

(16)Ar-41 を用いた通気式電離箱レスポンス評価に関わる研究

(国研)産業技術総合研究所 分析計測標準研究部門

柚木 彰

近畿大学原子力研究所

山田 崇裕

京都大学複合原子力科学研究所

矢島 浩

はじめに

原子力発電所や再処理施設等で用いられる放射性ガスモニタのレスポンス試験が出来るよう、産総研では放射性ガスの放射能標準を維持している[1-3]。現在のところレスポンス試験が出来るのは入手が比較的容易なKr-85だけであるが、同様に代表的な放射性希ガスであるAr-41及びXe-133についてもレスポンス試験が出来るよう、標準器の校正に取り組んでいる。

Xe-133は半減期5.2475日[4]、Ar-41は半減期が僅か109.61分[4]しかなく市場での入手は難しい。特にAr-41は製造手段がない限り入手できない。そこでAr-41から取り組むこととし、原子炉で中性子照射によりAr-41を生成して、放射能絶対測定装置による単位体積当たりの放射能測定と、通気式電離箱(大倉 I-4096 01/06)のレスポンス試験を実施したので報告する。

Ar-41の生成

Ar-41はアルゴンの安定同位体であるAr-40に原子炉からの熱中性子を照射して生成した。まず、高純度Ar-40ガスを容積約10 cm³の石英ガラス製の容器[5]に300 hPaまで充填した。図1に容器の外形を示す。容器は浮力がかからないように十分に空気を抜いた2重のビニール袋に入れ、穴の開いた容積500 cm³のポリエチレン製容器に入れた。



図1. 照射用の石英ガラス容器の外形



図2. KUR傾斜照射孔の上部水槽
(水槽の底に傾斜照射孔の入り口が見えている)

照射時はポリエチレン容器を専用の金属ホルダーに納め、図2に示す京都大学複合原子力科学研究所の試験炉KURの傾斜照射孔の底まで下ろした。1MWで運転中の傾斜照射孔の底で約60秒間中性子を照射した。熱中性子束は公称値で $7.84 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ であった。 $^{40}\text{Ar}(n, \gamma)^{41}\text{Ar}$ 反応により約

300 kBqが生成した。

照射後は金属ホルダーを引き上げ、水中でポリエチレン製容器を取り外して、炉水を排出した後、ホットセルに持ち込んで、ビニール袋に入れた石英ガラス容器のみを取り出し、輸送容器に入れて車両運搬で近畿大学原子力研究所に持ち込んだ。

放射能測定の実理

放射性ガスの単位体積当たりの放射能を測定するために、P-10ガス(Ar+10%メタン混合ガス)等の計数ガスを充填した通気式比例計数管を用いる。図3に示すように比例計数管の両端にはフランジがあるために電荷収集効率やガス増殖度が比例計数管の中央付近と端部で異なっている。そのため、単位体積当たりの放射能を正確に測定することが出来ない。そこで、端部の構造が同じで長さが異なる複数の比例計数管を直列に接続して端部の影響を相殺する。長さの異なる比例計数管について計数の差は、端部の影響を受けない領域の内容積の差に対応する。つまりこの計数の差を内容積の差で除して得られた値が放射能濃度になる。実際には複数の比例計数管の有効体積を横軸に、それぞれの比例計数管からの正味計数率を縦軸にとってプロットし、その傾きを単位体積当たりの放射能としている。なお、放射性ガスの単位体積当たりの放射能を表す際には、温度と圧力を指定する必要がある。一般的には20℃、1気圧(101.3 kPa)が用いられることが多い。

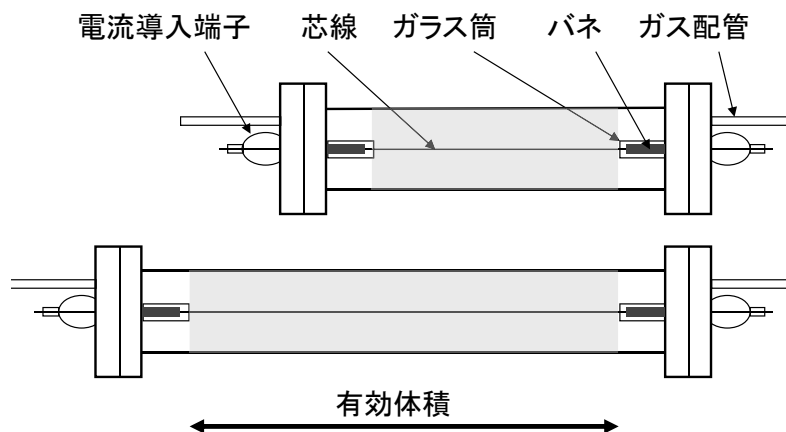


図3. 通気式比例計数管の断面図

通気式電離箱の校正

比例計数管の担体ガスには、P-10等、電子の易動度が大きく、電子付着が小さいガスを用いる。一方、放射性ガスモニタが測定対象とするのは、空気中の放射性物質の放射能であるため、空気が担体となる。しかし、これでは比例計数管は良好に動作しない。そこでP-10ガスを担体として通気式比例計数管で放射能濃度を決めた放射性ガスで通気式電離箱のレスポンスを決定し、別途そのレスポンスを、P-10ガスを担体としたものから乾燥空気を担体としたものに換算する事で、放射性ガスモニタのレスポンスを決定できるようにしている。

通気式電離箱は一般的に円筒形で中心に棒状の電極が取り付けられた直流電離箱である。担体ガスの電離電流を測定しているので、仮に放射能が同じであっても電離箱内の担体ガスの分子数が変われば信号電流も変わってしまう。そこで、レスポンスを決める際は担体ガスが標準状態の場合に得られる電流に換算している。

測定装置

放射化で生成したAr-41が収められた容器は、図4に示す放射性ガスの希釈及び混合配管のV5に接続する。Ar-41は、希釈及び混合配管を数パスカル程度まで排気した後にV5を開けることによって、配管中に拡散させる。その後、V7を通してP-10ガスを101.3 kPa入れて、PUMP1によって約20分間Ar-41とP-10ガスを混合させる。これによって、図4左側の通気式比例計数管と、右側の通気式電離箱に、単位体積当たりの放射能が等しいAr-41ガスが充填されることになる。比例計数管の収納容器には空気ポンベから乾燥空気を流し、ガラスフィードスルー表面での電流の漏れを抑制し、2 kV以上の電圧印加を可能にした。

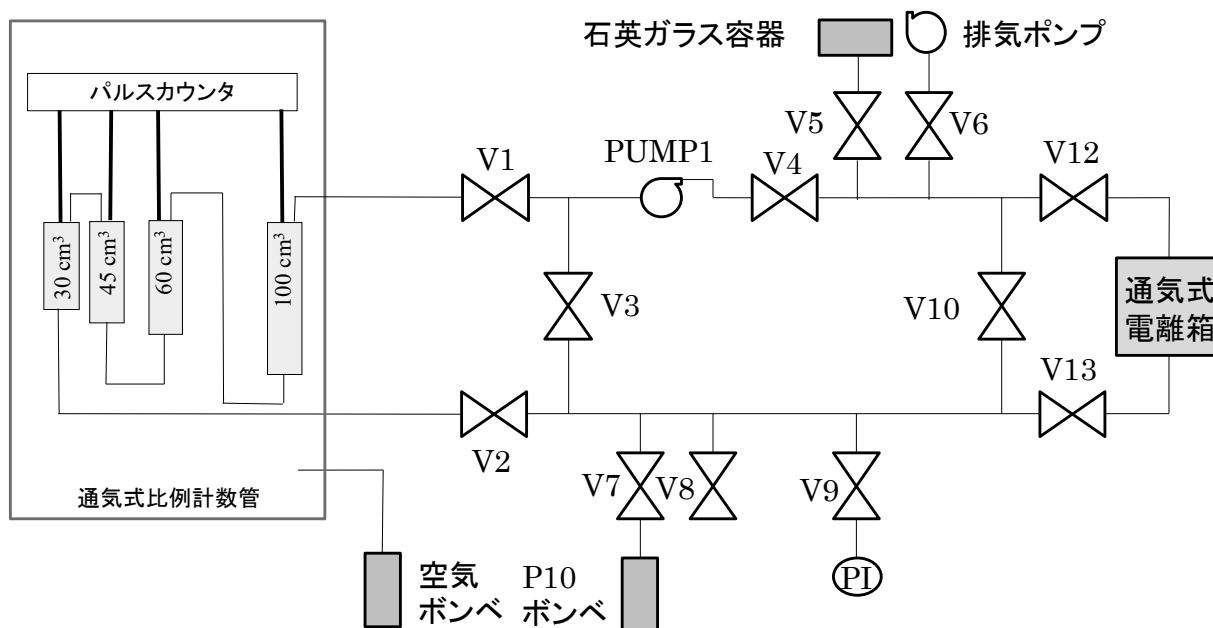


図4. 比例計数管及び電離箱の接続とガス配管系統図

比例計数管には前置増幅器 (CANBERRA 206) を介して高圧電源装置 (CANBERRA 3125) から高電圧を供給した。比例計数管の出力はそれぞれ前置増幅器を通して、主増幅器 (ORTEC 572A、CG: 500、FG:10、ST:0.5 μ s、ユニポーラパルス出力) で増幅及び波形整形を行い、シングルチャンネル波高分析器 (ORTEC 551) で波高弁別を行った。弁別レベルは0.5 Vとし、背面のLLOUT出力は、不感時間を12 μ sに設定した不感時間生成器 (ASDEC 8CH DEAD TIME GENERATOR) に入力した。不感時間生成器は設定した不感時間内に到達した信号を通さないため、まひ形の不感時間補正が出来る。不感時間生成器の出力は積算計数器 (NAIG E-541/E-542) で計数した。波高スペクトルは主増幅器の出力を、多チャンネル波高分析 (ORTEC EASY-MCA-2k) に入力して取得した。電流測定は、プラトー領域に十分入る電圧として通気式電離箱の容器壁に-600 Vを印加し、中心の陽極電極から電流を読み取った。電流読み取りは微小電流計 (Keithley 6514) を用い、電圧印加には直流電源 (松定PL-650-0.1) を用いた。

結果と考察

上記測定装置を用い、各比例計数管に印加した電圧と、得られる正味計数率との関係 (プラトー特性) を求めた。正味計数は測定で得られた計数率からバックグラウンド計数率を減じて求め、さらに波高分布スペクトルを用いて波高弁別電圧をゼロにした場合に得られる計数に補正している。図5にプラ

ト一領域となった印加高電圧1.9 kVでの正味計数率と比例計数管の体積との関係を示す。測定により得られた4点から最小二乗法で近似直線を求め、その傾きを単位体積当たりの正味計数、すなわち単位体積当たりの放射能とした。

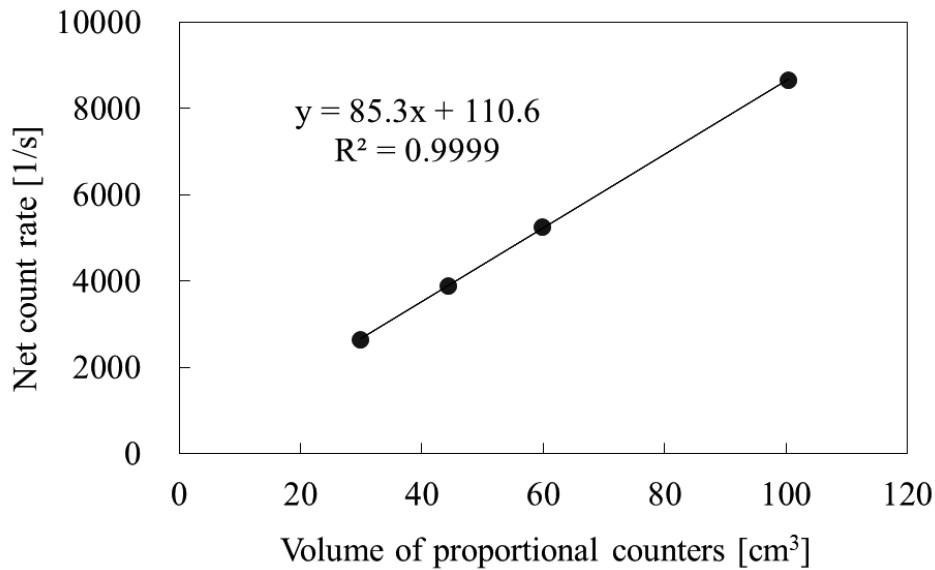


図5. 通気式比例計数管の有効体積と正味計数の関係

測定に先立って、高純度ゲルマニウム検出器を用いたガンマ線スペクトル分析により、製造したAr-41の不純物混入の有無を検査した。放射性ガスの放射能絶対測定に影響する不純物は見当たらなかった。図6にその波高スペクトルを示す。

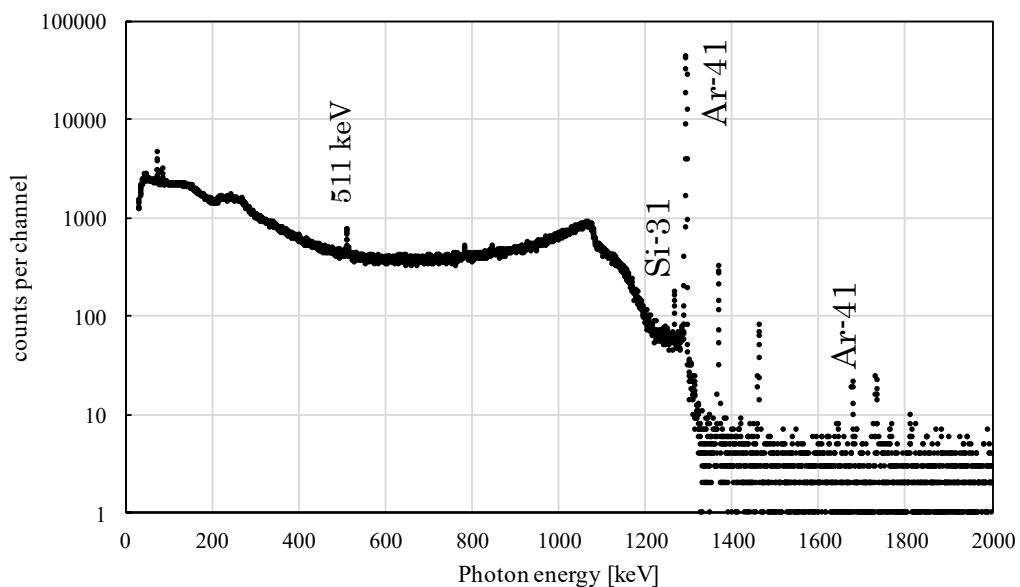


図6. 高純度ゲルマニウム半導体検出器で測定したAr-41からのガンマ線スペクトル

図5に示すように、Ar-41の単位体積当たりの放射能 (A)は標準状態で $85.3 \text{ Bq}\cdot\text{cm}^{-3}$ となった。このガスを図4に示した希釈・混合配管を通じて通気式電離箱に導き、その出力電流 (I)を測定したところ、

標準状態に換算して24.0 pAが得られた。従って通気式電離箱(大倉 I-4096 01/06)のレスポンス(C)は $C=I/A=0.281\text{ pA (Bq cm}^{-3}\text{)}^{-1}$ となる。測定の不確かさについては、現在評価中である。

今回の測定において、通気式比例計数管の設置間隔が70 mmであった。Ar-41からの1.294 MeVガンマ線の光子放出割合が99.2 %と高く、Kr-85の測定と異なりガンマ線の影響が無視できないため、補正出来るよう検討を継続している。

経過報告

原子力発電所や再処理施設等から放出される放射性ガスの放射能濃度を監視する、放射性ガスモニタの校正に用いる通気式電離箱の、Ar-41からの放射線に対するレスポンス評価に取り組んでいる。今回、近畿大学原子力研究所に、複数の通気式比例計数管によって構成される放射能の絶対測定システムを一時的に設置し、放射性ガスの放射能測定と、通気式電離箱のレスポンス試験ができる体制を整えた。その後、京都大学複合原子力科学研究所の試験炉KURで安定同位元素のAr-40に熱中性子を照射してAr-41を300 kBqを生成し、近畿大学原子力研究所に持ち込んで、放射能絶対測定装置による単位体積当たりの放射能測定と、通気式電離箱(大倉 I-4096 01/06)のレスポンス試験を実施した。

今回の測定で得られた結果について、ガンマ線の影響などの補正の検討を続けると共に、Xe-133を用いた試験の準備を進めている。また、放射性ガスモニタのレスポンスのエネルギー特性に係わる先行研究[6]との比較も実施する予定である。

参考文献

- [1] A. Yunoki, et. al., Activity measurement of ^{85}Kr by a large volume balloon technique Applied Radiation and Isotopes, Vol. 68 (2010) pp.1340-1343.
- [2] A. Yunoki, et. Al., Measurement of the response-ratio of an ionization chamber filled with dry air to that filled with P-10 gas in the calibration of gas monitors, Vol. 134 (2018) pp.325-328
- [3] M Unterweger, L Johansson, L Karam, M Rodrigues and A Yunoki, Uncertainties in internal gas counting, Metrologia 52 (2015) S156-S164.
- [4] アイソトープ手帳 11版、公益社団法人日本アイソトープ協会、丸善株式会社(2011年) ISBN978-4-89073-211-1 C3040.
- [5] 株式会社 藤原製作所、東京都北区西ヶ原1-46-16.
- [6] 吉田 真、他「放射性ガスモニタの放射能直接測定に基づいた校正法」 RADIOISOTOPES. Vol. 42 No.8 (1993) pp. 452-460.