技術論文

コールドトラップとガラスシンチレーターフローセルを用いた
トリチウム水蒸気モニターの試作と性能試験齊 藤 眞 弘^{*1}(1991年8月5日受理)
(1992年3月30日再受理)Development and Performance of a HTO-in-Air Monitor Using a Cold
Trap and a Flow Cell Filled with Glass Scintillator PowderMasahiro SAITO^{*1}

An improved type of HTO-in-air monitor was developed. The HTO contained in the air was condensed to liquid water using a cold trap. The tritium activity in the trapped water was measured using a flow cell filled with glass scintillator powder. This monitor made it possible to measure the airborne HTO concentration with a detection limit of 1.4×10^{-4} Bq/cm³ under a representative atmospheric condition, 22°C in temperature and 55% in relative humidity. This system is now in use to observe the HTO level of the exhaust gas released from the reactor containment building of the research reactor of Kyoto University.

KEY WORDS : tritium, air, monitor, exhaust gas glass scintillator, cold trap

I はじめに

原子力施設はさまざまなトリチウム発生源をもっている¹⁾。水減速型の原子炉では、1) 燃料の三体核分裂、2) 制御棒の構成材料として含まれるホウ素の中性子放射化、あるいは3) 初期炉心中性子吸収剤 (burnable poison) や冷却水に含まれるホウ素、リチウム、重水素の中性子放射化等により生成される。また、核燃料再処理施設では燃料再処理の過程でトリチウムが大量に発生する。これらのトリチウムの一部は施設内の作業環境中に放出され、一部は施設建屋の排気設備を経て施設外の一般環境に放出される。

環境中に放出されたトリチウムは通常空気中で、主と

して HT または HTO の化学形で存在し、CH₃T などが微量成分として存在する^{2~4)}。環境に放出された HT の一部は、酸化反応、光化学反応、置換反応、表層土壌中の嫌気性細菌の生化学反応などにより HTO に転換される^{2,3)}。地球大気中に HTO と HT は、ほぼ同量存在するが³⁾、環境中に放出された HT が、酸化反応、光化学反応、置換反応により転換して生じた HTO の量は無視できる程度である^{5~7)}。生物による転換は、HT が地面と接触する場合には、HTO 源として考慮すべき対象となる²⁾。

原子力施設や放射線施設では、作業者の安全確保と環境への放出状況監視のため、作業環境中あるいは施設の排気口での空気中トリチウム濃度を把握することが必要で、種々のモニタリング法が開発されている^{8~11)}。

わが国の放射線障害防止関係法令上で定められている排気中のトリチウムの濃度限度は HT にくらべて約 4 桁 HTO のほうが厳しく 8 時間平均で 5×10^{-3} Bq/cm³ で

^{*1} 京都大学原子炉実験所；大阪府泉南郡熊取町野田
(〒590-04)

Research Reactor Institute, Kyoto University;
Noda, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-04,
Japan.

ある。このため、空气中トリチウムモニターとしては、この濃度よりもより低い検出限界をもつことが要求される。京都大学原子炉実験所（以下京大炉と略する）では、臨界集合体棟排気監視のために、連続通気型電離箱トリチウムモニター（アロカ社製 RIC-506 型、検出器有効体積 $1.4 \times 10^4 \text{ cm}^3$ ）を、室内トリチウムモニターとして γ 線補償通気型電離箱（アロカ社製 MGR-110 型）を使用しているが、これらのモニターの検出限界は、それぞれ $2.7 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$ および $1.9 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$ である。しかし、この検出限界に近い濃度のトリチウムの長期にわたる漏洩の可能性のある場合や、低濃度のトリチウム漏洩を早期に検出して安全上の予防対策を急ぐ必要がある場合等には、より高感度な方法で空气中トリチウム濃度を測定し、トリチウム動態の把握を行うことが必要である。京大炉には付帯設備として実験用トリチウムターゲットを用い中性子を発生するためのファンデグラフ型加速器が設置されており、このトリチウムターゲットからの漏洩トリチウムを監視する必要がある。さらに、炉本体には重水タンクが設けられており、重水中に生成されるトリチウムの漏洩状態を常時監視する必要がある。これらのトリチウムの化学形は主として HTO である。そこでわれわれは、HTO を監視の対象として、要求されるレベルの検出限界をもち、かつ排気中濃度を 8 時間平均値として自動的に監視できるモニターの製作を試みた。

空气中のトリチウム水蒸気を連続的に測定するおもな方法は二つある。

第 1 の方法は、連続通気型の電離箱^{11,12)}またはプロポーションナルカウンターを用いる方法である¹³⁻¹⁵⁾。現在市販されている連続通気型トリチウムモニターで実用検出限界が最も高感度のものはプロポーションナルカウンター方式のものでその実用検出限界は $5 \times 10^{-4} \text{ Bq/cm}^3$ （1 分測定で）の程度であるが、計数ガスを使用するため維持費が高くつく難点がある。また、可燃性のガスを長期にわたって、大量に連続使用するので安全性の問題もある。一方、通気型電離箱方式のものの実用検出限界は通常型で $1 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$ の程度、膜分離式のもの（アロカ社製、 N_2 ガス循環式）で $3.7 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ である。線源変調法電離箱方式¹⁶⁻¹⁹⁾のものはこれよりも高感度でその実用検出限界は $1 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ の程度であり上記の目的に十分供しうが、市販されていない。第 2 の方法は、空气中水蒸気を液相状態の水として捕集した後、含まれるトリチウムを測定する方法で²⁰⁻²⁷⁾、上記の方式よりも高い検出感度で測定することができる。水蒸気を捕集する方法としては、ア) コールドトラップで空

気中水分を捕集する方法^{20,25,26)}、イ) シリカゲルやモレキュラーシーブなどの水分吸収剤をもちいて空气中的 HTO を捕集する方法^{21,22,23)}、あるいは、ウ) 水バブラーを用いてトラップする方法^{22,24)}などがある。

上記の水蒸気捕集法を自動化したトリチウム水蒸気モニターとして、固体シンチレーター（アントラセン結晶やプラスチックシンチレータースポンジ）を充填したフローセルで捕集水中のトリチウムを測定する方式が報告されている^{25,27)}。今回、試作したトリチウム水蒸気モニターは基本的にはこの方式によったものであるが、イ) 冬場の乾燥期の水蒸気捕集能率をあげるために氷結トラップを用いる、ロ) 固体シンチレーターとして化学的に耐久性があり、洗浄の容易なガラスシンチレーターを用いる、ハ) 捕集水中のトリチウム濃度と試料空气中の温湿度をともに測定しマイクロコンピュータにより空气中濃度をオンラインで評価する、等の改良を加えた。本装置の概要とその性能試験の結果について紹介する。

II 装置の原理と構成

空气中トリチウム濃度 $C(\text{Bq/cm}^3)$ は、空気温度 $t^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $H\%$ のときの、空気 1 cm^3 に含まれる水分量を $\eta(t, H)(\text{g/cm}^3)$ 、空气中トリチウム水蒸気の比放射能を $A(\text{Bq/g})$ としたとき次式で表される。

$$C = \eta(t, H) A \quad (1)$$

η の値は t, H の値がわかれば、温度 t での飽和水蒸気圧 ($P_s \text{ mmHg}$ とする) の値²⁸⁾をもとに以下のように求めることができる。 $t^\circ\text{C}$ の空気 1 m^3 の標準状態での容積は $273/(273+t) (\text{m}^3)$ 、水蒸気 1 モルの標準状態での容積は 0.0224 m^3 、水の分子量は 18 であるから、

$$\eta(t, H) = (273/(273+t)) \times (1/0.0224) \times (P_s/760) \times (1/18) \times (H/100) (\text{g/m}^3)$$

整理して単位を g/cm^3 に変更すると、

$$\eta(t, H) = 2.88 \times 10^{-6} \times H \times (P_s/(273+t)) \quad (2)$$

したがって、 t, H, A を実測すれば (1) 式および (2) 式を用いて C の値を決定することができる。

空气中トリチウム水蒸気の捕集は、小型冷凍機を利用したコールドトラップを使用して行った。捕集時間は 8 時間で、捕集時間終了後 1 時間コールドトラップの運転を停止することによって氷結水を解凍し捕集水を得た。

捕集水中のトリチウム濃度は、捕集水を液体クロマトグラフ用の送液ポンプを用いてガラスシンチレーターを充填したフローセルに導きトリチウムベータ線によるシンチレーションパルスで光電子増倍管で検出することにより測定した。この方法は、試料水に液体シンチレーターを混合して測定する方法に比べて、1) 検出感度が低

Fig. 1 Schematic diagram of the apparatus for the monitoring of air HTO concentration.

く、また2) 高濃度のトリチウム水を測定した場合の残留トリチウムによるバックグラウンドの上昇(メモリー効果)を防ぐために測定後シンチレーター表面を洗浄する必要がある、等の短所があるが、一方では有機廃液の発生がなく装置の保守が容易であり、維持費も少なくて済む利点がある。

装置全体の構成概略を Fig. 1 に示す。本モニターは、排気口の HTO 監視を主目的として以下の条件を満たすように設計された。

1) 1日2回空気中の水蒸気を捕集しその比放射能を測定する。捕集時間はそれぞれ8時間とし、この時間の平均トリチウム水蒸気濃度を知る。

2) 空気中のトリチウム水蒸気についての検出限界が $5 \times 10^{-4} \text{ Bq/cm}^3$ 以下であること。

3) 日常管理に供するために、少なくとも1カ月間はメンテナンスフリーで運転できること。

本モニターは、水蒸気捕集装置、トリチウム水濃度測

定装置、測定データ記録部からなる。水蒸気の捕集開始および終了、濃度測定装置への送液、トリチウム濃度の測定および結果の出力は12時間サイクルで自動的に行われる。システム動作のシーケンス制御はマイクロマット(林栄精器株式会社製 NE4100B12型)を用いて行われる。

水蒸気捕集装置での空気サンプリング流量は最大 60 l (空気)/min (無負荷時)である。水蒸気トラップは投込みクーラー(東京理化器械株式会社製 EC50型)の冷却部にガラス製のトラップ(東京理化器械株式会社製 ET1000型)を設けたものである。試料空気の水蒸気濃度を自動的に記録するために、ダクト型温湿度センサー(神栄株式会社製、温湿度変換器 THT-A型、温湿度計 THP-15型を組み合わせる)が空気取入れ口に設けられている。温湿度信号は記録計にて連続的に記録するとともに A/D コンバーターをへて、マイクロコンピュータ(NEC PC-9801VX)に送られる。

Fig. 2 Relationship between the HTO concentration in trapped water and the β ray count rate obtained from the flow cell filled with glass scintillator powder.

トリチウム水濃度は高速液体クロマトグラフィー用に作られたアロカ社製ラジオアナライザー (RLC-701 型) を本装置用に改造したもので測定される。試料水は液体クロマトグラフ用のポンプ (イワキ電磁定量ポンプ EX 型) を用いてガラスシンチレータ ($\text{Y}_2\text{SiO}_5(\text{Ce})$ 粉末, 平均粒径 $5\mu\text{m}$) を充填した円筒形のフローセル (FS-701-200 型, $2\text{mm}\phi \times 64\text{mm}$) に導かれ, トリチウムからの β 線によるシンチレーションパルスが計数される。また, 試料水は, フローセルの目詰りを防止するためにアンバーライトを充填したプレカラム (島津オシネ型内径 4.6mm) をいったん通す。プレカラムの寿命を延ばすために, 試料水の送液量は通常 1.0ml/min とするが, カラムやフローセルを洗浄するときなど状況に応じて 10ml/min まで流量を増やす。流量調節は送液ポンプに付属している流量調節ボリュームを用いて行う。フローセルを用いて得られた計数値および温湿度のデータはマイクロコンピュータにより処理され, 空気中 HTO 濃度が評価される。

Ⅲ 性能試験

1. 較 正

トリチウム測定用のバックグラウンド水としては, 京大浜の水道水 (井戸水: トリチウム濃度 $(4.1 \pm 0.5) \times 10^{-4}\text{Bq/ml}$, 日本分析センターによる測定) から得た 2 回蒸留水, 較正用トリチウム水としては, 施設内空気か

ら捕集回収して得たトリチウム水をこの蒸留水で希釈したものを用いた。較正用トリチウム水中のトリチウム濃度はアロカ社の液体シンチレーションカウンター (モデル LSC-3500) を用いて測定した。

② 感度較正は, 水蒸気捕集装置の捕集水貯留部に既知濃度 ($10 \sim 80\text{Bq/ml}$) のトリチウム水 50ml を注入した後, 送液ポンプとトリチウム濃度測定装置を作動させて行った。測定は各条件下で, 計数値が飽和に達するのを待って, 10 分測定を 5 回繰り返し, 計数値の平均値を求めた。較正実験の結果を Fig. 2 に示す。捕集水中のトリチウム濃度から空気中濃度への換算は (1) 式を用いて行う。この較正直線から, 最小二乗法を用いて cps からトリチウム濃度への換算係数 A は

$$A = 83.3\text{Bq/ml/cps}$$

と求められる。

本装置による空気中トリチウム水蒸気濃度の検出限界は CURIE による検出限界の定義にしたがって評価した²⁰⁾ (付録)。 10 分測定の場合, 気温 22°C , 相対湿度 55% の規定状態での検出限界は, $1.4 \times 10^{-4}(\text{Bq/cm}^3)$ となる。また, 排気口の温湿度の変化域を $20 \sim 25^\circ\text{C}$, 相対湿度 $30 \sim 70\%$ とすれば, 空気に含まれる凝集水量は $5.1 \times 10^{-6} \sim 1.6 \times 10^{-5}(\text{g/cm}^3)$ の範囲にある。これらに対応する検出限界は $6.8 \times 10^{-5} \sim 2.1 \times 10^{-4}(\text{Bq/cm}^3)$ の範囲となり, 最初に設定した検出限界の条件 ($< 5 \times 10^{-4}\text{Bq/cm}^3$) を満たしている。

2. メモリー効果

固体シンチレーターをトリチウム検出器として用いたとき, データの再現性の点で問題になるのはトリチウム水がシンチレーター表面に吸着することによるバックグラウンド計数の上昇, すなわちメモリー効果をいかに少なくするかということである。ガラスシンチレーターを使う限りメモリー効果を完全に無にすることはむずかしいが, 捕集した試料水によるセルの予備洗浄を十分行えば, 実用上問題のない程度にまでメモリー効果を少なくできることがわかった。Fig. 3 に一定濃度のトリチウム水 (413Bq/ml) をフローセルに流した後, バックグラウンド水を流してメモリー効果の程度を調べた結果を示す。図からわかるようにフローセルまでのデッドボリュームは約 4ml あるがこの約 4 倍 (16ml) の洗浄水を流すことによってフローセルに残存するトリチウムはバックグラウンドに比べて無視できる程度となる。このため, 捕集水自身による予備洗浄をおこなうために, 捕集水の捕集量を少なくとも 20ml 以上になるようにポンプの作動時間を調整した。本装置の場合 1 サイクルの捕集で得られる捕集水量はもっとも条件の悪い冬場において

Fig. 3 The response of the tritium detection system using a flow cell filled with glass scintillator powder. Initially, HTO water was filled in the sample reservoir and sent to the flow cell. The arrow indicates the point where the HTO water was replaced to the background water.

も 50 ml 以上あるので、このような予備洗浄はつねに可能である。

3. 外部放射線の影響

外部放射線量の変動が計測値に及ぼす影響を知るために、 ^{137}Cs 線源 (187 MBq) を検出部から 2~10 m の距離に置くことにより外部線量を変化させ計数率の増加分を記録した。同時に検出部から線源方向に垂直に約 10 cm 離れた位置にスペクトロサーバイメーター (浜松電子製) を置き外部線量当量を記録した。その結果を **Fig. 4** に示す。排気口トリチウムモニターとして本モニターが設置されている場所でのバックグラウンド放射線のレベルは $0.03 \mu\text{Sv/h}$ の程度で、変動幅はおよそ $0.01 \mu\text{Sv/h}$ である。このバックグラウンドの変動幅は計数値の変動幅としてはおよそ 3 cpm に相当し、規定状態時の空気中 HTO 濃度の変動幅に換算すると、 $3 \times (1/60) \times 83.3 \times 1.08 \times 10^{-5} = 4.5 \times 10^{-5} (\text{Bq}/\text{cm}^3)$ となる、空気中 HTO 監視上問題となる濃度はこの約 100 倍の程度の濃度であるので、実際の管理上の使用の点でとくに問題は生じていない。

4. 使用例

本装置を用いて、京大炉臨界集合体棟原子炉室に設置されているファンデグラフ加速器的トリチウムターゲット (トリチウムガスをチタンに吸着させたもの) 付近の空気から得た捕集水中のトリチウム濃度を経時的に測定した結果を **Fig. 5** に示す。これらのデータを収集した時点では、温湿度計のデータ取り込みがなされていなかったため、空気中のトリチウム濃度への自動換算は行わ

Fig. 4 The influence of external radiations on the background count of the HTO-in-air monitor.

れていないが、上記の標準状態を仮定すれば、おおよその値を評価できる。このようにして得られた空気中のトリチウム濃度の評価値もこの図の縦軸に示してある。図には原子炉室の換気状況も示してある。空気中のトリチウム濃度がその排気中の濃度限度 ($5 \times 10^{-3} \text{Bq}/\text{cm}^3$) 以下で変動している。

施設内に漏洩した HTO は、施設の構造物に吸着されたり、施設内に貯留されている水との交換反応の結果、施設内に長期間滞留するが、このような HTO に由来する排気口の HTO の濃度は施設の換気条件に依存して変動する³⁰⁾。詳細な動態の解明は今後の課題として残されているが、本装置による測定の記録からトリチウムターゲット周辺空気中の HTO 濃度の変動の様子と、換気を停止することによって、空気中トリチウム濃度が上昇する傾向を読み取ることができる。

5. 装置のメンテナンス

本モニターで使用したトリチウム β 線検出器は高速液体クロマトグラフィーの検出部として用いられているものであるが試料水中の微細なゴミや沈殿物などによる目づまりを起こしやすい。そのため、プレカラムを用いて不純物を除くことと、流量は可能な限り小さくすることが必要である。本装置では、当初プレカラムを設けていなかったため、約 1 カ月の連続使用でフローセルの目詰りのため、試料水流量が流し始めの 1/10 以下に低下した。このフローセルの目詰りはエタノールやアセトン等の有機溶媒による洗浄では除去できなかった。アンバーライトを充填したプレカラムを使用したところ、フローセルの寿命は著しく向上し、プレカラム内に白色の沈殿物が観察された。この沈殿物は 2 規定の塩酸を試料水の代りに流すことによって取り除くことができた。そこ

Fig. 5 Tritium concentration of the condensate obtained from the atmosphere in the vicinity of the tritium target. The closed circles indicate the tritium activity data determined by the HTO-in-air monitor and the open circles indicate those determined by a liquid scintillation counter. The monitor had been used until January 23 because after this period the accelerator was set in operation and produced considerable level of electric noise which disturbed the normal operation of the monitor.

で、1カ月に1回程度、試料送液系を2規定塩酸で洗浄し、プレカラムに充填してあるアンバーライトを交換することとした。この処置によって1カ月はメインテナンスフリーの連続監視が可能となった。

IV 考 察

排気口監視のトリチウム水蒸気モニターとして、実際に使用するときの最大の問題はメンテナンスである。固体シンチレーターを水中トリチウムの検出に使用する場合、試料水に含まれる微細なゴミや微生物の付着、あるいは溶存イオンの析出がシンチレーター表面の汚れや目詰りの原因になると思われる。ガラスシンチレーターを充填したフローセルはプレカラムを使用しないと容易に目詰りを生じて1週間以上の連続使用は不可能である。プラスチックシンチレーターのスポンジを使用した水モニターのシステムの例^{20,27)}では活性炭フィルターとガラスウールフィルターを併用して、試料水を前処理して、検出器の寿命を延ばす工夫がされている。本装置では月に1回程度塩酸で試料水の接触する部分の洗浄を行

うことにより、フローセルや試料送液部の内壁の汚れを取り除いているが、このように化学的に苛酷な条件での洗浄が可能なのはガラスシンチレーターを用いたフローセルの利点である。

ガラスシンチレーター充填フローセルの利点は、シンチレーターへの試料水の接触面積と容積の比を大きくとれることである。本モニターのフローセル(容積 0.2 cm³)中に直径 5 μm のガラスシンチレーター球が一様に詰まっていると仮定すると、試料水との総接触面積はおよそ 270 cm²であり、現在京大炉で使用されているプラスチックシンチレーター方式水モニターの検出器(4 mm 厚のプラスチックシンチレーター平板)の面積 140 cm²の約2倍に相当する。このように容積に対する試料水との接触面積を比を大きくとれることは、検出部の小型化につながり、ガラスシンチレーター方式の利点の一つになる。また、検出部の容積が小さいと外部γ線に対する検出効率が小さくなり、外部γ線による妨害を受けにくくなるという利点もある。

本モニターは試料の捕集時間が8時間で次の捕集時間

までに4時間の空白がある。そのため、連続監視モニターとはいえないが、捕集装置を2台設けて交互に動作させるように工夫すれば、よりリアルタイムに近い監視が可能である。

本モニターでは、検出部にとくに遮蔽は設けていないので、バックグラウンドが低く、かつ変動の小さい場所に設置して使用する場合は問題は起こらないが、運転中の炉室内など、バックグラウンドの高い場所での使用にあたっては、遮蔽を設ける必要がある。十分な遮蔽を設けることが困難なばあいには、別途バックグラウンドを測定し、その分の寄与を評価する必要がある。そのような場合、出力端子をもったサーベイメーターを併用し、その出力をデータ処理装置に送ることにより、自動的にバックグラウンドの影響を補償する方法が考えられる。

空気中のラドンによるバックグラウンドへの影響を避けるために、連続通気型の汎用電離箱によるトリチウム測定では、 α リジェクト電離箱³¹⁾や膜分離法により希ガスを除去してから測定する膜分離型電離箱^{32,33)}が用いられている。また、プロポーショナルカウンター方式のモニターでは α 線、 γ 線、 β 線によるそれぞれの信号を分離して測定する方法がとられる^{14,15)}。これらの測定方法はいずれもリアルタイムでバックグラウンドの影響を除去して測定する方法である。捕集水測定法は、これらのモニターのようにリアルタイムでバックグラウンドを除去した信号を得ることはできないけれども、原理的に混在放射能の影響を受けず、かつ高感度であるので排気での監視のように8時間平均としての濃度を長期にわたって記録する場合に適した方式である。

本装置は空気中 HTO を測定するために試作されたが、HT を燃焼する装置を装置前段に設けることによって空気中 HT も含めて測定することも可能である³⁴⁻³⁶⁾。HT の発生源をもつ施設内でのトリチウムの挙動をより動的に理解するには、固有ないくつかのトリチウムコンパートメントを想定し、施設内での HT から HTO への転換の過程を明らかにしなければならない。このような施設内でのトリチウムの動態を解析するには、実際に試験的に HT あるいは HTO を施設内に放出してその挙動を追跡することがもっとも直接的な研究手段となるであろう。そのような場合に、安全上問題のない濃度レベルでのトリチウムを高感度に追跡できる本装置のようなモニターは役にたつと思われる。

一方、作業環境の空気中あるいは排気中の濃度限度以下でのトリチウム濃度の経時的変動を監視することは、放射線防護上のみならず原子炉や加速器のハードウェアとしての健全性の監視のためにも重要である。たとえ

ば、原子炉の炉心タンクや重水タンクからの水漏洩など、原子炉の安全性に決定的に関わる重要な情報の一つとして、空気中トリチウム濃度は常時把握しておく必要がある。本モニターシステムは、これらの目的に適している。

V ま と め

コールドトラップにより捕集した空気中トリチウム水蒸気をガラスシンチレーターを充填したフローセルに導くことにより、その空気中濃度を一定時間の平均値として測定する装置を開発した。試作した装置による空気中トリチウム水蒸気の検出限界は法令上の濃度限度の100分の1程度であり当初の目的を充足している。本装置は原子炉施設の排気口や加速器周辺での日常的に使用するトリチウム水蒸気モニターとして有用である。

なお本装置の試作にあたり全面的に協力いただいたアロカ社の宮本義明氏、ならびに実地試験に協力いただいた京都大学原子炉実験所山崎敬三氏に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) J.E. PHILLIPS and C.E. EASTERLY; Sources of tritium, *Nucl. Safety*, **22**, 612 (1981).
- 2) 野口 宏; 環境中におけるトリチウムガスのトリチウム水への転換, 保健物理, **20**, 49 (1985).
- 3) 篠原邦彦, 渡辺 均, 野村 保, 大和愛司; 大気中トリチウムの測定と被曝線量の推定, 保健物理, **18**, 231 (1983).
- 4) T. OKAI and Y. TAKASHIMA; Atmospheric tritium in three different chemical forms in Fukuoka, Proceedings of the Third Japan-US Workshop on Tritium Radiobiology and Health Physics, IPPJ-REV-3, p. 39 (1989), Institute of Plasma Physics, Nagoya University.
- 5) 山田孝一, 高野研一, 渡辺 銀; トリチウムガスと水蒸気の交換反応, 保健物理, **14**, 231 (1979).
- 6) G.L. OGRAM; The Canadian HT dispersion experiment at Chalk River—June 1987: Summary report, Canadian Fusion Fuels Technology Project Report, CFFTP-G-88027 (1988).
- 7) G.L. OGRAM, M. BARNES and S.B. RUSSEL; The French experiment on environmental tritium behaviour—October 15, 1986, Canadian Fusion Fuels Technology Project Report, CFFTP-G-88043 (1988).

- 8) International Atomic Energy Agency; Safe handling of tritium, IAEA Technical Reports Series, No. 324 (1991), IAEA, Vienna.
- 9) National Council on Radiation Protection and Measurements; Tritium measurement techniques, NCRP Report No. 47 (1976), NCRP, Washington.
- 10) 穴沢 豊, 国分守信, 藤田久美雄; 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, 27 (1972).
- 11) J.E. HOY; Operational experience with Kanne ionization chambers, *Health Phys.*, 6, 203 (1961).
- 12) R.A.P. WALKER, V.K. MOHINDRA, P. PILON, J.G. ROBERTS and J. HERSOM; An on-line tritium-in-air monitor for CANDU nuclear generating stations, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 33, 645 (1986).
- 13) R.C. HOCHERL and D.W. HAYES; Background reduction and noise discrimination in the proportional counting of tritium using pulse-shape analysis, *Nucl. Instrum. Methods*, 130, 183 (1975).
- 14) T. AOYAMA, H. SUGIURA and T. WATANABE; Application of air proportional counters to a tritium-in-air monitor, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, A254, 620 (1987).
- 15) T. AOYAMA; A tritium-in-air monitor with compensation and additional recording of α -, β - and γ -backgrounds, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 37, 885 (1990).
- 16) R.G.C. MCELROY, M.J. WOOD and R.A. SURETTE; A modulated flow tritiated vapour monitor, *Fusion Technol.*, 8, 2103 (1985).
- 17) M. OGAWA, M. OKAMOTO, E. ARAI, N. HORIUCHI and Y. MURATA; A new method for atmospheric tritium measurement by a source modulation technique, *Nucl. Instrum. Methods*, 176, 591 (1980).
- 18) N. HORIUCHI; A simplified method for cross correlation power spectrum analysis, *Nucl. Instrum. Methods*, 211, 433 (1983).
- 19) N. HORIUCHI; A tritium monitoring system using the coherent demodulation technique, *Nucl. Instrum. Methods*, 217, 479 (1983).
- 20) A.N. SINGH and M. RATHNAKARAN; An instrument for on-line monitoring of tritium-in-air in heavy water reactors, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, A258, 250 (1987).
- 21) R.A. SIGG; Near-real-time monitor for tritium in the atmosphere, *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 52, 497 (1986).
- 22) S.M. LANGHORST, J.S. MORRIS and S.R. BULL; Tritium monitoring methodology and application at a research reactor, *Health Phys.*, 40, 823 (1981).
- 23) J.E. JOHNSON, B.A. BERVEN and S.T. BARD; Tritium in tropospheric water vapor, *Health Phys.*, 33, 333 (1977).
- 24) M.J. WOOD; Field evaluation of passive HTO-in-air samplers at Chalk River Laboratories, CFFTP-G-9117/AECL-10358 (1991).
- 25) J.A.B. GIBSON and A.K. BURT; A method for continuous measurement of tritiated water in air, *J. Nucl. Energy*, Parts A/B, 20, 185 (1966).
- 26) T.S. IYENGAR, S.H. SADARANGANI, S. SOMASUNDARAM and P.K. VASE; A cold strip apparatus for sampling tritium in air, *Health Phys.*, 11, 313 (1965).
- 27) A.N. SINGH, M. RATNAKARAN and K.G. VOHRA; An on-line tritium-in-water monitor, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, A236, 159 (1985).
- 28) R.C. WEAST, M.J. ASTLE and W.H. BEYER; "CRC Handbook of Chemistry and Physics," D-189 (1987), CRC Press, Inc., Boca Raton, Florida.
- 29) L.A. CURRIE; Limits for qualitative detection and quantitative determination—applications to radiochemistry, *Anal. Chem.*, 40, 586 (1968).
- 30) M. FUKUI; Modeling the behavior of tritiated water vapor in a research reactor containment building, *Health Phys.*, 62, 144 (1992).
- 31) 松本 譲, 三戸美生, 中村 宏, 隈部 功; α バックグラウンド除去によるトリチウムガスモニタの高感度化, 日本原子力学会誌, 26, 157 (1984).
- 32) E.C. DAVEY and R.T. FAUGHT; A discriminating tritium monitor engineered for tritium handling facility applications, *Fusion Technol.*

- 10, 1349 (1986).
- 33) I. YAMAMOTO, A. KABA and A. KANAGAWA; Attachment of membrane separator for removal of radon to ionization chamber installed for tritium stack monitor, *J. Nucl. Sci. Technol., Technol.*, **25**, 289 (1988).
- 34) B. BRIGOLI, F. CAMPI, A.F. PARA and S. TERRANI; Total tritium measurement in atmosphere, *Health Phys.*, **61**, 105 (1991).
- 35) R.A. JALBERT; A new tritium monitor for the TOKAMAK fusion test reactor, *Fusion Technol.*, **8**, 2077 (1985).
- 36) Y. INOUE, B. KAHN and M.W. CARTER; Performances of an atmospheric tritium sampler and its application, *Hoken Buturi*, **18**, 119 (1983).
- 37) 科学技術庁原子力安全局原子力安全調査室 監修; “原子力安全委員会安全審査指針集 (改訂5版)”, p.194, 大成出版社, 東京 (1989).
- 38) 南賢太郎; “現状における放射線管理測定技術”, p.133 (1976), 日本保健物理学会.

付 録

CURRIE によると検出限界 (detection limit) は以下のように定義される²⁹⁾.

すなわち, 1) 正味の計数がないときに, それが存在すると判断する誤りと, 2) 正味の計数があるときにそれが存在しないとする誤りのそれぞれの危険率が定められた値より小さいときに, 信号が検出された と 判 断 す る.

この定義によると, 与えられた計数時間での正味の計数としての検出限界 (L_D と略する) は次の式で与えられる.

$$L_D = k^2 + 2 \times k(\mu_B + \mu_B/n)^{1/2}$$

ここで, k はバックグラウンドの計数値および正味の計数値の標準偏差に対する倍数である. 危険率が, それぞれの誤りについて 5% としたとき, $k=1.645$ である. また, μ_B はバックグラウンド計数値の真の平均値 (“true” mean) であり, n はバックグラウンドの測定回数である. この式を計数率の関係に置き換え, k の値を代入すると,

t_s : 試料測定時間 (秒)

n : バックグラウンドの測定回数

t_b : バックグラウンドの測定時間, nt_s (秒)

N_B : バックグラウンド計数率 (0.660 cps)

N_L : 検出限界での正味の計数率 (cps)

とにおいて,

$$N_L = (2.71/t_s) + 2 \times 1.645((\mu_B/t_s^2) + \mu_B/(nt_s^2))^{1/2}$$

となる.

$$N_B = \mu_B/t_s, \quad t_b = nt_s$$

であるから,

$$N_L = (2.71/t_s) + 3.29((N_B/t_s) + (N_B/t_b))^{1/2}$$

となる.

バックグラウンドの測定時間を試料測定時間に等しくとった場合には,

$$N_L = (2.71/t_s) + 4.65(N_B/t_s)^{1/2} \quad (3)$$

となる.

10分測定の場合の検出限界を求めるために, $t_s=600$, $N_B=0.660$ とすれば, (1)式から $N_L=0.159$ (cps) が得られる. この検出限界での計数率を規定状態での空气中濃度に換算するには, トリチウム濃度への換算計数 A と, 空気 1 cm^3 に含まれる水蒸気の質量をかければよい. すなわち, 空气中トリチウム水蒸気としての検出限界を T_L とすると,

$$\begin{aligned} T_L &= A \times (1.08 \times 10^{-5}) \times N_L \\ &= 83.3 \times (1.08 \times 10^{-5}) \times 0.159 \\ &= 1.43 \times 10^{-4} (\text{Bq/cm}^3) \end{aligned}$$

となる.

一方, 放射線管理の現場では別の定義による検出限界も用いられる. 定量的にデータを取り扱う場合には, 満足できる程度に真の値に近い測定値が必要であるという考え方から, 正味の計数率の標準偏差に一定の倍数 K をかけたもので定義される検出限界が用いられる^{14,15,37,38)}. K の値は通常 3 (正味の計数率の信頼限界が 99.7%) とする. この定義による検出限界は, CURRIE により決定限界 (Determination Level) として定義されている量である. 正味の計数率についてのこの定義による検出限界 (N_Q とする) は, (3)式を導くときに使われたのと同じパラメータを用いて,

$$\begin{aligned} N_Q &= (3/2) \times (3/t_s + ((3/t_s)^2 + 4 N_B((1/t_s) \\ &\quad + (1/t_b)))^{1/2} \end{aligned}$$

で与えられる. $t_s=t_b$ のときには, (3)式に対応して, N_B がとくに小さくない限り

$$N_Q = 3(2 N_B/t_b)^{1/2} \quad (4)$$

と近似される³⁰⁾.

(4)式を用いて求めた, N_Q および T_L の値は, それぞれ, $N_Q=0.140$ (cps), $T_L=1.26 \times 10^{-4} (\text{Bq/cm}^3)$ となり, (3)式から求めた検出限界値に近い値となる.