

トリチウムガスモニタの開発

Research and Development of Tritium Monitoring System

山口清治* 岩月恒信* 岩田直樹*
Kiyoji Yamaguchi Tsunenobu Iwatsuki Naoki Iwata

I. ま え が き

原子力発電所の増加に伴い、環境汚染の問題が大きく取上げられている。原子力が環境に与える影響を正しく評価し、環境汚染ならびに作業者の被曝を最少限にするために信頼性のある放射線モニタが必要である。原子炉施設からの排気中に含まれる種々の放射性核種の中で、トリチウム(^3H)は比較的危険度の低いものとされている。しかし、その除去方式が確立されていず、また環境に放出された場合には、大気中および海洋中に広く拡散する性質を持っているため環境汚染の立場から非常に注目されている核種である。特に新形転換炉等では減速材に重水を使用しているため運転中に多量のトリチウムを生成する。これによる環境汚染の防止、ならびに作業者の被曝防止のために連続使用可能なトリチウムガスモニタが必要である。

ここでは動力炉・核燃料開発事業団の委託を受けて行ったトリチウム監視装置の試作開発研究について、その成果を報告する。

II. モニタリング方式の種類および選択

トリチウムはきわめて低いエネルギーの β 放射体(最大エネルギー18keV)であるので、その測定には特殊な方法が必要である。空気中のトリチウム濃度の測定方法には、試料空気を直接測定する方法と空気中の水蒸気を捕集し、その中のトリチウムの量を測定する方法とに

大別される。前者は試料空気を電離箱などの中に直接入れて測定する方法であり、後者はコールドトラップ、シリカゲル等で試料空気中の水蒸気を捕集し、その採取水を液体シンチレーションカウンタで測定して空気中トリチウム濃度を算出するものである。これら空気中トリチウムの測定法をまとめて第1表に示す。

今回の試作開発研究では、モニタリング装置として、検出感度が高く、安定性が良く、また設置場所にあったものを目的として、まず初めにプラスチックシンチレーション方式および電離箱方式を取上げ、それぞれについて基礎性能試験を行った。その結果、プラスチックシンチレーション方式はエネルギー分析ができるのでトリチウムのみ分離測定できる点で有利であるが、周囲温度変化に敏感であり、また外部 γ 線の影響を受けやすい等の短所を有することがわかった。電離箱方式ではエネルギー分析ができないが、検出感度が高く、安定性の良いものが得られることがわかった。そのため、以後は実用性を重視し、電離箱方式について種々の実用試験を行った。

III. 試作装置の概要

今回試作したモニタは、ガス状または水蒸気状のトリチウムを連続的に電離箱内に流し、これによって生じた電離電流を測定するものである。測定のプロック図を第1図に示す。

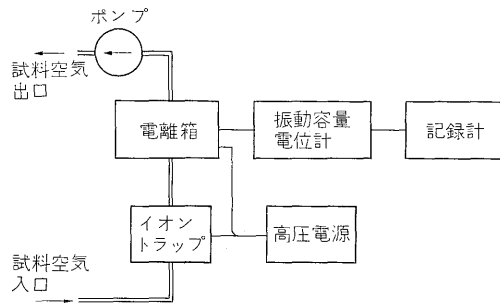
1. 電離箱

今回試作した電離箱は次の2機種である。

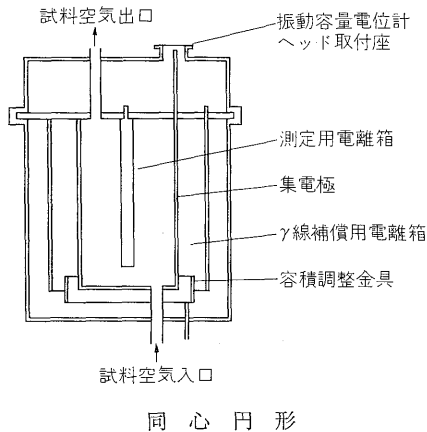
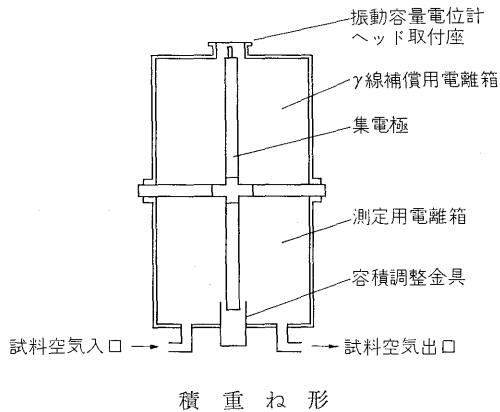
第1表 空気中トリチウムの測定法
Table 1. Measuring method of tritium in the air

	測定方式	長 所	短 所
気体状で測定	電離箱方式	連続測定可能 安定である 保守が容易 安価である	エネルギー分析不可能
	プラスチックシンチレーション方式	連続測定可能 エネルギー分析可能	外部 γ 線に対する補償がしにくい 温度特性が悪い 製作が困難
液体状にして測定	液体シンチレーション方式	検出感度が高い エネルギー分析可能	連続測定不可能 高価 試料の採取、調整が必要、保守がしにくい

* 東京工場



第 1 図 トリチウムモニタのブロック図
Fig.1. Block diagram of the tritium monitoring system



第 2 図 γ線補償形電離箱の簡略構造
Fig.2. Assembly of the gamma compensated ionization chambers

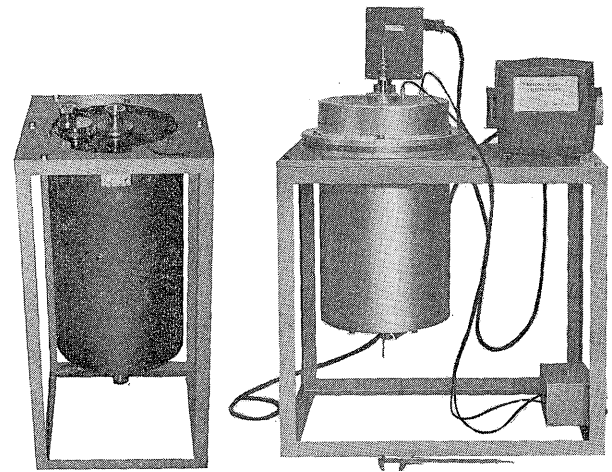
- (1) 積重ね形 γ線補償電離箱
- (2) 同心円形 γ線補償電離箱

それぞれの電離箱の簡略構造を第 2 図に、仕様を第 2 表に示す。γ線補償形電離箱は容積の等しい γ線補償用電離箱と測定用電離箱から構成され、この二つの電離箱にそれぞれ逆極性の電圧を印加して外部 γ線にする電離電流を補償する方式のものである。

電離箱の外観を第 3 図に示す。

2. イオントラップ

イオントラップは相対する電極板間に高圧を印加して



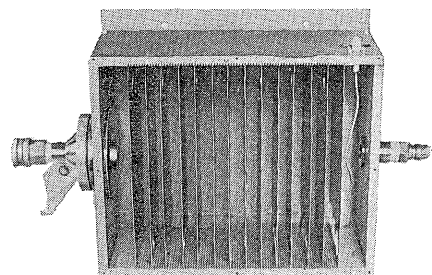
積重ね形 同心円形
第 3 図 γ線補償形電離箱
Fig.3. Gamma compensated ionization chambers

第 2 表 γ線補償形電離箱の仕様
Table. 2. Specifications of the ionization chambers

電離箱形式	積重ね形	同心円形
容 積	約 8ℓ	約 10ℓ
材 質	ステンレス	アルミハウム
γ線補償の調整	測定用電離箱の有効容積を調整	γ線補償電離箱の有効容積を調整
寸 法 (mm)	395(W) × 395(D) × 763(H)	500(W) × 800(D) × 960(H)

第 3 表 イオントラップの仕様
Table. 3. Specifications of the ion trap

フ ィ ル タ	グラスウールフィルタ 約 50mm φ
容 積	約 5ℓ
電 極 間 距 離	5mm
最 高 電 界 強 度	6,000V/cm
最 高 印 加 電 圧	3,000V



第 4 図 イオントラップの構造
Fig.4. Ion trap

極板間を通過する空気中のイオンを除去するものである。イオントラップを通さずにモニタを動作させるとバックグラウンドが上昇して検出感が悪くなる。イオントラップの構造および仕様をそれぞれ第 3 図、第 4 表に示す。

3. 振動容量電位計

トリチウムによる電離電流は微小であるのであるので安定に測定するために振動容量電位計を用いた。試作機はヘッド部、アンプ部、指示部の三つの部分より構成される。ヘッド部は袋ねじにより電離箱に直接取付ける構造として耐湿性、耐震性に注意を払った。アンプ部は交流増幅回路、同期整流回路等を収容し、出力信号のみを指示部にとり出す構成として300m以上の長距離伝送が可能のように考慮した。指示部には指示計および切替スイッチを設け、遠隔より指示の読取り、測定レンジの切替えができる。なお、指示部は監視盤に取付けて使用できるように、放射線管理用モニタ規格に準じて製作した。試作機の仕様を第4表に示す。

第4表 振動容量電位計の仕様

Table. 4. Specifications of the vibrating reed electrometer

測定レンジ	リニアの場合 short, 10^{-13} , 10^{-12} , 10^{-11} , 10^{-10} A ログの場合 10^{-14} ~ 10^{-10} A
警報	電子回路による上限1設定 ランプ表示および1トランスファ接点出力
記録計出力	0~10mV
応答速度	10^{-13} Aレンジで90sec±10% 10^{-12} ~ 10^{-10} Aおよびログレンジで2sec以下
電ドリフト	10^{-13} Aレンジで $5+10^{-15}$ A/day以下 ただし電源投入後30分は除く
所要電源	AC 100V 1φ 50/60Hz 10VA

IV. 試験結果および検討

1. 電離箱の飽和電離電流特性

電離箱印加電圧の最適値を求めるために外部よりγ線を照射し印加電圧—電離電流特性を調べた。その結果それぞれ線量率100mR/hにおいて、印加電圧を100V以上にすると完全に飽和領域に達した。そこで以後の試験はすべて測定用電離箱に+200V、γ線補償用電離箱に-200Vを印加して行った。

2. イオントラップの性能

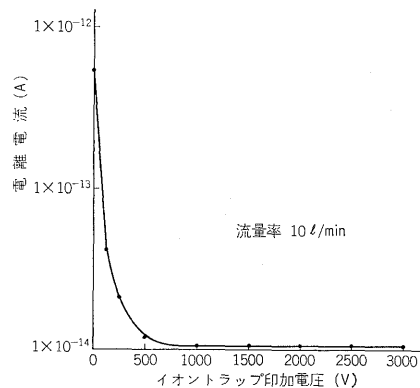
イオントラップの性能を調べるため、イオンを含んだ空気をイオントラップを通して電離箱に流し、イオントラップの印加電圧を変えてイオン除去性能を測定した。結果を第5図に示す。この結果から、印加電圧800V以上で空気中のイオンがほぼ完全に除去されることがわかった。

3. γ線補償特性

(1) 線量率特性

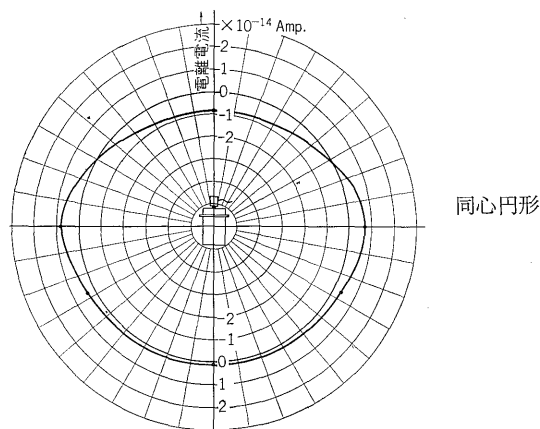
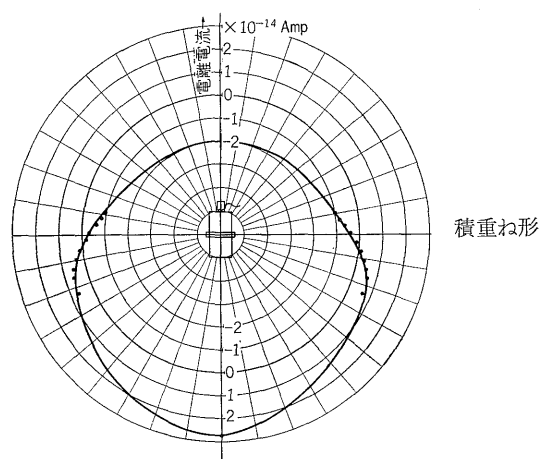
それぞれの電離箱に半径方向からγ線を照射してγ線補償特性を調べた結果、1mR/hの線量率において、同心円形では、1/30、積重ね形では1/25に補償された。また10mR/hではそれぞれ1/45、1/30以下に補償された。

(2) 方向依存性



第5図 イオントラップの性能

Fig.5. Saturation characteristic of the ion trap



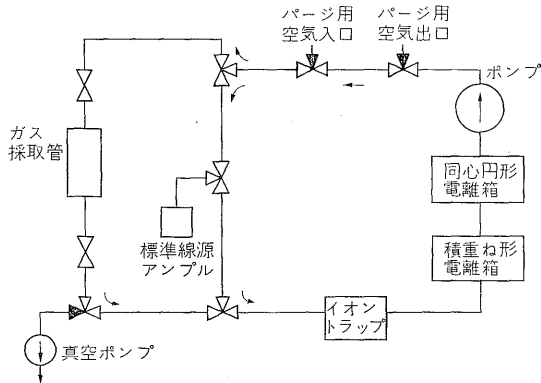
第6図 γ線補償の方向依存性

Fig.6. Directional gamma sensitivity of the ionization chambers

それぞれの電離箱に、いろいろな方向からγ線を照射し、γ線補償の方向依存性を調べた。結果を第6図に示す。図からわかるように、同心形の方が積重ね形に比べて方向依存性が少ない。

第 5 表 トリチウム標準ガス校正結果
Table 5. Tritium measuring data

電離箱形式	電離電流測定値 (A) (校正ガス濃度 $2.0 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/cc}$)	バックグラウンド変動幅 (A)	感度係数 ($\mu\text{Ci/cc/A}$)	検出感度 ($\mu\text{Ci/cc}$)
積重ね形電離箱	1.4×10^{-12}	9.0×10^{-16}	1.4×10^8	1.3×10^{-6}
同心円形電離箱	2.1×10^{-12}	1.0×10^{-14}	9.7×10^7	9.7×10^{-7}



第 7 図 校正ブロック図

Fig. 7. Block diagram of the calibration apparatus

4. トリチウム標準ガス線源によるモニタの校正

積重ね形電離箱と同心円形電離箱を第 7 図に示すように接続して閉ループの測定系を構成し、トリチウム標準ガス線源を用いて作製した試料ガスを循環して校正を行った。

(1) 感度係数

感度係数は、放射能濃度と電離電流との関係を表すもので、次式により求める。

$$\text{感度係数 } Y = C / I_m \quad (\mu\text{Ci/cc/A})$$

ここで C : 放射能濃度 ($\mu\text{Ci/cc}$)

I_m : 電離電流測定値 (A)

それぞれの電離箱についての計算結果を第 5 表に示す。

(2) 検出感度

検出感度は、バックグラウンドの値より識別して読み取れる最低量であり、一般に次式により求められる。

$$\text{検出感度 } K = Y \cdot \Sigma_B \quad (\mu\text{Ci/cc})$$

ここで Y : 感度係数 ($\mu\text{Ci/cc/A}$)

Σ_B : バックグラウンド変動幅 (A)

バックグラウンドが変動する主な原因として、放射線の統計的揺動があるが、これによる変動幅はバックグラウンドの平均値から算出できる。しかし、実際には、周囲温度の変化、また AC 電源、電池等の電圧変化による性能変動の影響もあるため、ここでは長期間にわたるバックグラウンドの測定データよりその総合変動幅を読み取った。この変動幅と、前項にて算出した感度係数とから求めた検出感度を第 5 表に示す。

5. 水蒸気状トリチウムの測定

実際の測定状態では、トリチウムは重水中に生成されるため、重水の漏洩によって水蒸気となって浮遊するト

リチウムを測定することが主になると考えられる。そのため、種々の温度、湿度のトリチウム水蒸気を電離箱内に流して測定試験を行った。その結果、バックグラウンドレベルに近い濃度のトリチウム水蒸気まで安定に測定できることを確認した。ただし、電離箱は湿気に弱いので電離箱周囲温度を試料空気温度よりも高くして、水蒸気の凝縮が起こらないようにしなければならない。また、途中のサンプリング配管等でも水蒸気が凝縮しないよう注意が必要であり、そうしないとトリチウム濃度を過少評価することになる。

6. 除染性能

法規に定める許容濃度近くのトリチウムを測定するには、電離箱の汚染によるバックグラウンド値の上昇が問題になる。実際のトリチウムによる汚染は、主としてトリチウムを含んだ水滴が電離箱内壁に付着することにより生じると考えられる。そこで、 $100 \mu\text{Ci/cc}$ のトリチウム水 6cc によって、電離箱を汚染状態にした後、乾燥空気 (10°C , RH40%) を 10l/min で流し、除染性能を測定した。その結果、約 8 時間の除染で、指示はバックグラウンド近くまで回復した。除染用空気の温度、流量率を高くすることにより、この除染時間は短縮できる。

7. 長時間運転による安定性の検討

本試作機は、合計約 7,500 時間の連続運転を行った結果、一度の故障もなく安定に動作することを確認した。また、ノイズ等を拾って指示が異常に上昇するような現象も認められなかった。

V. 性能の評価

実用装置としてのトリチウム監視装置は、基本的に今回試作したものを使用することで、検出感度、安定性ともに問題はないと考える。積重ね形電離箱と同心円形電離箱の使いわけは、検出感度が良く、 γ 線バックグラウンドが高い場所でも使用できる同心円形の方が良いが、 γ 線バックグラウンドが低い所では構造が簡単な積重ね形が有利である。

実用装置として製作する際に考慮すべき点は、サンプリング配管および電離箱を保温する方法によって試料空気中の水蒸気が凝縮しないようにすることである。この凝縮が配管中で生じると、検出器に到達するトリチウム水蒸気が少なくなり、濃度を過少評価することになる。電離箱中で生じた場合は電離箱の汚染、絶縁の

低下により測定不能になることがある。このため、凝縮が生じた時に備えて、検出器に乾燥空気を送れるように配慮することが望ましい。また、電離箱の絶縁物に水滴が付着しにくい構造とすることも有効である。

V. あとがき

以上試作装置の概要、試験結果の概略を述べた。設計時には予想できないトラブルも若干発生したが、実用装置としてのトリチウム監視装置の見通しを得た。しかし、電離箱方式では、種々の核種の混合したガスの中から、トリチウムのみを分離して測定することができないので、今後核種を選択して測定できる装置を開発する必要がある。またトリチウムの水モニタで連続使用可能なものを開発する必要があると考える。

終わりに本試作開発研究を実施するにあたって計画時

より終始ご指導いただいた動力炉核燃料開発事業団新形転換炉開発本部の清水正己殿、中井重次殿、大橋収司殿、安藤康正殿に、誌上を借りて深く感謝する次第である。

参考文献

- (1) プライス：放射線計測，西野治監修，西口晃訳コロナ社（1966）
- (2) 穴沢他：作業環境におけるトリチウムのモニタリング，保健物理 7（1972）
- (3) 藤田他： γ 線補償電離箱形トリチウムガスモニタの試作とその特性，JAERI-memo 3128（1968）
- (4) 南他：放射線管理における計数装置の検出感度について，JAERI-memo 2703
- (5) 岩田他： ^{86}K ガス測定用円筒型電離箱の特性，保健物理 8
- (6) 東京天文台編纂：理科年表，丸善株式会社（1972）
- (7) 日本アイソトープ協会編：ラジオアイソトープ手帳（1970）

発明の紹介

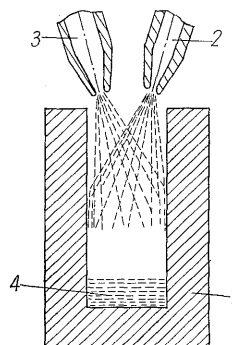
焼結体の製造方法

（特許第 728596 号）

2種あるいはそれ以上の成分金属の組成比が連続的に変化している部材は、ある用途においてきわめて有用である。たとえば、シリコン片と銅製のスタッドをろう付けにより結合する形式の半導体装置で、両者の熱膨張の差によりシリコン片が割れるのを防ぐために用いられる補償板は、一方の面がモリブデンのようにシリコンと近似の熱膨張係数を持つ材料のみそして他方の面が純銅からなり、両面間で組成比が連続的に変化するような構成になっていれば、局所的な応力の発生が防止できて有利である。

この発明は、粉末冶金法を利用することによって、このように成分組成が連続的に変化する部材をきわめて容易に製造できるようにしたもので、2種あるいはそれ以上の成分金属の粉末を別個につくっておき、これらを型 I 内にそれぞれのノズル 2, 3 を用いて噴出し、型 I 内に所望の組成分布を持つ粉末層 4 を得、続いて加圧、焼成の処理を施すものである。

たとえばノズル 3 から銅、ノズル 4 からモリブデンの粉末をそれぞれ噴出するように構成しておき、まずノズル 3 のみを開き、次いで徐々にノズル 3 をしぼりながらノズル 4 を開いて行けば、上記の補償板として最適のものが得られる。





*本誌に記載されている会社名および製品名は、それぞれの会社が所有する
商標または登録商標である場合があります。