180. 比例計数管による低濃度トリチウムガスの オンライン測定システム

限部 功*, 桑折 範彦*,
松木 保浩*, 杉崎 昌和*, 一木 武典*

(1987年 11月 6日 受理)

On-Line Measurement System for Low Level Tritium Gas by Use of Proportional Counter

By Isao KUMABE, Norihiko KOORI,
Yasuhiro MATSUKI, Masayasu SUGISAKI and Takenori ICHIGI

An on-line measurement system was designed and constructed for low level tritium gas. The system consists of a proportional counter, amplifiers, a discriminator and a scaler interfaced to a micro-computer. Characteristics of the proportional counter were examined for pure He and Ar counting gases using 5.9 keV ^{55}Fe X-rays; it worked with pure rare gases in the proportional mode up to the gas multiplication factor of about 100. The developed system was used to measure the release rate of tritium out of Al-Mg-Li alloys irradiated by thermal or 14 MeV neutrons. Applicability of the system with a proportional counter has been confirmed for measurements of low level tritium gas carried by pure He or Ar gas. The system has the maximum sensitivity of 0.1 pCi/cm³ for a 50 cm³ sensitive volume.

KEYWORDS: measuring methods, on-line systems, low level tritium gases, proportional counters, tritium release rate, Al-Mg-Li alloy, irradiation, neutron beams, accuracy

I. 緒 言

中性子照射などによって物質中に生成された微量のトリチウムを測定する場合、これまでは一般に、その物質より放出されたトリチウムガスを酸化してバブラーに捕集し、その放射能を液体シンチレーション法によりオフラインで測定する方法が採られてきた。この方法は高感度ではあるが、トリチウム放出量の時間変化を連続的に測定するには適していない。また、この方法では、その早い時間変化を測定することは困難である。著者らは、これまで電離箱に微小電流計をつなぎ、その出力信号をアナログ-ディジタル変換器を通じてマイクロコンピュータ(マイコン)により収集するトリチウムガスの連続測定システムを実用化してきた⁽¹⁾。この電離箱による測定は連続測定が可能であるが、感度は50 cm³の電離箱で最高100 pCi/cm³程度と、液体シンチレーション法に比べて劣っている。

より低濃度のトリチウムガスの連続測定のために、検出器として比例計数管を用いるシステムが適し

ていると考えられる。この場合、トリチウムの β 崩壊を1つ1つ計数できるので、最高感度は50 cm³の比例計数管で約0.1 pCi/cm³と推定され、電離箱の場合に比べて感度は約1,000倍に改善されると期待される。しかし、トリチウムを搬送するガスは、計数管が比例モードで動作するのに適していなければならない。一般に、トリチウムを搬送するガスとしては、不純物の混入を防ぐために高純度のHe, Ar等の希ガスが用いられており、通常の比例計数管のための計数ガスとは異なっている。また、これまで、高純度の希ガスのみによる比例計数管の動作条件についての詳しい報告はごく少ない⁽²⁾。

本報では、中性子照射によって物質中に生成された微量のトリチウムガスの放出挙動を調べる実験のために開発した、比例計数管を用いた低濃度トリチウムガスのオンライン測定システムについて述べる。特に、トリチウムガスの搬送に用いられる高純度のHe, Ar

* 九州大学工学部 応用原子核工学教室(Dept. of Nucl. Eng., Fac. of Eng., Kyushu Univ.)

に対する比例計数管の動作特性について詳細に調べ、上記実験のための使用条件を決めた。また、マイコンによって制御可能なスケーラを製作して構成した低濃度トリチウムガスのオンライン測定システムを、実験に応用した例について報告する。

II. 測定システム

構成した測定システムのブロック図を Fig.1 に示す。比例計数管の有感体積中でのトリチウムの β 崩壊に伴う β 線によって生ずるパルスは、増幅器と波高弁別器を通してスケーラに入力される。スケーラはインターフェイスバスでマイコン(NEC PC 9801 VM)に接続されており、マルチスケーラとして自動測定が可能になっている。スケーラはマイコンから制御可能であり、インターフェイスバスは 8 または 16 ビットのマイコンのために、互換性を考慮して独自に開発したものである⁽³⁾。マイコンに直接データが収集されているので、その後のデータ処理が同じマイコン上で可能であるという利点がある。

Fig.1 Block diagram of on-line measurement system with proportional counter for low level tritium gas

比例計数管でトリチウムを測定する場合、トリチウムの β 崩壊を 1 つ 1 つ計数できるので、最高感度は以下のように推定できる。1 cm³ 当り 1 pCi の放射能があるとする、計数管の容積が 50 cm³ であれば崩壊率は 110 dpm である。一方、製作した有感体積 50 cm³ の比例計数管のバックグラウンドは約 40 cpm なので、0.5 min 間隔の測定の場合、20 カウントに対する統計変動以上 ($\sqrt{20}/0.5 \approx 10$ dpm) の放射能があれば、測定可能と考えられる。したがって、比例計数管のトリチウム β 線に対する検出効率を 80~90 % とすれば、約 0.1 pCi/cm³ がこの比例計数管のトリチウムガスに対する最高感度となる。

III. 比例計数管

製作した比例計数管は 1 気圧のガスフロータイプで、内径 21 mm、長さ 165 mm の円筒であり、有感体積は約 50 cm³ である。管の中央にはアルミナイズドマイラーを貼った直径 4 mm の窓をつけた。これは計数管のテストとディスクリレベルの校正のため、⁵⁵Fe からの 5.9 keV X 線を入射させるためのものである。陽極芯線には金メッキタングステン線またはステンレス鋼線を用いた。

一般に、比例計数管の計数ガスには、Ar にメタン、プロパン、炭酸ガスなどの多原子分子ガスを混合したガスが用いられている。陽極芯線近傍での電子なだれの成長の際に発生する紫外光子が多原子分子により吸収されて、検出器の壁などでの 2 次電子の生成が抑制され、電子なだれの急激な成長が抑えられる。それゆえ、印加電圧を高くすることが可能になり、結果として、高いガス増幅率を得ることができる。先に述べたように、希ガスのみを比例計数管の計数ガスとして用いた例は少ない⁽²⁾⁽⁴⁾。Sipila⁽²⁾ はガス増幅率を 100 以下に保つ場合には、希ガスのみでも、計数管を比例モードで安定に動作させることができると報告している。

そこで、われわれはまず、純 Ar および純 He に対する比例計数管の特性を調べた。トリチウムからの β 線の最大エネルギーは 18 keV であり、平均エネルギーは約 6 keV であるので、テスト用の線源として ⁵⁵Fe からの 5.9 keV X 線を用いた。純 Ar および純 He ガスを用いた場合の波高分布を Ar(80%) + CH₄(20%) 混合ガスの場合の波高分布と比較した結果の例を Fig. 2 に示す。この場合に用いた陽極芯線の径は 50 μ m である。光電ピークにおける分解能は Ar + CH₄ 混合ガスの場合約 17 % であるが、純 Ar の場合は約 33 % と悪くなる。さらに、純 He を用いると、分布はかなり広がってしまう。これは、光電子の He ガス中での飛程が

The diameter of anode wire is 50 μ m.

Fig. 2 Pulse height distributions for 5.9 keV ⁵⁵Fe X-rays

5.4mmと、Arの場合の0.3mmより非常に長くなり⁽⁵⁾ (Arの場合、5.9 keV X線は光電相互作用により、大部分は約3 keVの光電子とオージェ電子を生ずる)、壁効果が大きく効くようになること、また電子なだれの形成に伴う紫外光子のエネルギーが約18 eVと高くなり、不安定になる要素があるためである⁽⁶⁾。

純Arを用いた場合の計数管のガス増幅特性と分解能を、陽極芯線の直径25, 50, 100 μm に対して測定した結果をFig. 3に示す。図から明らかなように、芯線が細いほど分解能は良くなるが、ガス増幅率が印加電圧の増加とともに急に立ち上がるので不安定になる。同一芯線の場合は、印加電圧が低いほど分解能が良い。25 μm と50 μm の場合、低い印加電圧で分解能がやや悪く見えるのは、ガス増幅率が低いので増幅器の利得を上げたため、相対的にエレクトロニクスからの雑音の寄与が大きくなっているからである。

Fig. 3 Gas multiplication factors and resolutions (FWHM) of proportional counter for pure Ar counting gas

一方、純Heを用いた場合のガス増幅特性は、Fig. 4に示すように、純Arの場合と比べると、印加電圧の増加に対してより急な立ち上がりをしているが、大体似た特性を示している。それゆえ、純Arまたは純Heを用いて製作した計数管を比例モードで動作させるには、ガス増幅特性の安定性と分解能の妥協点である50 μm の陽極芯線を用いて、ガス増幅率を100前後に保つことが適当であることがわかった。そこで、以後トリチウムの測定には、この条件で比例計数管を用いた。

Fig. 4 Gas multiplication factors of proportional counter for pure He counting gas

IV. トリチウムガスの測定

著者らは⁽⁷⁾、Al-Mg(4%)–Li(1%)合金からのトリチウムの放出挙動を明らかにするため、熱中性子照射(武蔵工大 TRIGA-II)と14 MeV 中性子照射(ローレンスリバモア国立研究所 RTNS-II)により、その合金内にトリチウムを生成した。試料は底面直径9 mmで厚さ2 mmの円板である。製作した比例計数管を組み込んだトリチウムの放出装置をFig. 5に示す。

Fig. 5 Schematic description of apparatus for tritium release experiment

図に示されるように、トリチウムを搬送する純Heは液体チッ素トラップとスポンジチタンを用いて不純物を取り除き、電気炉を通して比例計数管中を流す。Heを25 cm^3/min の流量で流しながら試料を電気炉中に落とすと、試料が熱せられてトリチウムが放出され始める。試料を落とすと同時に比例計数管での測定を開始し、計数管中を通過するトリチウムの放射能を連続測定する。搬送ガスとして純Arを用いる場合には、液体チッ素トラップの代わりにドライイストラ

Fig. 6 (a), (b) Pulse height distributions for β -rays of tritium carried by gases

ップを用いた。放出された全トリチウム量は、装置の出口でホブカライトで酸化してトリチウム水蒸気に変換し、純水バブラー中にトリチウム水として回収する。

搬送ガスとして純 Ar と純 He を用いて、比例計数管で測定したトリチウムからの β 線の波高分布を Fig. 6 (a), (b) に示す。もし、 β 線の飛程が充分短く計数管の有感体積中で止まり、しかも計数管の分解能が非常に良ければ、波高分布は β 線のエネルギー分布と同じ形状(最大エネルギーの約 1/3 のところに最高値を持つなだらかな山の形)を示すはずである。

しかし、測定結果では、搬送ガスが Ar, He いずれの場合も、波高分布は波高とともにほぼ単調に減少するスペクトルで、 β 線のスペクトルとやや異っている。その理由は、主に壁効果と分解能が悪いためと考えられる。特に、He の場合は β 線の飛程が 18 keV で約 33 mm, 6 keV で約 5.5 mm であり⁽⁶⁾、計数管の直径は 21 mm なので、壁効果が大きく効いている。しかしながら、エレクトロニクスからの雑音を除くように、適当なディスクリバイアスを波高弁別器で設定することで、トリチウムの相対的な放射能を測定することができる。放射能の絶対値は、トリチウム水として回収された全トリチウムの放射能を液体シンチレーション法で測定して校正する。

先に述べたマイコンにより制御できるスケラを用いたオンライン測定システムに、波高弁別器の出力をつないで、Al-Mg-Li 合金からのトリチウム放出量の時間変化を測定した。その結果の 1 例を Fig. 7 に示す。この測定では搬送ガスとして He を用い、電気炉の温度を 823 K に設定した。測定時間は 1 回当り 30 s で、連続 120 点、1 h 測定した。得られた Fig. 7 のようなトリチウム放出量の時間変化から各時刻までの積分放出量を求めて、全トリチウム量に対する積分放出率の

時間変化のグラフを作り、時間依存性を考慮した拡散方程式の解との最小二乗フィットを行うことにより、試料中のトリチウムの拡散係数を求めることができる。

Fig. 7 Released rate of tritium gas from Al-Mg-Li alloy sample measured with developed on-line measurement system

V. 考 察

今回の Al-Mg-Li 合金からのトリチウム放出量の時間変化の測定には、搬送ガスとして純 He を使用した。その際、比例計数管からの出力はやや不安定で、時には連続放電をすることもあった。その理由は、He の場合 Fig. 4 からわかるように、ガス増幅率が印加電圧とともに急激に立ち上がり、ガス増幅率 200 以上では連続放電になるからであろう。この不安定さは、数 hr 程度の短時間の測定ではほとんど問題にならない。しかし、長時間の測定では、外気圧、温度等の変化により比例計数管内の密度が変化して、ガス増幅率が変わり不安定になることも考えられる。

この測定システムを長時間安定に働かせるためには、搬送ガスとして純 Ar を用いることが比例計数管

にとって望ましい。また、Neは液体チッ素で液化しないので、Neガスの使用は検討に値するであろう。

今回製作した比例計数管を用いた測定システムの検出効率は、トリチウム水として回収された全トリチウムの放射能を液体シンチレーション法で測定して得られた値に基づいて求めた結果、平均約80%であり、妥当な値である。ガス増幅率を高く取れないため、ディスクリバイアスがやや高くなっているため、検出効率は少し下がっている。

これまでのこの種の装置では、液体シンチレーション法によってオフラインの測定が行われていたので、放出にかかる時間が20 min以下の場合、時間を細かく区切ってバンプを交換して放出挙動を測定することは困難であった。また、放出初期の過程を明らかにすることや、複合したトラッピングの関与する拡散過程を昇温放出実験で測定し、早い拡散過程を観測することも不可能であった。ここで述べたような高感度のトリチウムのオンライン測定システムを用いれば、応答が早いのでこれらの実験、連続測定が可能になる。また、トリチウム量が少なくとも連続測定が可能なので、トリチウム生成のための照射時間等も少なくできる。

VI. 結 語

製作した比例計数管とマイコンによる低濃度トリチウムガスの連続測定システムは、ガス増幅率100前後で用いるならば、純Arまたは純Heを搬送ガスとして用いて充分実用になるものである。この測定システムの検出効率は約80%であったので、最高感度は

50 cm³の比例計数管に対して約0.1 pCi/cm³と評価される。このシステムで測定したAl-Mg-Li合金からのトリチウム放出曲線から、これまでの液体シンチレーション法によりオフラインで測定する場合に比べて、格段に精度良く試料中のトリチウムの拡散係数を求めることが可能となった。また、放出初期の挙動を詳細に観測でき、昇温放出実験により拡散を律する過程についての知見が得られるようになった。

今後、この種の実験装置のみならず、一般の低濃度トリチウムガスを扱う実験装置に比例計数管を組み込むことによって、オンライン連続測定が可能になり、実験の精度のみならず実験の能率も大きく改善できるであろう。

— 参 考 文 献 —

- (1) 松本 譲, 矢野順司郎, 隈部 功, 西川正史, 竹石敏治: 九大工学集報, 59, 485 (1986).
- (2) SIPILA, H.: *Nucl. Instrum. Methods*, 140, 389 (1977).
- (3) 柴 武二, 松本 譲, 入江泰輔, 桑折範彦, 大垣英明, 的場 優: 私 信, (1987).
- (4) ISOZUMI, Y., KISHIMOTO, S., KATANO, R., TAKEKOSHI, H.: *Rev. Sci. Instrum.*, 58, 293 (1987).
- (5) TABATA, T., ITO, R., OKABE, S.: *Nucl. Instrum. Methods*, 103, 85 (1972).
- (6) 桑折範彦: 放射線, 13(4), 101 (1987); TANAKA, Y., JURSA, A.S., LEBLANC, F.J.: *J. Chem. Phys.*, 48, 304 (1958).
- (7) SUGISAKI, M., ICHIGI, Y., FURUYA, H., KOORI, N., KUMABE, I.: *Proc. Int. Symp. on Fusion Reactor Blanket and Fuel Cycle Technology, Tokai, Japan*, p. 203, (1986).
- (8) SUGISAKI, M., FURUYA, H., ICHIGI, T., KOORI, N., KUMABE, I., KAWAMURA, K.: Submitted to *J. Nucl. Mater.*

○原研 RI・原子炉研修所○

研 修 生 募 集

○第172回専門課程 液体シンチレーション測定コース

目 的 研究または実務における液体シンチレーション計測装置の利用者を対象とし、液体シンチレーション測定に必要な基礎知識と応用技術を、講義と実習を通して短期間に習得させる。

期 間 8月18日(木)～26日(金)

受講料 65,000円(定員16名), 締切 7月16日(土)

○第173回専門課程 RIの生物科学への利用コース

目 的 生物科学系(医, 薬, 農, 工, 理学)の研究者, 技術者を対象とし、RIの生物科学への利用に必要な一般知識と基礎から応用までの技術, ならびに非密封 RI

の安全取扱技術を、講義と実習を通して短期間に習得させる。

期 間 8月29日(月)～9月9日(金)

受講料 75,000円(定員16名), 締切 7月23日(土)

申込先 (〒113) 東京都文京区本駒込2-28-49

原研 RI・原子炉研修所(03-944-4311)

○第7回放射線防護専門課程

目 的 原子力施設等で放射線管理を実施するための知識と技術を体系的に習得させる。

期 間 9月12日(月)～10月14日(金)

受講料 18,000円(定員24名), 締切 8月8日(月)

授業レベル 高卒程度とし、卒業後2年以上の実務経験のある者を対象。

申込先 (〒319-11) 茨城県東海村 (0292-82-5667)

原研 RI・原子炉研修所