

論 文

制動 X 線計測によるトリチウムガスの非破壊測定

松 山 政 夫・三 宅 均・芦 田 完
渡 辺 国 昭・伍 島 伸 五*・藤 田 良 成*
中 谷 秀 夫*

富山大学トリチウム科学センター

*富山大学工学部電気工学科

〒930 富山市五福3190番地

Non-Destructive Measurement of the Amount of Tritium by Bremsstrahlung Counting

Masao MATSUYAMA, Hitoshi MIYAKE, Kan ASHIDA
Kuniaki WATANABE, Shingo GOSHIMA*, Yoshinari FUJITA*
and Hideo NAKATANI*

Tritium Research Center, Toyama University,

*Faculty of Engineering, Toyama University,

Gofuku 3190, Toyama 930, Japan

(Received December 25, 1986)

Abstract

To establish techniques for *in-situ* and non-destructive measurement of a large amount of tritium gas, we examined the bremsstrahlung counting method to determine the amount of tritium in glass or aluminum alloy tubes. The wall thickness of glass tubes used was 0.5, 1.0, 1.2, 1.5 and 2.0mm, and that of aluminum alloy tube was 1.0 mm. The outer diameter of each tube was 10mm. The pressure of tritium in the tubes was controlled in a range from 2 to 160Torr, which corresponds to a range from 40mCi to 3.5Ci.

It was observed that the counting rate of the bremsstrahlung X-rays was propor-

tional to the pressure or the amount of tritium gas in the tubes. The half-thickness varied from 40 to 140 mg/cm², depending on the wall thickness of the glass tubes used in the present study. However, the present results indicate that the bremsstrahlung counting method is applicable to *in-situ* and non-destructive measurements of a large amount of tritium gas in the tritium handling systems.

1 緒 言

核融合反応実験装置はもとより、近年では様々なトリチウム取り扱い装置で大量のトリチウムガスが使用されるようになってきている。この際、装置内にあるトリチウム量の *in-situ* かつ *real-time* の測定が基本的かつ重要な課題となる。しかし、従来の計測方法のみでは、このような *in-situ*, *real-time* 測定に対して充分に対応できない。即ち、従来の通気型の比例計数管や電離箱あるいはシンチレーションカウンターを用いる計測方法ではトリチウムガスの一部を分取して測定するバッチ方式となり、*real-time* 化は甚だ困難である。又、これらの装置では一回に測定できるトリチウム量は数 mCi 以下である。

一方、上記の方法とは異なる測定原理、即ちトリチウム β 線とトリチウムガス格納材料との相互作用によって発生する制動 X 線や特性 X 線を利用して、その量を計測する方法がある。これらの X 線は β 線に較べ透過能が遙かに大きいために、適当な材料を選択すれば外部に放出される制動 X 線あるいは特性 X 線の線量から、内部のトリチウム量を *in-situ* かつ *real-time* に測定できる可能性がある。

このような制動 X 線を利用したトリチウムの測定例としては、Westermarck¹⁾ および Curtis²⁾ らによるトリチウム水や真空ポンプ油中のトリチウム量の測定、西沢³⁾ らによるトリチウム水の定量、備後⁴⁾ らによる空気中トリチウムの測定などが報告されている。又、特性 X 線を利用した例としては Weinstein⁵⁾ らによるレーザー核融合用燃料ペレット中のアルゴン量の測定および岸川⁶⁾ らによる Ti ターゲット中のトリチウム量の測定などがある。しかし、制動 X 線を利用して、大量のトリチウムガスを *real-time* で測定した例はまだ報告されていない。

本研究では大量トリチウムガスの *in-situ* かつ *real-time* な計測方法を開発する為の基礎的知見を得るために、種々の圧力の無担体トリチウムガスを封入したガラス管から放射される制動 X 線の測定を行なうとともに、この方法による大量トリチウムガスの非破壊、*in-situ* かつ *real-time* 計測の可能性を検討した。

2 実 験

制動 X 線測定用の計測管にトリチウムガスを供給または回収するために使用した装置を Fig. 1 に示す。この装置は高真空排気系に接続されており、残留圧は通常 5×10^{-6} Torr 以下であった。計測管材料としてはパイレックスガラス (Iwaki Code7740, 密度: 2.23g/

cm³) およびアルミニウム合金 (A1050: Al > 99.5%, 密度: 2.7g/cm³) の2種類を用いた。ガラス製計測管には肉厚の異なる5種類のガラス管 (0.5, 1.0, 1.2, 1.5及び2.0mm) を用いた。また, アルミニウム合金製の計測管の肉厚は1.0mmである。なお, これらの計測管の外径は何れも10mm, 長さは14cmとした。

トリチウムガスの供給及び回収材には Zr-V-Fe 合金ゲッターを用いた⁷⁾。なお, このゲッターは使用に先立ち, 700°Cで 1×10^{-5} Torr まで真空排気して活性化処理した後, 5 Ciの無担体トリチウムガス (NEN社製) を吸蔵させた。計測管へのトリチウムガスの供給圧は2~200Torrとした。この際の圧力測定は隔膜型真空計 (MKS バラトロン: PDR-D-1, 1000Torrヘッド) によった。

計測管に10Torr以下のトリチウムガスを供給する場合は次の様に行った。まず計測管を十分に排気した後, ゲッターを約650°Cに加熱して, ゲッター上部のバルブ操作により所定の圧力のトリチウムガスを計測管に導入した。導入後, 計測管以外の装置内に残ったトリチウムガスを, 室温まで冷却したゲッターで再び回収した。次いで系を真空排気して, 計測管を VCR 継ぎ手の所で装置と切り放し, Fig. 2に示す測定装置に取り付けた。

10Torr以上のトリチウムガスを導入する場合には, 次のように行った。前記のようにゲッターを加熱するだけの方法では計測管内のトリチウムガスの圧力を10Torr以上にする事は出来なかった。このために10Torr以上の圧力領域ではゲッターから放出されるトリチウムガスを計測管内のモレキュラーシーブスで一次的に捕集する方法を併用した。即ち, 計測管に予めモレキュラーシーブスを約0.1g入れ, これを250°Cに加熱しながら 1×10^{-5} Torr まで真空排気した。次いで, これを液体窒素で冷却しつつ, ゲッターから放出したトリチウムガスを捕集した。所定量のトリチウムを捕集した後, 計測管上部のバルブを閉じ, モレキュラーシーブスを室温に戻してから制動 X 線の測定を行った。この際の計測管以外の部分のトリチウムガスの回収および真空排気などは上記と同様である。なお, 計測管内に封入したトリチウムガスの圧力は, 制動 X 線を測定した後 (Fig. 2), 計測管を本装置 (Fig. 1) に再び接続して, トリチウムガスを圧力系の部分まで拡散させて測定した。

トリチウムガス計測管からの制動 X 線は, Fig. 2に示すように計測管と制動 X 線検出器

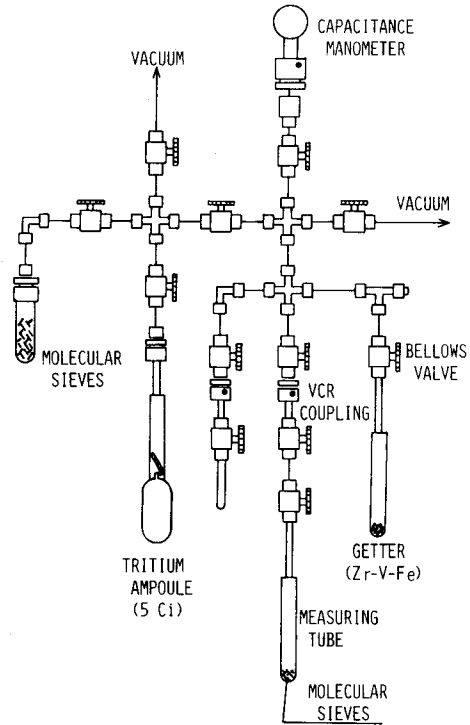


Fig. 1. The apparatus used for supply and recovery of tritium gas to/in measuring tube.

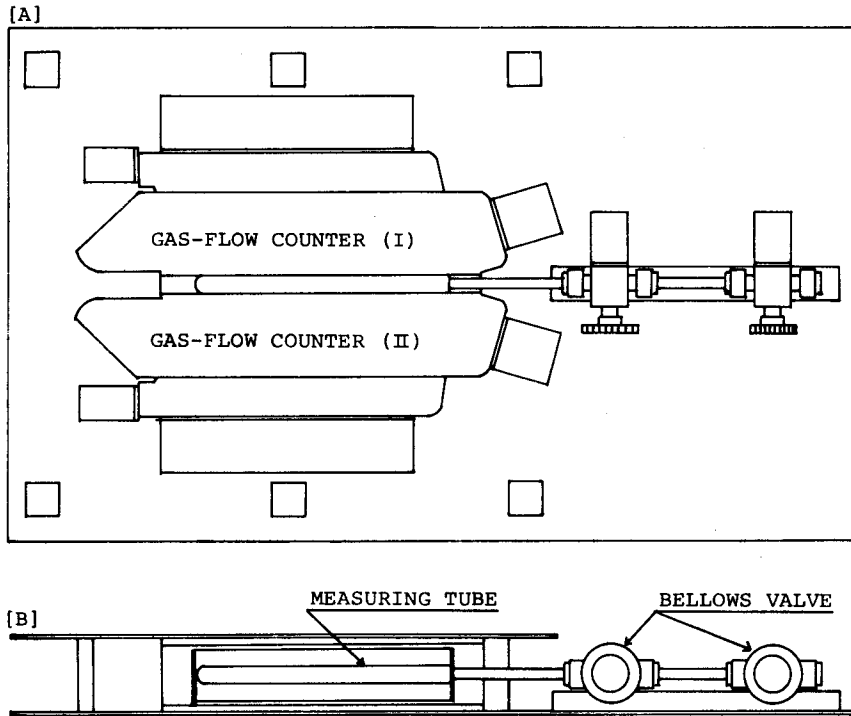


Fig. 2. The plane view (A) and vertical sectional view (B) of the apparatus for measurement of bremsstrahlung X-rays.

を共に固定した状態で測定した。制動 X 線の検出器としてはアロカ製薄窓型ガスフローカウンター (MFR-3) を用いた。なお、カウンターの増幅ガスとしては PR ガス (アルゴンとメタンの混合ガス) を毎分 60ml 流した。

3 結 果

Fig. 3 は肉厚 1.0mm のガラス製計測管を用いた際の計数率 (cpm) とトリチウムガス圧との関係を調べた結果である。図のように 2~200 Torr の圧力範囲において、計数率とトリチウムガスの圧力との間に良い直線関係が得られた。また、他の計測管においても同様な直線関係が得られた。トリチウムガスのガラス管内面への吸着の影響を調べるために、160 Torr のトリチウムガスを測定した後、計測管内のトリチウムガスを回収して、計測管のみに対するバックグラウンドの変化を測定した。その結果、約 30cpm のバックグラウンドの増加がみられた。

Fig. 4 は肉厚の異なるガラス管及び肉厚 1.0mm のアルミニウム合金管の各計測管に対するトリチウム量と制動 X 線の計数率との関係を調べた結果である。なお、これらの測定に使用したトリチウムガスの純度を質量分析計で各計測管ごとに分析した。その結果、何れの計測管の場合もトリチウムの純度は約 85% であった。なお、不純物は主として軽水素

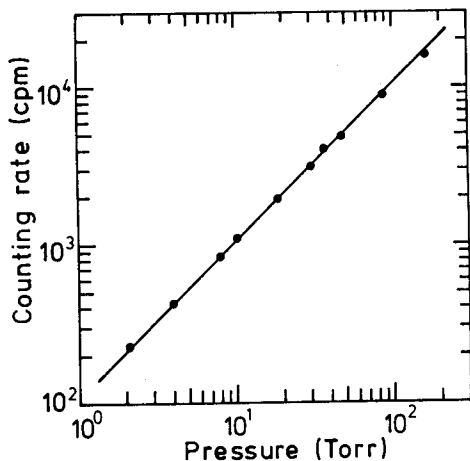


Fig. 3. The relation between the pressure of tritium gas and the counting rate of the bremsstrahlung.

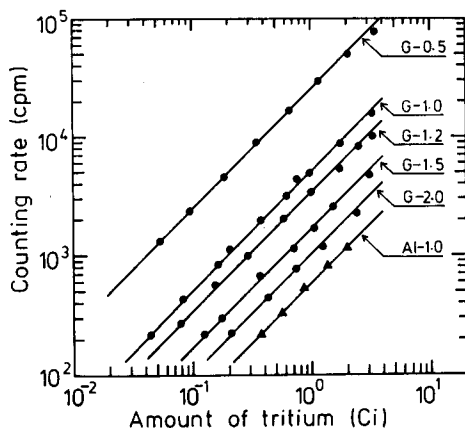


Fig. 4. The relation between the amount of tritium and the counting rate for aluminum alloy tube and glass tubes with various thickness.

であった。Fig. 4の横軸はこの純度を補正して示してある。トリチウム量の変化に対する計数率の変化は何れの計測管の場合でも測定範囲内で比例関係が見いだされた。また、ガラス製の計測管ではその肉厚の増加と共に計数率は減少した。アルミニウム合金製の計測管では同厚のガラスの場合よりも約1/8小さい計数率を示した。

Fig. 5はガラスの肉厚の増加に対する計数率の変化を Fig. 4より求めた結果である。なお、計数率はトリチウムガスが何れの計測管にも1Ci封入された場合の値を示してある。図

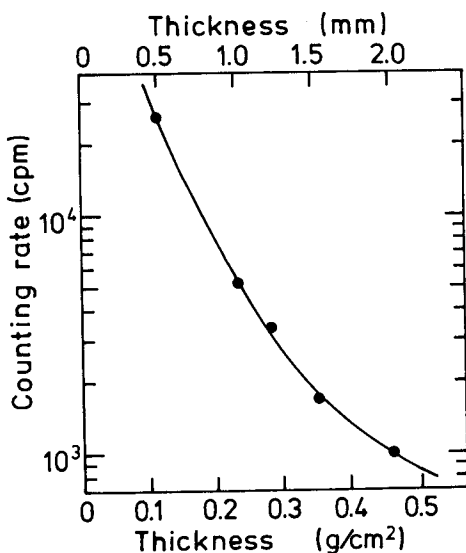


Fig. 5. Effect of the wall thickness of glass tubes on the counting rate of the bremsstrahlung.

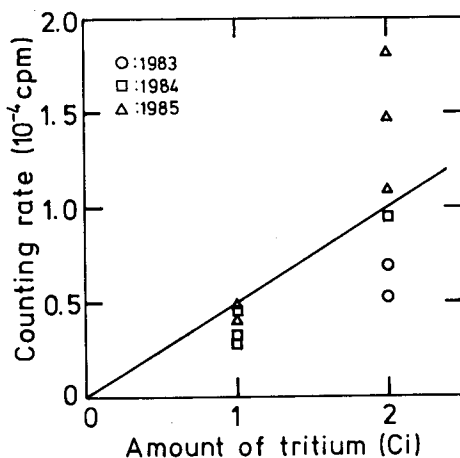


Fig. 6. Measurement of the bremsstrahlung for the commercial glass ampoules containing tritium gas.

より明らかなように、計数率はガラスの厚みの増加と共に減少した。しかし、その減少傾向は特性 X 線の吸収等に見られるような指数関数的な変化とは異なる。0.5 および 2.0mm のガラス管を透過した後の制動 X 線の半価層をこの図より計算すると、それぞれの管に対する半価層は約 40 及び 140mg/cm² となった。

Fig. 6 は市販のトリチウムガス入りガラスアンプル（肉厚 1.0mm）を Fig. 2 に示された装置で測定した結果である。なおアンプルの外径は何れも 10mm であった。図中に示した実線は Fig. 4 における肉厚 1.0mm の結果である。1Ci 入りと書かれてあるアンプルは何れも実線より低い値を示し、2Ci 入りアンプルでは購入年度の新しいものほど高い値を示した。

4 考 察

トリチウムから放出される β 線と種々の物質との相互作用により制動 X 線あるいは特性 X 線が発生する。これらの X 線に関する研究は数多くなされており、放出される制動 X 線は β スペクトルと同様に連続スペクトルであり、吸収体が極めて薄い場合の平均エネルギーは 6.3keV とされている⁸⁾。本実験において、トリチウムガスの充填材料として使用したパイレックスガラス管およびアルミニウム合金管の内表面から放射される X 線には、制動 X 線及び特性 X 線の 2 種類が考えられる。特性 X 線としては、これらの材料の主成分である Si, O および Al の KX 線であり、そのエネルギーはそれぞれ 1.74, 0.53 および 1.49 keV である⁹⁾。しかし、両材料に対するこのような低エネルギーの X 線の質量吸収係数は約 0.4cm²/mg と大きく⁹⁾、半価層に換算すると 1.7mg/cm² となる。即ち、このような特性 X 線は本実験で使用した厚みの材料を殆ど透過できない。Fig. 7 はガラス製計測管を用いた場合の放射線スペクトルを NaI (Tl) シンチレーションカウンターで測定した結果である。約 70 チャンネル (11keV) に大きな幅広のピークが検出されているが、これは制動 X 線と同定される。従って、本研究で計数された電離放射線はエネルギーのより高い制動 X 線であると結論できる。なお、制動 X 線のピークが文献値よりも高くなっているのは、NaI シンチレーターを保護するために用いている Al 箔 (0.5mm 厚) による低エネルギー制動 X 線の吸収のためである。

Fig. 3 および 4 に示したように、制動 X 線の計数率はトリチウム量あるいは圧力に比例して変化した。このような比例性は制動 X 線計測によるトリチウム水の定量においても

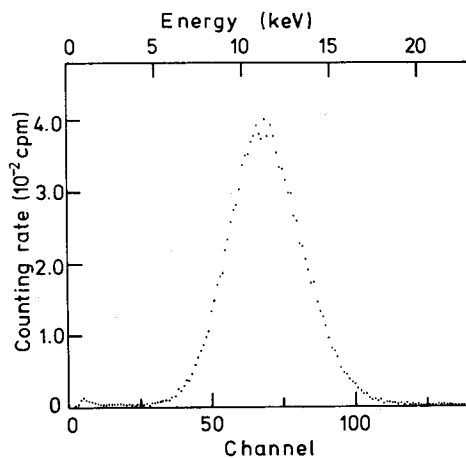


Fig. 7. The bremsstrahlung X-rays spectrum measured by NaI (Tl) scintillation counter.

見いだされている⁹⁾。本実験で認められたトリチウムガス圧に対する計数率の比例性は、測定圧力の範囲内でトリチウムガスによる β 線の自己吸収が制動X線の発生確率に対して無視できることを意味している。この結果は以下のように説明される。本実験でのトリチウムの最高圧力は160Torrで、これはトリチウム層の厚みに換算すると $3.8 \times 10^{-2} \text{mg/cm}^2$ となる。他方、 β 線の平均エネルギーを5.7keVとした時の飛程は $6.6 \times 10^{-2} \text{mg/cm}^2$ である⁹⁾。即ち、測定した圧力範囲はこの飛程よりも小さい領域であり、自己吸収は問題とならない。ただし、Fig. 3または4における最高圧力での計数率は何れの計測管の場合も僅かに直線より下方にずれる傾向が認められた。このずれはトリチウム層の厚みが β 線の飛程に近づいたためと考えられる。

これらのことより、トリチウムガスの圧力計測において、 β 線の自己吸収が無視でき、計数率と圧力との間に直線関係が成立するためには、計測管の管径(ℓ cm)は次のようであれば良いと結論できる。

$$\ell \leq 3.8 \times 10^{-2} \cdot T/273 \cdot \alpha \cdot P$$

ここでTは測定温度(K)、 α は標準状態での被検気体の密度(mg/cm^3)、Pは圧力(atm)である。即ち、高圧計測を対象とした計測管ほど、その管径を小さくする必要があり、例えば1気圧までの場合には $\ell \leq 0.15 \text{cm}$ となる。なお、本実験では使用した検出器のバックグラウンドが約200cpmであり、1Torr以下の計測が困難であったが、検出器の検出効率及びノイズレベル、検出器と計測管の立体配置および計測管の肉厚などの要素を検討すれば、1Torr以下の圧力領域においても使用可能であると考えられる。

Fig. 4に示したように、ガラス管の肉厚が異なる何れの計測管においても、数十mCiから数Ciまでのトリチウム量に対する制動X線の計数率の比例性が見いだされた。この比例性はアルミニウム合金管の場合にも同様に得られたが、アルミニウム合金管ではこれと同厚のガラス管(肉厚1.0mm)の場合よりも計数率は極めて少なくなった。この原因は次のように考えられる。制動X線は計測管の内表面近くで発生する。 β 線の飛程⁹⁾から制動X線の発生場所を計算すると、ガラス管では表面から $0.27 \mu\text{m}$ 、アルミニウム合金管では $0.22 \mu\text{m}$ である。これらの距離は1mmの肉厚に較べ約1/4000である。即ち、内表面で発生した制動X線がガラス或はアルミニウム合金中で光電効果などの相互作用する距離は、両者とも同じであると考えて良い。また、制動X線の発生割合は β 線と相互作用する原子の原子番号に依存し、原子番号の増加と共に増加するが^{10,11)}、本実験で使用した材料の主成分であるAlとSiの原子番号の差は1である。よって両者の材料表面での発生割合にはほとんど差がないと考えられる。他方、両材料の密度を比較すると、アルミニウム合金はガラスの約1.2倍である。即ち、両材料の密度を考慮した厚み(mg/cm^2)はアルミニウム合金の方が大きくなり、材料中を透過するときの制動X線の減衰割合は大きくなる。従って、両材料での計数率の差は制動X線の透過過程に大きく依存していると言える。

Fig. 4 より明らかなように、ガラスの厚みの増加に依る制動 X 線の計数率の減少は特性 X 線などの場合にみられる様な指数関数的変化を示さず、半価層が計測管の厚みの増加と共に増大した。この増加は各計測管から放出されている制動 X 線スペクトルのピークがガラスの厚みの増加とともに高エネルギー側に移動⁹⁾していることによるものと考えられる。また、このような計数率の変化より、計測管の肉厚が薄い場合には僅かな厚みの差が計数率に大きな影響を与えることが分かる。但し、1.0mm 以上の厚みのガラス管に対しては、その肉厚の誤差が0.1mm 以内であれば、約10%の計数誤差の範囲内で封入されたトリチウム量を測定できることが分かる。即ち、トリチウムガスを封入するガラスアンプルの肉厚を10%の誤差内で規制すれば、封入されたトリチウム量を非破壊に計測できる。このことを考慮すると、Fig. 6 の結果は主として市販の各アンプル中に封入されているトリチウムガスの充填量に大きな幅が有ることによるものと考えられる。また、トリチウム取り扱い装置に、材質、厚みあるいは管径の異なる計測管を数本並列に接続すれば核融合炉トリチウムプロセッシングで問題となる圧力領域のトリチウムを in-situ かつ real-time で測定することができる。

5 結 論

大量トリチウムガスの非破壊、in-situ かつ real-time 測定方法の開発のための基礎的知見を得るために、ガラス管およびアルミニウム合金管に封入されたトリチウム量と制動 X 線の計数率との関係を調べ、次のようなことが明らかとなった。

1. 外径10mm のガラス管およびアルミニウム合金管では、160Torr 以下のトリチウム圧と計数率との間には極めて良い直線関係が有る。
2. ガラス管やアルミニウム合金管の肉厚あるいは管径を調整すれば、同一計測法で極めて広い圧力範囲のトリチウムガスを非破壊、in-situ かつ real-time で測定できる。本法は核融合実験装置やトリチウム取り扱い装置などのトリチウムプロセスに十分に適用できる。
3. 本法は、市販トリチウムアンプル類の寸法および肉厚を10%誤差以内に規格化すれば、トリチウム封入量の非破壊測定法として有用である。

文 献

- 1) T. Westermarck, L. Devell and N. A. Ghanem, Nucl. Instrum. Meth., **9**(1960) 141.
- 2) M. L. Curtis, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, **23**(1972) 17.
- 3) K. Nishizawa, Y. Endo and M. Shinagawa, J. Nucl. Sci. Technol., **14**(1977) 705.
- 4) 備後一義, 吉田真, 千田徹, 川崎克也, JAERI-M, **82-148**(1982).
- 5) B. W. Weinstein and J. T. Weir, J. Appl. Phys., **51**(1980) 5604.
- 6) T. Kishikawa, H. Baba and N. Urabe, J. Radioanal. Nucl. Chem., **85**(1984) 33.

- 7) K. Ichimura, M. Matsuyama, K. Watanabe and T. Takeuchi, Fusion Technol., **8**(1985)2407.
- 8) J. C. Rosen, G. R. Laurer and M. Eisenbud, Science, **157**(1967)77.
- 9) 「化学便覧 基礎編II」, 日本化学会編, p.1552, (1975), 丸善.
- 10) B. Rudraswamy, K. Gopala, P. Venkatarmaiah and H. Sajeeviah, J. Phys. G : Nucl. Phys., **10**(1984)1579.
- 11) G. Tanier, I. Olmez and F. Domanic, Turk. J. Nucl. Sci., **9**(1982)112.