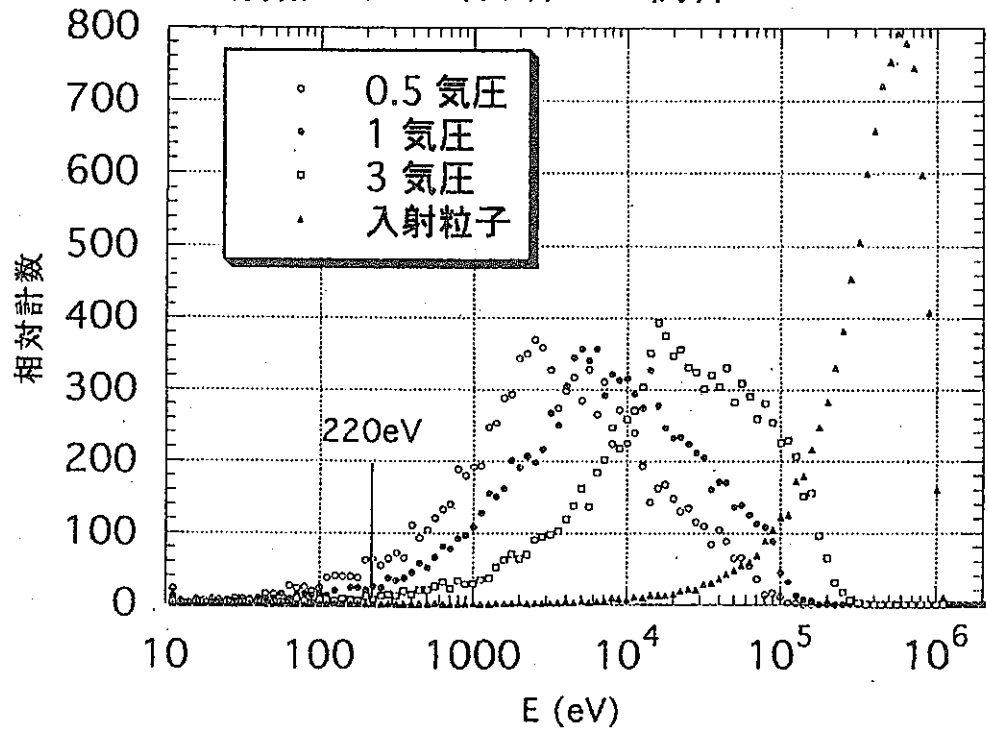


Fig.8 Energy distributions of  $\beta$  particles

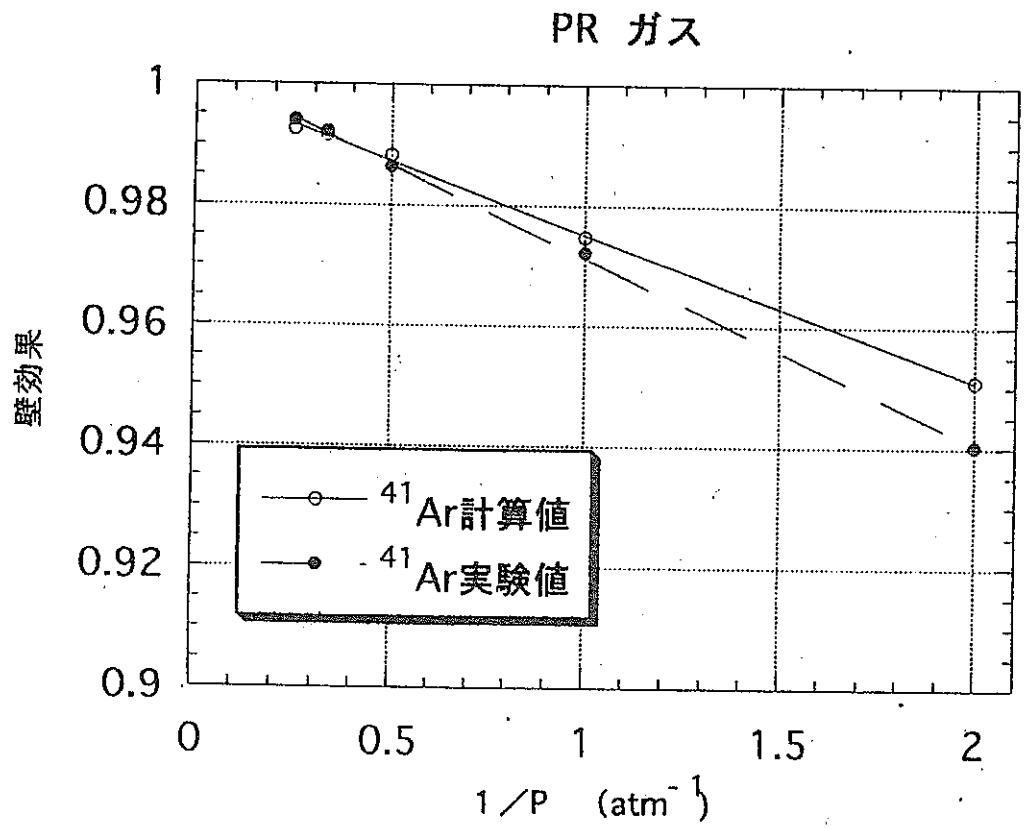


Fig.9 Measured and calculated correction factors for wall effect of <sup>41</sup>Ar

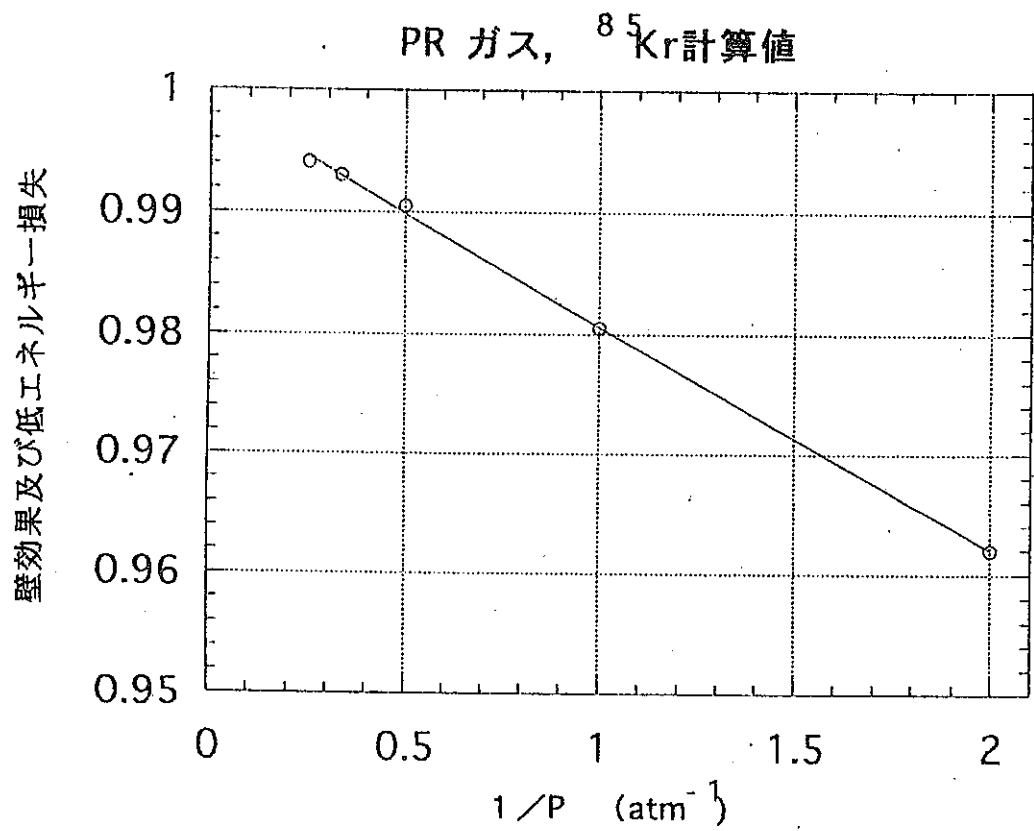


Fig.10 Calculated correction factors for wall effect and low energy loss of  $^{85}\text{Kr}$

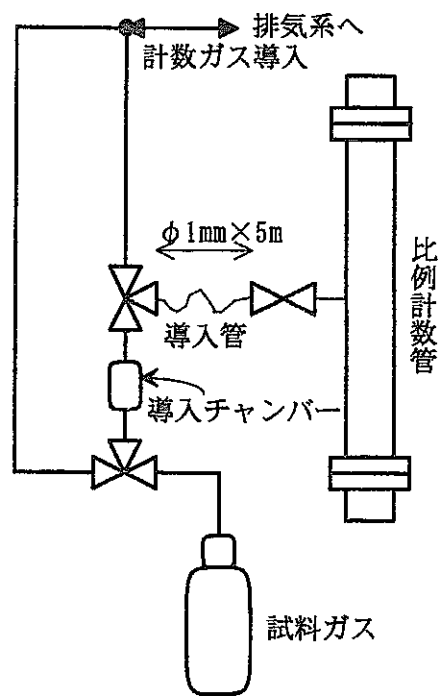


Fig.11 Gas injection method 1

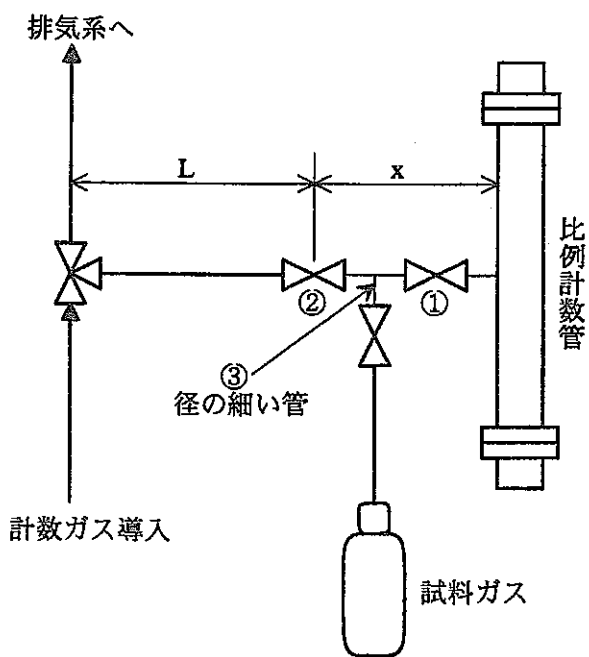


Fig.12 Gas injection method 2