

論文

制動X線計測によるトリチウムガスの非破壊測定 (II)

—— 制動X線の発生及び透過過程 ——

松山 政夫・中谷 秀夫*・渡辺 国昭

富山大学トリチウム科学センター

*富山大学工学部

〒930 富山市五福3190

Non-Destructive Determination of Tritium by Bremsstrahlung Counting (II)

—— Generation and Depletion Processes of Bremsstrahlung X-rays ——

Masao MATSUYAMA, Hideo NAKATANI*

and Kuniaki WATANABE

Tritium Research Center, Toyama University

*Faculty of Engineering, Toyama University

Gofuku 3190, Toyama 930, Japan

(Received December 24, 1988)

Abstract

To apply the bremsstrahlung counting method to in-situ and real-time measurements of tritium pressure in the fuel processes of thermonuclear fusion devices as well as conventional tritium handling systems of tritium research laboratories, we studied theoretically the processes of generation of bremsstrahlung X-rays and its depletion in materials.

The spectra of bremsstrahlung X-rays generated by tritium β -rays at the inner surface of measuring tube were calculated with the β -spectrum and Wyard formula. The bremsstrahlung spectra at the outer surface of the measuring tube made of Pyrex glass were calculated using the mass absorption coefficient for the glass and calculated bremsstrahlung intensity at the inner surface. The calculated bremsstrahlung spectra agreed quite well with the observed ones. In addition, the present analysis showed that

the ratio of bremsstrahlung intensity for glass to that for aluminum alloy was 7.5. This value was in good agreement with the observed ratio(8.2).

The changes in the bremsstrahlung intensity with thickness of glass were also evaluated. It was found that the bremsstrahlung intensity decreases with thickness in a convex manner. This convex curve could be approximated to -2.38 power of the thickness in the range from 0.5 ~ 2.0 mm. This thickness dependence agreed well with the experimental results.

It was concluded that the present method is quite valuable to predict the bremsstrahlung spectra owing to the deceleration of β -rays in material. It was also revealed that the measuring tube of double-layered structure constructed with different atomic number materials is useful because a large increase in sensitivity can be expected with this device.

1. 緒言

大量のトリチウムを燃料として用いるD-T核融合反応実験装置ではもとより、小規模なトリチウム取扱装置でも、トリチウム量の非破壊かつin-situ測定が必要不可欠である。従って、このような要求に適合する測定法の開発は核融合炉の研究・開発の重要な課題の一つとなっている。このような観点から、著者らはこれまで制動X線計測法の適用性を検討し、この計測法が非破壊かつin-situ測定と言う要求を満たし、核融合炉でのトリチウム計測器の有用な候補の一つになりうると結論した¹⁻²⁾。

しかしながら、本計測法を実際のトリチウム濃度の測定に適用するためには、制動X線計数率に対する計測管の材料や厚みなどの基本的な要素の影響を詳細に検討し、最も有効かつ実用的な計測管を設計する必要がある。そこで、計測管材料表面層での β 粒子の制動X線への転換過程および発生した制動X線の透過過程を理論的に解析し、計測管材料(パイレックスガラス及びアルミニウム合金)の差異及び肉厚による実測された計数値の変化の原因を検討した。本報ではこれらの検討によって得られた新しい知見とともに、制動X線計測法の有効性について述べる。

2. 結果及び考察

2-1. 制動X線への転換過程

β 粒子と物質との相互作用により、 β 粒子の運動エネルギーの一部は電磁放射線に変換され、制動X線として外部に放出される。この際、制動X線へ転換される運動エネルギーの割合は、物質を構成する原子の原子番号にほぼ比例する³⁾。単一エネルギーの電子線と物質

との相互作用によって発生する制動X線は連続スペクトルとなり、エネルギー k の制動X線の強度 (I_k) は、次式のように近似できる⁴⁾。この式では発生する制動X線の相対的な強度分布は物質によらないとしている。更に、本式は β 粒子を放出する放射性同位元素にも適用できることが確認されている。

$$I_k = E_e(k) \{4(1 - E_k/E_e(k)) - 3(E_k/E_e(k)) \ln(E_e(k)/E_k)\} \quad (1)$$

ここで、 $E_e(k)$ は電子の運動エネルギー、 E_k は発生する制動X線のエネルギーを表す。

(1)式をトリチウムの β 線に適用して、 I_k を得るためには、トリチウムからの β 粒子のエネルギー分布関数が必要になる。エネルギー分布における $E_e(\text{tot})$ と $E_e(\text{tot}) + dE$ との間にある β 粒子の割合は次式で表されることが Souers⁵⁾ によって報告されている。

$$N(E) dE \sim A \cdot P_e(\text{tot}) \cdot E_e(\text{tot}) \cdot P_\nu \cdot E_\nu dE \quad (2)$$

ここで、 $N(E)$ はエネルギー分布関数、 A は定数、 $P_e(\text{tot})$ 及び $E_e(\text{tot})$ はそれぞれ β 粒子の全運動量及び全エネルギー、また P_ν 及び E_ν はニュートリノの運動量及びエネルギーを表す。また、 $P_e(\text{tot})$ 及び P_ν は、粒子の運動量と運動エネルギーの関係より次のように書き表すことができる (付録参照)。

$$P_e(\text{tot}) = \{[E_e(k)]^2 + 2E_e(k) \cdot m_e C^2\}^{1/2} / C \quad (3)$$

$$P_\nu \simeq E_\nu / C = [E_e(\text{max}) - E_e(k)] / C \quad (4)$$

ここで、 C は光速、 $E_e(\text{max})$ は β 粒子の最大エネルギー、 m_e は電子の静止質量を表す。尚、(4)式を導入する際には、ニュートリノの静止質量 (m_ν) がきわめて小さい ($m_\nu \sim 40 \text{ eV}$)⁶⁾ ので、 $E_\nu \gg m_\nu C^2$ とした。次に、(2)式と(4)式より、 $N(E)$ は次式のように表すことができる。

$$N(E) \simeq \{y / [1 - \exp(-y)]\} \cdot P_e(\text{tot}) \cdot E_e(\text{tot}) \cdot [E_e(\text{max}) - E_e(k)]^2 \quad (5)$$

$$y = (4\pi/137C) \cdot [E_e(\text{tot}) / P_e(\text{tot})] \quad (6)$$

Fig. 1の (A) は、これらの式から求められた β 粒子のエネルギー分布 (スペクトル) を示す。なお、図中の白丸はSouers⁵⁾によって報告された値の一部である。計算値と実測値は非常に良く一致した。

(1)式は単一エネルギーの電子線による制動X線のエネルギー分布であり、連続スペクトルであるトリチウムからの β 粒子による制動X線スペクトルを求めるためには、先に述べたように β 粒子のエネルギー分布を考慮する必要がある。Fig. 1の (A) に示された β 粒子のエネルギー分布を考慮して計算された制動X線スペクトルの一例をFig. 1の (B) に示す。図より明らかなように、制動X線スペクトルは元の β 粒子のスペクトルのような最大値を持つピークとは成らず、制動X線の強度がエネルギーの増大とともに急速に減少する連続ス

ベクトルとなった。このようにして計測管の内表面層で発生した制動X線は、一定の厚みを有する計測管(例えば、ガラスまたはアルミニウム合金製)を透過し、放射線検出器に入射する。

2-2. 制動X線の透過過程

トリチウムから放出された β 粒子と物質との相互作用によって発生する制動X線のエネルギーは18.6keV以下である。このために、発生した制動X線(電磁波)は計測管材料を透過する際に、主として光電効果による吸収によって減衰する。減衰割合を求めるには、吸収の度合いが電磁波のエネルギーによって異なるために、18.6keV以下のエネルギー領域における電磁波の吸収係数のエネルギー依存性を知る必要がある。制動X線の測定に用いた計測管材料のピアレックスガラスは SiO_2 及び B_2O_3 を主成分とする酸化物の複合体である。単一酸化物よりなる材料に対する電磁波の吸収係数は、Sunら⁷⁾によれば次式で表される。

$$\mu(M_m O_n) = f_M \mu_M + f_O \mu_O \quad (7)$$

ここで、 $\mu(M_m O_n)$ は酸化物の吸収係数、 μ_M 及び μ_O は金属及び酸素の吸収係数を表し、種々のエネルギーの電磁波に対する μ_M 及び μ_O の値は文献値を用いた⁸⁾。 f_M および f_O は次式で示すような重量分率を表す。

$$f_M = mW_M / W(M_m O_n) \quad (8)$$

$$f_O = nW_O / W(M_m O_n) \quad (9)$$

なお、 $W(M_m O_n)$ は酸化物の重量、 W_M お

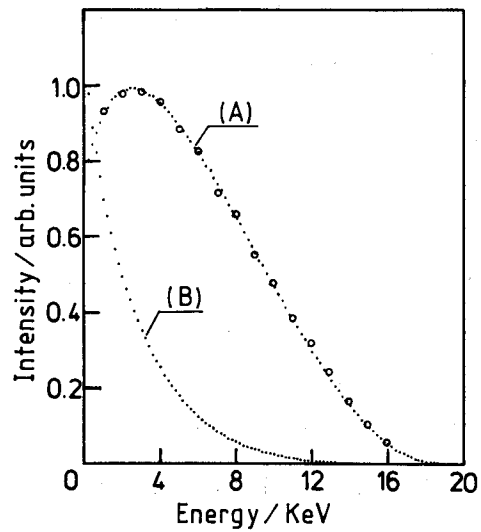


Fig. 1. Calculated spectra of beta-particle emitted from tritium (A) and of bremsstrahlung X-rays (B). The open circle is the observed value(Ref. 5).

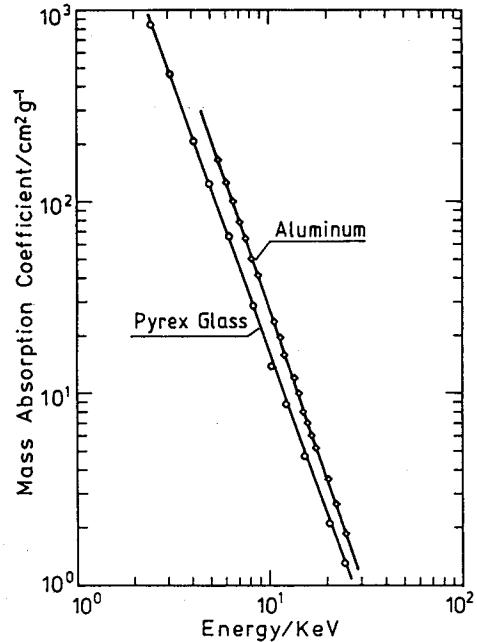


Fig. 2. Energy dependence of the mass absorption coefficients for Pyrex glass and aluminum.

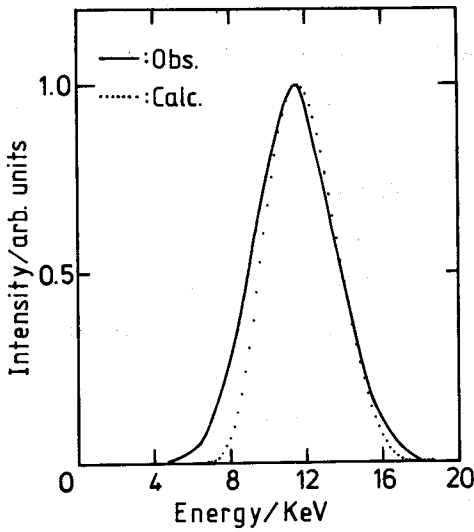


Fig. 3. Bremsstrahlung spectra from Pyrex glass tubes bombarded with beta-particles from tritium.

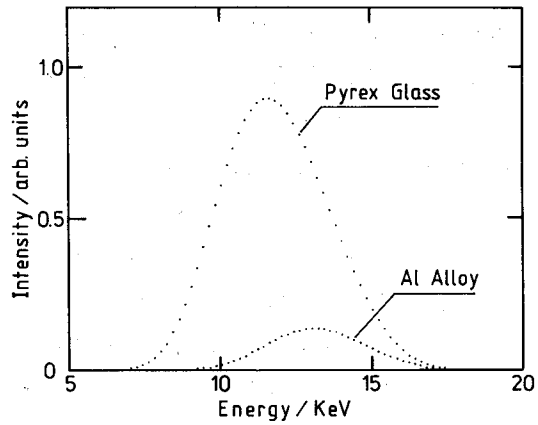


Fig. 4. Comparison of bremsstrahlung spectra emitted from the outer surface of the measuring tubes consisting of Pyrex glass and aluminum.

よび W_o は酸化物中の金属及び酸素の重量をそれぞれ表す。

また、複合酸化物からなるガラスに対する吸収係数は

$$\mu(\text{glass}) = \sum [f_i (M_m O_n) \cdot \mu_i (M_m O_n)] \quad (10)$$

と表される。ここで $f_i (M_m O_n)$ は酸化物 i の重量分率である。

(10式に基づいて、パイレックスガラスに対する吸収係数のエネルギー(E)依存性を求めた結果をFig. 2に示す。なお、アルミニウム合金に対する吸収係数は、この合金中のアルミニウムの割合が99.5%以上であったので、Fig. 2にはアルミニウム金属に対する吸収係数のエネルギー依存性を示した。Fig. 2より、各々の材料に対する吸収係数のエネルギー依存性は次式で表されることが知られた。

$$\mu(\text{glass}) = 1.13 \times 10^4 E^{-2.839} \text{ [cm}^2/\text{g}] \quad (11)$$

$$\mu(\text{Al}) = 2.31 \times 10^4 E^{-2.935} \text{ [cm}^2/\text{g}] \quad (12)$$

電磁波の減衰は、一般に次式のような指数関数に従う。

$$I(E) = I_o(E) \exp(-\mu d) \quad (13)$$

ここで $I(E)$ は計測管の外表面での強度、 $I_o(E)$ は計測管の内表面での強度、 d は計測管の厚みを表す。Fig. 1に示した制動X線がパイレックスガラス中を透過してくる量は、(13)式の $I_o(E)$ に先に求めた制動X線スペクトルの強度分布および μ に(11)式を代入して求められる。但し、このような計算から求めた制動X線スペクトルとNaIの井戸型シンチレーションカウ

ンターで測定されたスペクトルとを比較するためには、ガラス中での減衰に加えてNaIの保護膜として用いられているアルミニウム(0.5mm厚)中での減衰も考慮する必要がある。アルミニウム中での減衰は、(12)と(13)式を用いて計算した。この様にして求められた制動X線スペクトルがFig. 3の黒丸印である。なお、本計算に際してパイレックスガラスの厚みは1.0mm, またガラスの密度は2.23 g/cm³とした。同図の実線はNaIの井戸型シンチレーションカウンターで測定された制動X線スペクトルである¹⁾。計算によって得られたスペクトルの最大値は11.6keV, 半値幅は4.4keVである。他方、実測スペクトルの最大値は11.2keVで半値幅は4.8keVであった。スペクトルの低エネルギー領域で僅かに不一致がみられるが、これは制動X線の発生過程の近似に原因があると考えられる。以上より(11)式の吸収係数を用いて制動X線の透過過程における減衰割合を求め、制動X線スペクトルをほぼ再現できることが知られた。

次に、アルミニウム合金製計測管での制動X線スペクトルを得るために先と同様の計算を(12)及び(13)式を用いて計算した結果がFig. 4である。なお、アルミニウム合金製計測管の肉厚は1.0mmである。また、比較のために(11)式によるパイレックスガラスに対する計算結果も示してある。図より明らかなように、アルミニウム合金を透過した制動X線スペクトルの最大値はパイレックスガラスの場合よりも高エネルギー側に移動し、面積は1/7.5に減少している。先に述べたように、制動X線への転換効率は計測管材料の表面層(1~2 μm)を構成する原子の原子番号に依存する。本実験の場合、2種類の材料の原子番号の差が小さいとすると、両計測管の内表面層で発生する制動X線の強度分布は同じとすることができ、Fig. 4における面積比は実測されたパイレックスガラスとアルミニウム合金での制動X線の計数率(N)の比に対応することになる。実測の計数率の比は、 $N_{Al}/N_{glass} = 1/8.2$ であり¹⁾、本計算結果よりも約10%小さいが、制動X線強度の計算過程における近似を考慮すれば両者の比は誤差範囲内で一致していると考えられる。これらの結果より、本実験で用いた以外の計測管材料でもその材料の吸収係数が明かになれば、制動X線スペクトルの再現が可能であると言える。

2-3. 制動X線の透過に及ぼす計測管材料の厚みの影響

Fig. 5は、計測管の肉厚を変化させた場合の計数率変化を調べるために、肉厚の異なるパイレックスガラス製計測管に同量のトリチウムガスを封入して計数率の測定を行った結

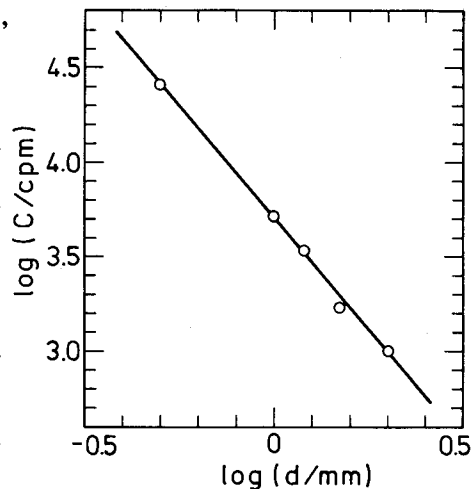


Fig. 5. Correlation between the thickness of Pyrex glass and the counting rate of bremsstrahlung X-rays.

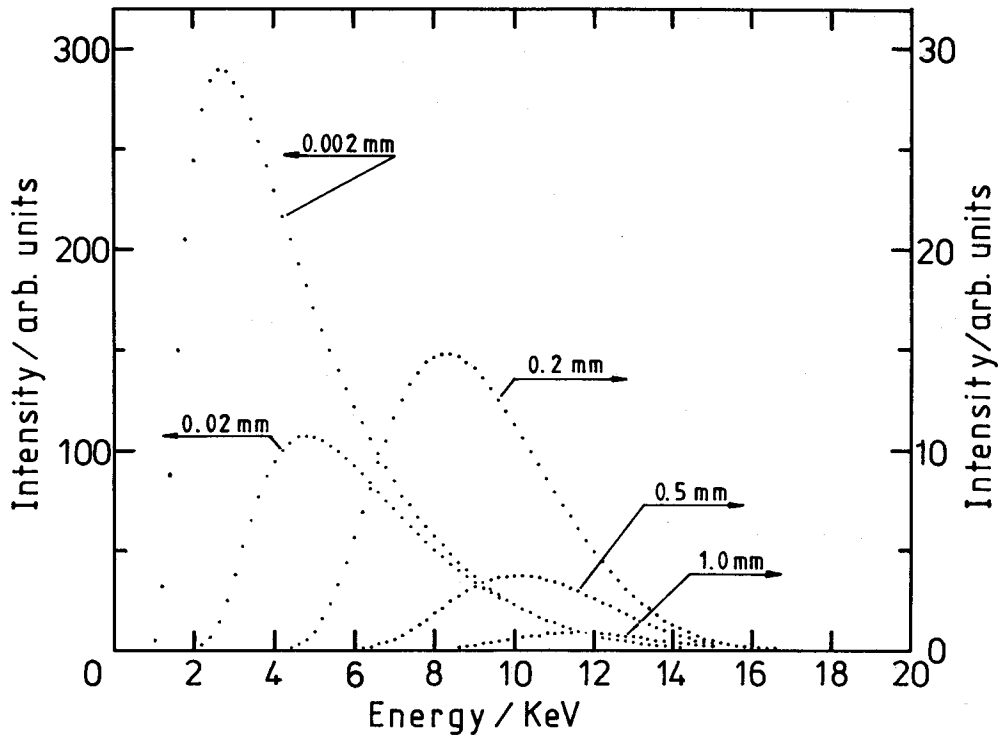


Fig. 6. Thickness dependence of the intensity of bremsstrahlung X-rays for glass.

果である。この際、計測管の肉厚は0.5～2.0mmの範囲で変化させた¹⁾。図より、計数率は計測管の肉厚の-2.38乗に比例することが知られた。

Fig. 6は、(1)及び(13)式を用いて、種々の肉厚の計測管に対する制動X線スペクトルを計算

した結果の一例である。厚みの増大と共に制動X線スペクトルの最大値は高エネルギー側に移動し、そのスペクトルの面積は急激に減

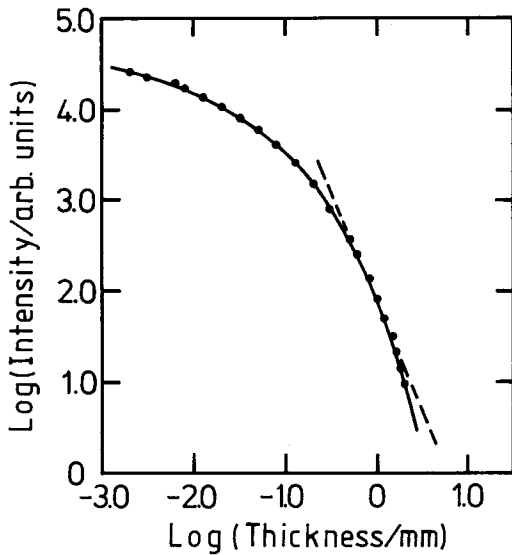


Fig. 7. Change in bremsstrahlung intensity with the thickness of glass.

Table 1. Change in bremsstrahlung intensity with thickness of Pyrex glass.

| Thickness(mm) | Relative Intensity |
|---------------|--------------------|
| 0 | 687 |
| 0.002 | 319 |
| 0.02 | 132 |
| 0.2 | 18.7 |
| 0.5 | 4.50 |
| 1.0 | 1.00 |

少した。これは、(11)式の吸収係数のエネルギー依存性から明らかなように、エネルギーの低い制動X線ほど厚みの増大とともに吸収される割合が大きくなるためである。計算された制動X線の相対強度比(スペクトルの面積比)をTable 1に示す。なお、表中の厚みが0というのは、制動X線の発生は起こるが、吸収層が無いという仮想的状態での制動X線強度を表す。このような厚みの変化にともなうトリチウムからの制動X線スペクトルの変化は、トリチウム水を用いた場合であるが、Rosenら⁹⁾によっても同じように観測されている。

Fig. 7は計測管の肉厚に対して制動X線強度の計算値を両対数でプロットしたものである。図中の破線はFig. 5で得られた直線である。制動X線強度の変化は肉厚に対して凸の曲線となったが、計測管の肉厚が1.0mm付近では、Fig. 5に示したように制動X線強度変化を肉厚の-2.38乗で近似できることが知られた。

2-4. 制動X線への転換効率

先に報告したように、 $1.46\text{Ci}(=3.2\times 10^{12}\text{dpm})$ のトリチウムガスを封入した肉厚1.0mmのパイレックスガラス製計測管で $2.60\times 10^4\text{cpm}$ の制動X線計数率を得た²⁾。この際に検出器として用いた比例計数管の検出効率は33%であった。即ち、ガラスを透過した制動X線は $7.88\times 10^4\text{dpm}$ となる。次に、この計測管を透過する際の制動X線の減衰割合は、Table 1に示したように $1/687$ である。従って、計測管の内表面層における制動X線の発生量は、 $7.88\times 10^4\times 687=5.4\times 10^7\text{dpm}$ となる。一方、計測管内で発生する β 粒子の数は $3.2\times 10^{12}\text{dpm}$ である。従って、発生した β 粒子の全てが制動X線の発生に関与したとすると、制動X線への転換効率は、

$$5.4\times 10^7/3.2\times 10^{12}=1.7\times 10^{-5} \text{ [photons}/\beta\text{-particle}]$$

となる。Souersら¹⁰⁾は、一定量のトリチウムガス(D:T=1.07:1.02)を封入した肉厚 $1\mu\text{m}$ のガラス小球(直径: $43.5\mu\text{m}$)内で発生したX線強度を半導体検出器及び比例計数管を用いて測定した結果、全X線強度のうち53%がガラス成分の特性X線に、47%が制動X線によるもので、全X線強度と β 粒子数との比は 3.5×10^{-5} であることを報告している。この結果より、制動X線への転換効率は 1.4×10^{-5} [photons/ β -particle]となる。Souersらによるこの転換効率の値は先の計算結果ときわめて良く一致しており、本計算法の妥当性を示している。以上のことより、制動X線スペクトルの相対強度は、Wyardの単一エネルギーの電子線での制動X線発生強度に対する近似式と吸収係数からほぼ再現できると結論される。

最適条件の計測管を設計するためには、上記以外の様々な材料における制動X線の絶対強度を得るための理論的な解析を行う必要がある。但し、これまでの解析結果によれば計測管の内表面は原子番号の大きな材料でかつ薄くし、外側は原子番号の小さな材料という2層構造が適当であると考えられる。例えば、厚み1mmのベリリウム製計測管の内面に金

制動X線の発生及び透過過程

を数 μm 蒸着したような計測管が考えられる。金表面での制動X線の発生確率はアルミニウムに比べ約10倍大きい⁵⁾。更に、Fig. 4に示したのと同様の計算をベリリウムについて行ったところ、ベリリウム製計測管から放出される制動X線の強度はアルミニウム合金製計測管の場合の約700倍となった。即ち、この様な2層構造の計測管を用いれば、アルミニウム合金製計測管における制動X線強度の7000倍にすることも可能となる。このことは測定可能となるトリチウム濃度範囲を大きく拡大し、更にin-situかつreal-time測定に対しても有利となる。また、このような材料であれば核融合反応実験装置の燃料プロセスに適用してもトリチウムの吸着及び透過などの問題も十分に避けられるであろう。

3. ま と め

大量かつ高濃度のトリチウムガスの非破壊、in-situかつreal-time測定が可能な制動X線計測法における制動X線の発生過程及び計測管材料の透過過程を理論的に検討した結果、制動X線計数率に対する計測管材料の差異や材料の厚みの影響などに関して以下のことが明かとなった。

- (1) β 粒子と物質との相互作用によって発生する制動X線の強度分布は、Wyrdの近似式をトリチウムに適用して求めることが可能である。
- (2) 実測の制動X線スペクトルと計算によって得たスペクトルとがほぼ一致したことより、計算から求めたパイレックスガラスに対する種々のエネルギーの電磁波の吸収係数が妥当なものであると結論できる。他の材料に対する吸収係数も同様に計算可能である。このことは2種類の計測管材料での計数率の比が実測値と計算値でほぼ一致したことからも支持された。
- (3) 制動X線計数率に対する計測管材料の肉厚依存性は、肉厚が1.0mm付近で肉厚の -2.38 乗に従うことが計算結果からも示された。
- (4) パイレックスガラスの表面層における β 粒子の制動X線への転換効率は、 1.7×10^{-5} [photons/ β -particle] であることが知られた。
- (5) 大きな制動X線計数率を得るための計測管としては、計測管の内表面は原子番号の大きな材料でかつ薄くし、外側は原子番号の小さな材料という2層構造が適当であると考えられる。

(付 録)

β 粒子の運動量を表す(3)式は次のようにして得られる。 β 粒子の静止質量 m_e と速度 v で運動している β 粒子の質量 m との間には次のような関係がある。

$$m_e = m(1 - \alpha^2)^{1/2} \quad (14)$$

$$\alpha = v/C \quad (15)$$

一方、 β 粒子の運動量 P_e 及び運動エネルギー $E_e(k)$ はそれぞれ次のように表される。

$$P_e = mv = m_e C \alpha / (1 - \alpha^2)^{1/2} \quad (16)$$

$$E_e(k) = mC^2 - m_e C^2 = m_e C^2 [1 / (1 - \alpha^2)^{1/2} - 1] \quad (17)$$

(16)および(17)式より、 α を消去して整理すると、運動量は

$$P_e = \{ [E_e(k)]^2 + 2E_e(k) \cdot m_e C^2 \}^{1/2} / C \quad (18)$$

となる。

文 献

- 1) 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研究報告, **6** (1986)47.
- 2) M. Matsuyama, H. Nakatani, and K. Watanabe, Fusion Engineering and Design, in press.
- 3) A. H. Compton and S. K. Allison, "X-Rays in Theory and Experiment", **2nd ed.** (D. Van Nostrand, Princeton, 1935), p.90.
- 4) S. J. Wyard, Proc. Phys. Soc., **A 65**(1952)377.
- 5) P. C. Souers, "Hydrogen Properties for Fusion Energy", (University of California Press, Los Angeles, 1986), p.205.
- 6) P. H. Frampton and P. Vogel, Physics Reports, **82**(1982)33.
- 7) L. L. Sun and K-H. Sun, Glass Industry, **29**(1948)686.
- 8) 日本化学会編「化学便覧-基礎編II」, (丸善, 1975), p.1556.
- 9) J. C. Rosen, G. R. Laurer and M. Eisenbud, Science, **157**(1967)77.
- 10) P. C. Souers, R. T. Tsugawa and R. R. Stone, Rev. Sci. Instrum., **46**(1975)682.