

[様式2 (汚染水処理対策委員会に報告し一般公開)]

## 提案書

技術分野	⑥ 地下水等の挙動把握
提案件名	トリチウムとストロンチウムのシンチレーション比例計数管測定
提案者	今仁和武

## 1. 技術等の概要

## 1. 特徴

地下水トリチウム T からのベータ線(<18 keV) 検出限界は 1 Bq/cc、ストロンチウム Sr90 のベータ線 (<2.3Mev) 検出限界は 0.8Bq/L を、数時間で測定する。汚染水中のストロンチウムに高検出効率の検出器として、円筒形のガスシンチレーション比例計数管一對にアルミ化マイラー窓とし、速い電子ドリフト速度をもつ作動ガス CF<sub>4</sub>(1%Xe)を用いて、一對の光電子増倍管で同期測定する。トリチウム水のベータ線量をモニターするため、シンチレータ粒子を充填し一對の光センサで同期測定する。空气中 T は重水の選択膜を透過して、CF<sub>4</sub> に 1%Xe を混入して比例計数管でベータ線測定する。シンチレーションと比例計数管の相関性は良く、図 1 のように現場でも測定できる重量 15 kg とする。

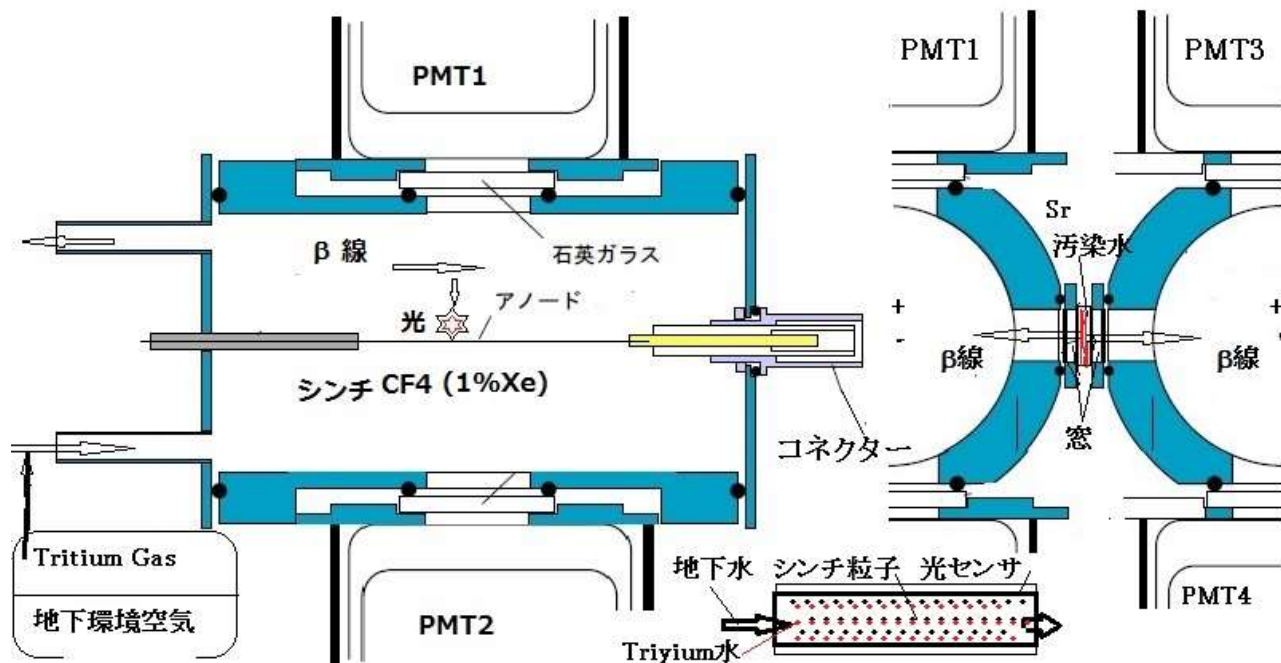


図1 トリチウムとストロンチウムの測定装置

## 2. 仕様

地下サンプリング水に含まれる放射性物質濃度(分析対象:トリチウム、ストロンチウム)を数時間で測定でき、サンプリング装置の取扱いが簡易で、現地で簡易にメンテナンスできる。ストロンチウム Sr90 水のベータ線限界値 0.8 Bq/L を測定するため、Sr に高い検出効率をもつガスシンチレーション比例計数管を、一対用い Sr 水をパンケーキ状態にし、作動ガスに CF<sub>4</sub>(1%Xe)を用いて、一対の光電子増倍管 PMT で同期測定する。空気中のトリチウム線量をモニターするため、浸透膜として芳香族ポリアミドのセラミックハニカムを使い、CF<sub>4</sub> に混入して比例計数管でベータ線をガスシンチレーション測定する。空気中のトリチウムを連続測定するため、シンチレータ粒子を充填して、一対の光センサで同期測定する。現場でも測定できるように、重量は 15 kg 以下とする。

### 3. 性能

表 1 のように、軽 H<sub>2</sub>O、重水と三重水素水の性質を活用し、水の浸透膜として芳香族ポリアミドのセラミックハニカムを使い、空気中のトリチウムを CF<sub>4</sub> に混入して比例計数管でベータ線を検出すると共に、シンチレーション光でも測定する。作動ガスに CF<sub>4</sub>(1%Xe)を用いて、高い検出効率を Sr にもつ一対のガス比例計数管の測定には、アルミ化マイラー窓を通して、一対の光電子増倍管 PMT でシンチレーションを同期測定する。トリチウムからのベータ線(<18 keV) 検出限界値は 1 Bq/cc、ストロンチウム 90 のベータ線(2.2 Mev) 検出限界値は 0.8 Bq/L を、数時間で測定できる見通しである。空気中のトリチウムを連続測定するため、シンチレータ粒子を充填して、一対の光センサで同期測定する。

表 1 軽 H<sub>2</sub>O、重水と三重水素水の性質

	軽水	重水		三重水	
密度 g/cc	1.00	1.11		1.22	
拡散係数 A2 p/s	0.229	0.234		0.244	
粘性 mPa s	0.9	1.1		1.4	
結合エネルギー	459 kJ/Mole	466 kJ/Mole		8481 keV	
構造式	H-O-H	D-O-D	D-O-H	T-O-T	T-O-H
沸点 °C	100	101	100.7	101.5	100.8
凝固点 °C	0.0	3.8	2.1	4.5	2.4

さらに図 2 のように、PMT で測定されたシンチレーション数と、比例計数管でベータ線測定値とは比例関係があるようにできる。

比例計数管 (cpm)

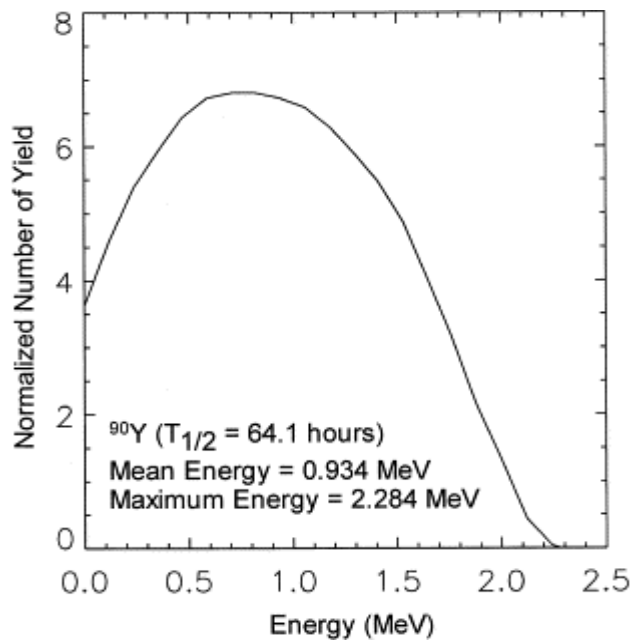
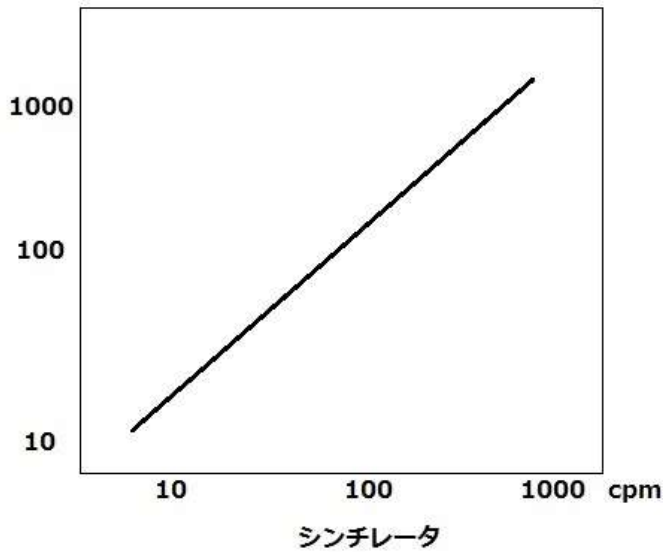


図2 シンチレーション・比例計数管の相関性、Sr90 スペクトラム

地下水のトリチウム測定法として図3のように、トリチウム水からのベータ線量18 keVモニターとして、水の浸透膜を比例計数管の窓とすることを考案した。水の浸透膜としては、アラミド(芳香族ポリアミド)は全芳香族ポリアミドの芳香環をアミド結合で結んだ高分子で、非常に優れた耐熱性と強度をもつ繊維が作られ、ポリ(p-フェニレンテレフタルアミド)繊維はデュポン社のケブラーKevlar などがある。汚染が高濃度の場合は計数管窓に浸透膜を張り、低濃度の場合は計数管作動ガスをセラミック浸透膜ハニカムに通して常時検出する。固体シンチレータとして、CaF<sub>2</sub>(Eu)やCsI(Tl)で連続モニターする。

β ray spectrum

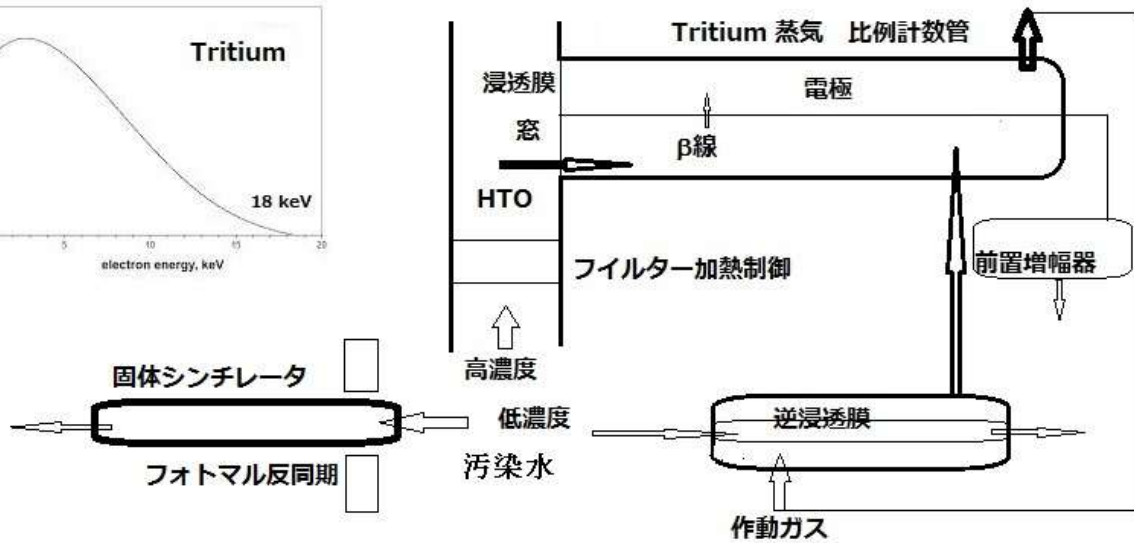
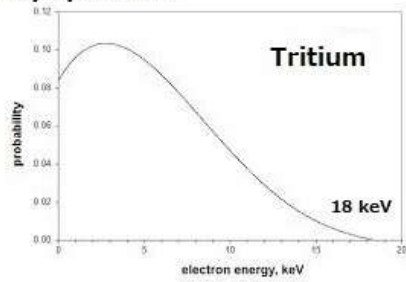


図3 トリチウム水からのベータ線量モニター

4. 保有者 今仁和武

2. 備考

・開発・実用化の状況 (国内外の現場や他産業での実績例、実用化見込み時期を含む)

京都大学と陽子加速器施設 J-PARC は、ガスシンチレーション比例計数管を用いた高検出効率をもつ荷電粒子検出器を開発中である。

実用化工程管理

25年度	10月	11	12	1	2	3						
試作機	設計			試作		試験						
26年度	4月	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
実機	設計			製作				運転				

・開発・実用化に向けた課題・留意点

トリチウム水ベータ線量 18 keV モニターとして、比例計数管やシンチレータ材料

・その他 (特許等を保有している場合の参照情報等) 特許出願中

補足資料 1. 「ガスシンチレーション比例計数管を用いた高い検出効率をもつ荷電粒子検出器の開発」

京都大学大学院理学研究科 物理学 修士論文 白杵亨 2009 年

2. K. Imani, 1971 AIAA Conference on Sensing of Environmental

KINETIC STUDIES OF FISSION FRAGMENT,  ${}^3\text{He}(n,p)t$ ,  
AND GAMMA RAY PRODUCED PLASMAS\*

W. H. Ellis and K. Imanit  
Department of Nuclear Engineering Sciences  
University of Florida  
Gainesville, Florida

Abstract

The pulsed ionization chamber diagnostic technique has been applied to the study of plasmas produced by nuclear methods. Loss coefficients have been measured for pressure (temperatures) of 1-27 atm (300-823°K), ionization rates of  $10^7$ - $10^{14}$   $\text{cm}^{-3}\text{sec}^{-1}$ , and densities of  $10^5$ - $10^{11}$   $\text{cm}^{-3}$ . Second order loss coefficients obtained at 300°K were  $\alpha_2(1-10 \text{ atm } {}^3\text{He}) = 5.3-30 \times 10^{-7}$ ,  $\alpha_2(1\&10 \text{ atm } {}^4\text{He}) = 7.0\&16 \times 10^{-7}$ ,  $\alpha_2(1\&10 \text{ atm } {}^3\text{He-CO}_2) = 1.8 \times 10^{-6}$ , and  $\alpha_2(1 \text{ atm Ar-N}_2) = 9.2 \times 10^{-6}$  ( $\text{cm}^3/\text{sec}$ ). Fission produced plasmas yielded  $\alpha_2$ 's 3-4 times larger than gamma rays. The enhancement, shown to be due to columnar recombination, agreed with that calculated from theory to within 3-4%. He  $\alpha_2$ 's exhibited a  $N_a^{0.6}$  atom density dependence and maxima at approximately 450°K, thereafter assuming a  $T^{-9/2}$  dependence. The  $N_2$  and  $\text{CO}_2$  mixtures exhibited  $T^{-3/2}$  dependence throughout.

Introduction

At the First Uranium Plasma Conference in 1970 early results of the study of the equilibrium electron-ion kinetics of plasmas produced by the charged products of the  ${}^3\text{He}(n,p)t$  reaction in high pressure helium gas were reported<sup>(1)</sup>, together with the theory and description of the operational characteristics of the pulsed ionization chamber (PIC) plasma diagnostic system that was used to obtain the kinetics data. Subsequent to that time, the kinetics measurements have been extended to include the pressure and temperature dependence of plasmas produced with fission fragment and gamma ray ionization in pure helium gas ( ${}^3\text{He}$  and  ${}^4\text{He}$ ) and other rare gas mixtures including  ${}^3\text{He-CO}_2$  and  $\text{Ar-N}_2$ . The kinetics measurements of the fission fragment produced plasmas have yielded results indicative of the columnar recombination effects of the type alluded to by Orvis<sup>(2)</sup> in his paper presented at the same conference and predicted in theoretical papers by Wilhelm<sup>(3)</sup>, Jaffé<sup>(4)</sup>, and Clay<sup>(5)</sup>.

In his paper Orvis described the results and implications of a numerical study that he was undertaking on the dynamics and kinetics of ionization columns produced in non-electron-attaching gases by energetic charged nuclear particles<sup>(6)</sup>. He established the criteria for

collective (retarded) diffusion to occur, described its space and time characteristics and conducted a trial calculation with which to compare the predictions of the theories of Jaffé-Clay<sup>(4)</sup> and Wilhelm<sup>(3)</sup>, and to evaluate the effect of columnar recombination on the conductivities that could be expected for a plasma that could be produced in the core of a high temperature gas cooled nuclear reactor by fission fragment ionization. The data he presented indicated that Wilhelm's theory of columnar recombination underestimated the density loss, while that of Jaffé-Clay's overestimated the loss. The subsequent observation of columnar recombination type kinetics for fission fragment produced plasmas has permitted an experimental evaluation of the analytic treatments of Jaffé-Clay and Wilhelm, and the numerical calculations of Orvis. The present paper is principally addressed to such an evaluation.

Equilibrium Electron-Ion Kinetics --  
Measurement and Systematics

At the previous conference the methods of nuclear ionization and equilibrium plasma kinetics parameter measurements and the results of such measurements for room temperature helium plasma were described in which the slowing down of the  ${}^3\text{He}(n,p)t$  reaction products were used to generate a plasma within the sensitive volume U of an ionization chamber and a combination of saturation ion current and pulsed modes of operation was used to measure quantities from which the source S and the homogenous plasma density  $N_H$  could be directly determined. The source term S was obtained from saturation ion current  $I_s$  measurement where

$$S = I_s/eU. \quad (1)$$

The steady state equilibrium ionization density,  $N_s$ , for an ion chamber of cylindrical coaxial electrode geometry was shown to be related to the output voltage signal  $v(t_c)$  at the time of electron collection  $t_c$  for the pulsed mode of operation of the ion chamber in the following manner

$$v(t_c) = -(N_s eU/C) \left[ 1 - \frac{1}{2 \ln(b/a)} \right] \quad (2)$$

where C is the anode circuit load capacitance and b/a is the ratio of the outer to inner electrode radii.

