

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K00535

研究課題名(和文) 比例計数管技術を応用した低濃度トリチウムガス検出システムの開発

研究課題名(英文) Development of the monitor system of low-level tritium gas with the proportional-counter system

研究代表者

五十棲 泰人 (ISOZUMI, Yasuhito)

京都大学・環境安全保健機構・名誉教授

研究者番号：50027603

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：放射線施設の排気口のトリチウムガス濃度に対する規制値(3x10⁻³Bq/ml)に対応できるモニターを開発するため、既存の試作機に抜本的改良(比例計数管の陰極材料及び陽極芯線の太さ、計数ガスの種類、圧力及び流量、遮へい材料及び厚さ、計数ガス用温度、圧力、湿度センサーの取付、連続自動測定のためのソフトウェアの開発)を加え空気中トリチウムガス濃度に対する感度の改善を図った。検出感度の下限値は1.2 x10⁻³Bq/mlになり、初期の目的は果たせたと考えている。信頼性の高い定量測定のためには比例計数管のトリチウムに対する検出効率を評価する必要がある。現在、評価のための実験を継続中である。

研究成果の概要(英文)：In order to build up the apparatus that can monitor the strict level (3x10⁻³Bq/ml) of tritium gas concentration in air at the exhaust port of radiation facility, the existing apparatus of trial manufacture was systematically refined up at many important parts: cathode materials of proportional counter and radius of anode wire, sort, pressure and flow rate of counting gas, shield materials and their thickness, installation of sensors for temperature, humidity and pressure of counting gas. development of the software for automatic successive operation of the tritium gas concentration measurement. In the present stage, it is expected that the lower limit of tritium gas concentration has been improved to 1.2x10⁻³Bq/ml

For the reliable and quantitative measurement of the gas concentration, it is necessary to estimate the tritium gas detection efficiency of the proportional counter. However, this work has not been finished. The experiments for the estimation is now continued.

研究分野：原子核物理学・放射線計測学

キーワード：トリチウム ガスモニター 比例計数管 空気中濃度 検出効率

1. 研究開始当初の背景

放射線施設から排気される空気中の放射性同位元素の量は法令（放射線障害防止法および労働安全衛生法）で規制されている。トリチウムに対する規制値は化学種を特定しない通常の施設で 3×10^{-3} Bq/ml である。この量は空気 1 リットル中のトリチウムによる崩壊が秒あたり 3 個という非常に厳しい値になっている。現在のところ、この値の監視は試料を数日かけて収集し、その中のトリチウムからの線を液体シンチレーションカウンターで計測する方法が行われている。この方法を使えばバッチ方式で数日から週単位で監視できるが、分単位、時間単位の監視は非常に難しい。これまで様々な放射線計測技術を応用して、連続して空気中トリチウム量を監視できるシステムの開発が試みられたが、現行の法規制値に対応できるものはまだない。放射線安全管理上から連続監視可能で高感度のトリチウムガスモニターが切望されている。

2. 研究の目的

我々は原子物理学、核物性学の分野でガス封入型放射線検出器の 1 つである比例計数管を応用した実験研究に携わり、現在も、新しい比例計数管技術の開発に向けて努力している。この比例計数管技術の一つの応用として、空気中や他のガス発生環境中のトリチウムガス濃度を定量測定するための試作機を製作した。この試作機をもとに試作機各部に改良を加え、連続測定可能かつ法規制値 (3×10^{-3} Bq/ml) に充分対応できるトリチウムガスモニターを開発することが本研究の目的である。

3. 研究の方法

トリチウムガスモニターの試作機は、比例計数管の信号波形のエネルギー情報と伴にライズタイム（立ち上がり時間）の情報も分析して、エネルギーの高いかつライズタイムの遅い信号を効率よく省くことによって、バックグランド計数を大幅に下げることができる。このバックグランドを下げる方法はライズタイム弁別法と呼ばれ、古くから

比例計数管を使う実験で利用されている。トリチウムに対する検出感度をさらに上げて、法規制値の監視を可能にするのに必要な試作機に対する改良項目は以下のようにまとめられる。

- (1) 検出器の遮へい：トリチウム検出器として使用する比例計数管は有感容積（約 4 リットル）が大きいため、自然放射能によるバックグランド計数をできるだけ下げることが重要である。比例計数管の材質、遮へい材の材質及び厚さによるバックグランド計数の変化を調べ、最適の材質および厚さを決める。
- (2) 計数特性の空気による劣化：比例計数管を作動さすには計数ガス（メタンガスまたは PR ガス、すなわち、90%Ar+10%CH₄の混合ガス）を流す。空気中のトリチウムからの線は、計数ガスに 10%の空気を混入させて計数する。空気中の酸素や微量の水分は比例計数管の正常な動作を阻害し、出力波高の減少やエネルギースペクトルの分解能を悪くすることが知られている。比例計数管の幾何学的形状、計数ガスの圧力、空気の混合比を変えて、計数特性の劣化を詳しく調べシステムを最適できる条件を探す。
- (3) 比例計数管出力のライズタイム特性：ライズタイム弁別法でバックグランド計数からトリチウムによる計数を弁別する。バックグランド計数は主に自然線と宇宙線に起因する。自然線は比例計数管の管壁と相互作用をし、結果的に複数個の電子が計数管内でガスを電離する。その結果ライズタイムの遅い信号を発生する。宇宙線の一部は計数管周りの相互作用で高エネルギーの陽子を発生し、この陽子が計数管内で長い電離トラックを作る。そのため、これもライズタイムの遅い信号になる。一方、トリチウム線のエネルギーは小さいため、出力信号は比例計数管内芯線近傍の電位勾配で一意的に決まる信号を放出し、そのライズタイムは出力信号の中で最も早い

グループに属する。この早いグループのライズタイムの揺らぎを下げるとバックグランド計数からの弁別は容易になる。そのためには、比例計数管の幾何学的形状（陽極芯線の太さ等）、計数管ガスの種類および圧力によるライズタイムの影響を詳しく調べシステムを最適化する必要がある。

- (4) 連続自動測定法の確立：比例計数管からの出力の波高値（エネルギー信号）とライズタイムに比例する波高値（ライズタイム信号）から成る 2 次元スペクトルを専用の電子回路使って集積する。2 次元スペクトルの解析を通して、集積したスペクトルからバックグランド計数を除いたトリチウム計数を求めることができる。2 次元波高分析器の開発は終えているが、データ解析のためのソフトウェアは出来ていない。バッチタイム（数 10 分～数時間）毎に計数測定を中断し、その直後に数秒でスペクトル解析を行いかつトリチウム濃度を表示するためのソフトウェアを新しく作製する必要がある。
- (5) 採用する比例計数管の検出効率の評価：2 次元スペクトルデータからトリチウム濃度を評価するには比例計数管の検出効率の値が必要である。検出効率は比例計数管内のトリチウムの崩壊率に対する計測中の比例計数管の計数率の比で定義される。この値は理想的な比例計数管では 100%であるが、実際の比例計数管では高電圧端子周りの電場の歪みによる不感領域の存在や(2)に挙げた空気混入による計数特性の劣化のため検出効率は大きく下がっていると考えられる。また、空気を含む計数ガスの条件（混合比及び圧力）によっても変化する。比例計数管を含む計数システムの条件が異なるごとに検出効率を実験的に決定する必要がある。操作が複雑でなく信頼性の高い検出効率の評価法を確立しなければならない。

4. 研究成果

本研究遂行の 3 年間 3.(1)-(5)に挙げた開発課題の解決に向けて努力した。その結果比例計数管技術に関する新しい知見、エネルギー-ライズタイムの 2 次元スペクトル解析法の確立等の成果を得た。しかし、改良を加え完成したトリチウムガスモニター装置に対する検出効率を本研究期間内に決定することは出来なかった。以下に、期間内に本研究で得た成果および検出効率決定法の確立のための研究の進捗状況を以下にまとめる。

(1) 比例計数管技術に関する新しい知見

陰極材料：比例計数管のバックグランド計数の内、ライズタイムの遅い成分はライズタイム弁別法で確実に排除できる。しかし、トリチウムによる信号と同じ速いライズタイムをもつ成分も僅かに存在し、これがライズタイム弁別法でも除外できないバックグランド計数になっていることが分かった。陰極材料の異なる比例計数管（材料：SUS、ニッケル、真鍮、アルミニウム、カーボンガラス、アルミナイズドマイラ膜+アクリル、カーボンシート+アクリル）を作成し、早いライズタイムを持つバックグランド計数の数を相互比較する実験を行った。その結果、SUS、ニッケル、真鍮等の金属を陰極とする場合は、外部放射線との相互作用で、陰極表面から低エネルギーの X 線 (<10 keV) を放出しこの X 線が除外できないバックグランド計数となることが分かった。できる限り低 Z 元素を主体とする陰極を構成するのが良いが、最終的には 1000 厚アルミニウムを蒸着した 100 μ マイラ膜を使用することにした。実際の陰極はこの膜を 5-cm 径 x 50cm 長の 4 本のアクリルパイプに収納する形になる。カーボンガラス及びカーボンシート+アクリルでもアルミナイズドマイラ膜と同様非常によい結果を得ている。取扱いの容易さでアルミナイズドマイラ膜を

採用することにした。

計数ガス：トリチウムからの線を検出するガスとしてメタンガスと PR ガス (90%Ar+10%CH₄) を使用できる。バックグラウンド計数を下げるという点ではメタンガスの方が有利と考えられるが、陰極にアルミナイズドマイラ膜を使い、比例計数管を外部放射線から遮へいしてメタンガスと同程度のバックグラウンド計数に下げることができた。メタンガスは可燃性ガスであり汎用のモニター機器に使用するのには適当でないと考え、危険性のより少ない PR ガスを使用することにした。

圧力：試料ガスとしての空気中には酸素及び微量の水分が含まれる。これらのガス成分は、比例計数管内で放射線の電離作用によって生成される電子を吸着する反応断面積を持つ。そのため陽極芯線近くに到着して電子雪崩を起こす電子の数が少なくなる。極端な場合、陽極芯線から充分離れた位置で発生した電離で生まれた電子が電子雪崩を発生さすに十分な時間内に到達できなくなり、比例計数管からの出力信号がなくなる。5-cm 径の比例計数管内に 90%PR+10%空気を流し、ガス圧力を 10-100 kPa の範囲で変えて出力信号を詳しく観測した。その結果、5-cm 径の比例計数管に対して 50kPa の圧力が最適条件であることが分かった。この条件で、比例計数管内で発生する信号の内、約 70% (検出効率の推定値) を取り出して処理できる。

陽極芯線：比例計数管の出力信号のライズタイムは伴う揺らぎは陽極芯線周りの電場の状況、計数ガスの種類および計数ガスの圧力等に依存する。50 kPa の PR ガスの条件のもとで、陽極芯線の径 (19, 20, 30, 40, 50, 60 μm) を変えて揺らぎを系

統的に調べた。揺らぎの程度は、Fe-55 5.9-keV Mn K-X 線のエネルギー-ライズタイムの 2 次元スペクトルに現れるライズタイムピークの中で定量的に評価できる。系統的な観測の結果、50kPa の PR ガスでは 50、60 μm 径の太い芯線の方が揺らぎを大きく下げられることが分かった。50kPa のメタンガスを使うと、太い芯線では印加電圧 (>2500 V) が高くなりすぎ別の問題が起こる。本研究では比例計数管の芯線として 60 μm 径 SUS 線を使用することにした。

遮へい材：外部放射線によるバックグラウンド計数を減らすには、比例計数管を遮へい材で囲むことが有効である。遮へい材として内側から 3-mm 厚アルミニウム板、10-mm 厚銅板、5-mm 厚錫板からなる 3 層の金属板を用いた。このシールド材を使えば、計数ガスを PR ガスとしてもメタンガスとしてもバックグラウンド計数にほとんど変化がないことを確かめている。また、金属板および計数ガスに対する光子吸収係数を使って、200keV 以下の光子に対する計数ガスとの反応頻度を計算したが、PR ガスとメタンガスでほぼ同じ値になることを確かめることもできた。また、5-mm 厚の鉛ブロックでさらに遮へいをすればバックグラウンド計数が約半分になることも分かった。しかし、検出器本体の重量が非常に重くなるため、鉛ブロックによる遮へいは採用しないことにした。

(2)連続自動測定法の確立

ソフトウェア：一定の時間間隔で 2 次元スペクトルを集積し、スペクトル解析によりライズタイムピークの面積を評価し、測定条件で決まる検出器効率及び計数ガスの流量と圧力からトリチウム濃度を自動的に評価できるソフトウェアを開発した。ス

ペクトル解析の手順は先に開発した 2 次元波高分析器からの 2 次元データを必要なエネルギー領域 (0-18.3 keV) に沿って計数の和をとり、ライズタイムスペクトルを作成する。次に、予め測定したバックグラウンド計数に対するライズタイムスペクトルとの差をとり、トリチウムによる計数の和はこの差分スペクトルの全計数として求める。

センサー：比例計数管の動作は内部の計数ガスの圧力及び湿度の影響を大きく受ける。計数ガスの圧力、湿度および温度を常にモニターできるように比例計数管の計数ガス流入部の直前と流出部の直後に圧力、湿度および温度のセンサー素子を取り付けその出力値を、トリチウム濃度値とともにコンピュータのモニター画面に表示できるようにした。

空気中トリチウム濃度連続測定：改良した比例計数管および新しく製作した自動運転ソフトウェアを組み込んだトリチウムガスモニターの試験運転を行った。検出効率の推定値、70%、を使って、トリチウム濃度の検出限界は 1.2×10^{-3} Bq/ml 程度という結果を得ている。この値から本研究で大きな改良を加えたモニター装置は現行法令の規制値に対応できるものになっていると考えている。モニター装置の仕様詳細を下にまとめておく。

検出器： 比例計数管 (有感体積, 5cm 径 x 50cm 長) x 4 本

陰極材料 (アクリルパイプ +1000 Al 蒸着マイラ膜)

陽極芯線 (60 μ m 径 SUS 線)

計数ガス：90%PR ガス+10%空気

計数ガス圧力：50kPa

計数ガス流量：300ml/min

バッチ当たりのデータ集積時間：1000

min

(3) 検出効率の評価法開発の進捗状況

空気中のトリチウム濃度の値を求めるには比例計数管のトリチウム検出効率を予め決定しておくことが不可欠である。計数ガスの条件 (流量、圧力、空気分圧比等) を変えるとそれに対応して検出効率も変化する。そのため、測定条件を変えるごとに検出効率の再評価が必要になる。これまで、いろいろなアイデアのもとに検出効率を決める実験的方法 (トリチウム水の電気分解で HT を含む水素ガスを発生させる方法、位置感应型比例計数管にし、計数管内の不感領域を決定する方法、予め検出効率を決めた比例計数管をシステムに組み込み連動させて、その計数管の長期の計数測定結果からシステム中の比例計数管の検出効率を求める方法等)を試みたがうまく行かなかった。

現在 (平成 30 年 6 月 1 日) はトリチウム線源として低濃度のトリチウム水 ($1 \sim 5 \times 10^3$ Bq/ml) をガスライン中に置き、ガス中に気化する HT0 を比例計数管で計測する一方、気化した HT0 はガスライン排気口近くの冷却装置 (ドライアイス+エタノール) で回収する方法を試みている。回収した水分中の HT0 は液体シンチレーションカウンターで計数する。システムの比例計数管の計数値と液体シンチレーションカウンターの計数値から比例計数管の検出効率を決めることができる。この方法は、明らかに計数ガスに水蒸気が混入する。水蒸気は比例計数管にとって、いわゆる Poison Gas でその動作が著しく阻害することが知られている。我々は、これまでの経験である程度の微量水分では計数管の動作は大きな影響を受けないことを知ることができた。トリチウム線源部および HT0 回収部、湿度測定部を含む新しいガス回路の製作が終わり、微量水分の比例計数管動作に対する影響を詳し

く調べる段階に入っている。

今後この検出効率決定の実験を進めて最終的に、本研究の目的であるトリチウムガスモニターを完成させたい。

5. 主な発表論文等

「トリチウムガスモニターの開発」
五十棲 泰人、戸崎 充男、河野 孝央
日本放射線安全管理学会 第 14 回学術大会
筑波大学、2015.

「トリチウムガスモニターの応用 (化学反応で発生する HT ガスの定量検出)」
五十棲泰人、戸崎充男、古屋仲秀樹
日本アイソトープ協会 アイソトープ・放射線研究発表会 第 53 回
東京大学 弥生講堂 2016.

「酸化マンガン電極膜を用いた水中のトリチウムの分離と回収」
古屋仲 秀樹、五十棲 泰人
電気化学会第 83 回大会
大阪大学吹田キャンパス 2016.

「 Development of Tritium Gas Monitor-Measurement of Tritium Concentration in Deuterium Gas-」
Yasuhito Isozumi1), Mitsuo Tosaki1), Shoji Isozumi2) and Takao kawano3)
The 11th International Workshop on Ionization Radiation Monitoring.
Chiyoda Technol, Oharai, 2016

「 Extraction of tritium from water using membrane containing protonic manganese oxide spine」

H. Koyanaka, and Y. Isozumi
The Chemica 2017 Conference
Melbourne, Australia 2017.

6 . 研究組織

- (1) 研究代表者
五十棲 泰人 (ISOZUMI Yasuhito)
京都大学 名誉教授
研究者番号 : 50027603
- (2) 研究分担者
戸崎 充男 (TOSAKI Mitsuo)
京都大学 環境安全保健機構
研究者番号: 70207570