

「河野研究室便り」

CaF₂-固体シンチレーターを用いた
トリチウム水連続測定装置

1. はじめに

排水や廃液に含まれるトリチウムの濃度測定には、多くの場合、液体シンチレーション測定装置（液シン）が用いられます。しかしながらこの装置による測定では、液体シンチレーターの有機廃液が生じるばかりでなく、連続測定が不可能であり、結果が出るまでに、結構、時間がかかります。この問題を解決するため本研究では、固体シンチレーターによるトリチウム水連続測定装置の開発に取り組み、フッ化カルシウム（CaF₂）を用いてフローセル型の検出器を試作しました。また、トリチウム水による性能評価試験を行って、液シンに代わるトリチウム測定装置の可能性を検討しました。

2. 装置の構成とフローセル

使用しました CaF₂は顆粒状をしており、テフロンチューブに封入して使用しました。このチューブをフローセルと呼びますが、試作した装置には、フローセルのほかに 2 本の光電子増倍管、高電圧回路、信号処理回路などが組み込まれており、送液ポンプで試料水をフローセルに送り込むことにより、トリチウム濃度の連続測定を行うことができます。

3. 性能評価試験と結果

性能評価試験では、粒径 300 μm、100 μm、50 μm の CaF₂で製作した 3 種のフローセルを用いました。それぞれ Type-1、Type-2、Type-3 と呼ぶことにします。また性能評価のために 3 種のトリチウム水（10 Bq/ml、50 Bq/ml、100 Bq/ml）を準備し、フローセルに流し込みながら、測定を行いました。

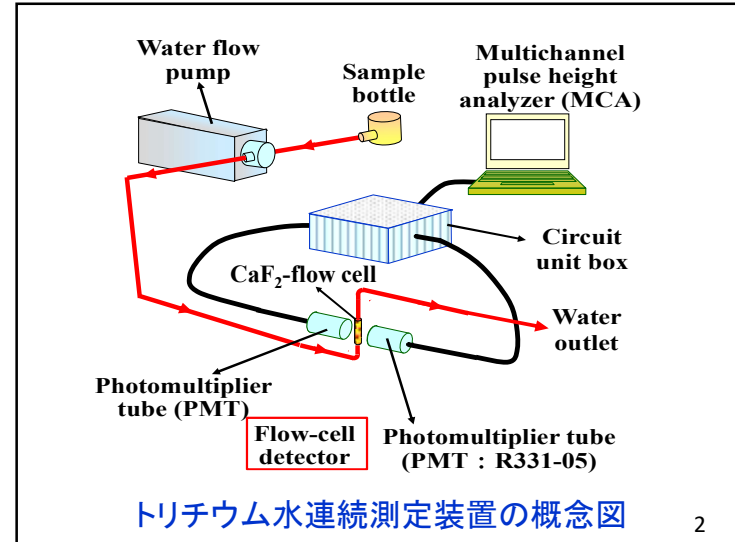
まず、測定時間を 10000 秒に設定した場合で、トリチウム濃度と計数率が直線関係にあることを確認しました。この結果は、本装置が正常にトリチウムを検出しており、液シンに代わるトリチウム測定装置としての可能性があることを示します。しかしながら、実際のトリチウム濃度監視現場で 10000 秒測定は、長すぎます。そのため 600 秒測定を実施しましたが、ほぼ同様の傾向が得られました。さらに検出限界を調べますと、Type-3 の CaF₂フローセルを用いて 10000 秒測定を行った場合で 10 Bq/ml 程度、600 秒測定では 50 Bq/ml 程度であることが分かりました。さらにトリチウム水を直接フローセルに流し込むことによる汚染の影響（メモリー効果）についても評価しました。100 Bq/ml 以下の濃度のトリチウム水と純水を交互にフローセルに流し込んで測定した結果、測定の障害になるようなトリチウム汚染はありませんでした。

令和元年7月22日

CaF₂-固体シンチレーターを用いた トリチウム水連続測定装置

(株)日本遮蔽技研
郡山校正センター
河野孝央

1



2

固体シンチレーターの選択条件

- (1) 化学的に安定であること
- (2) 十分な発光量があること
- (3) 適度な粒径での加工が可能であること
- (4) 入手が容易で、安定に供給されること
- (5) 低コストであること

3

固体シンチレーターの性能比較

シンチレーター	安定性	発光量	粒径	安定供給	コスト
ZnS (Ag)	◎	◎	×	×	×
プラスチック	△	○	◎	△	×
CaF ₂ (Eu)	◎	○	○	◎	◎

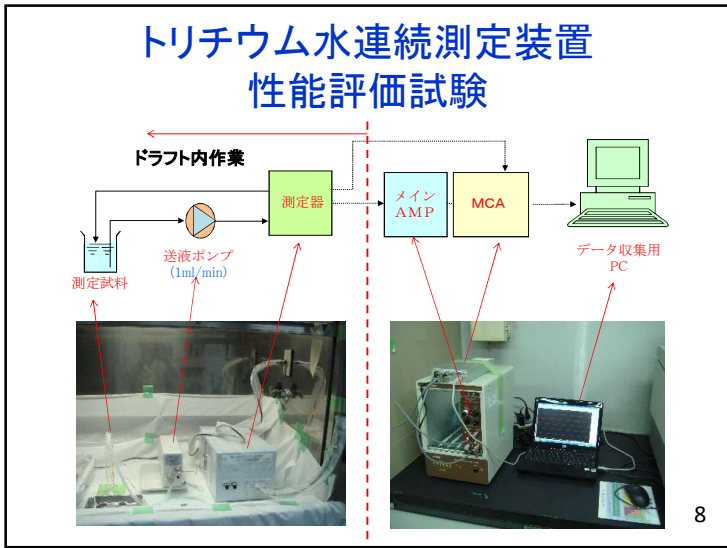
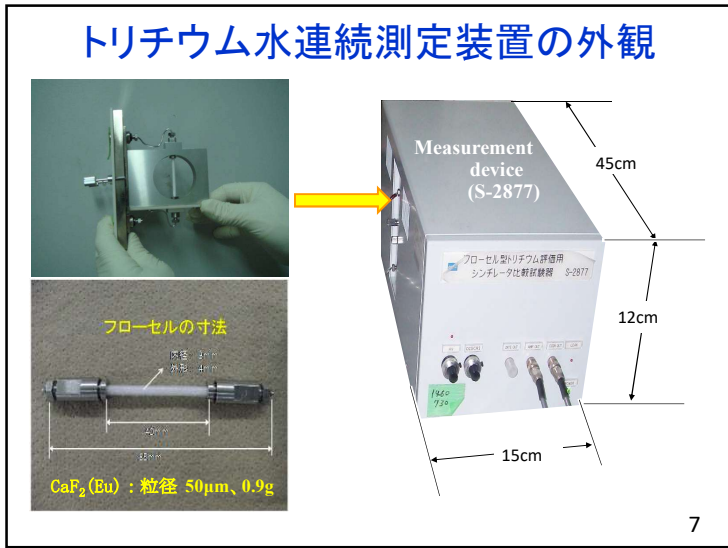
4



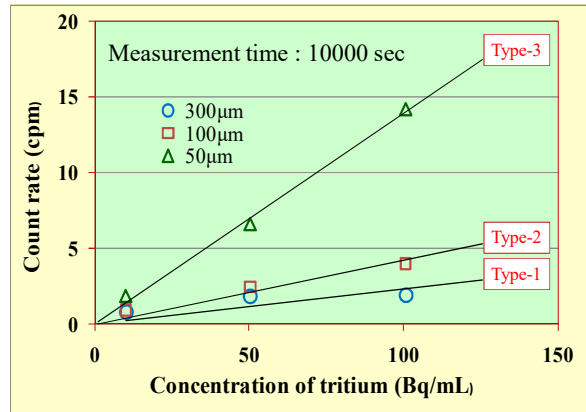
製作したCaF₂フローセルの仕様

セル タイプ	粒徑 (μ m)	重量 (g)	体積 (ml)
Type 1	300	0.85	0.196
Type 2	100	0.85	0.189
Type 3	50	0.90	0.184

6

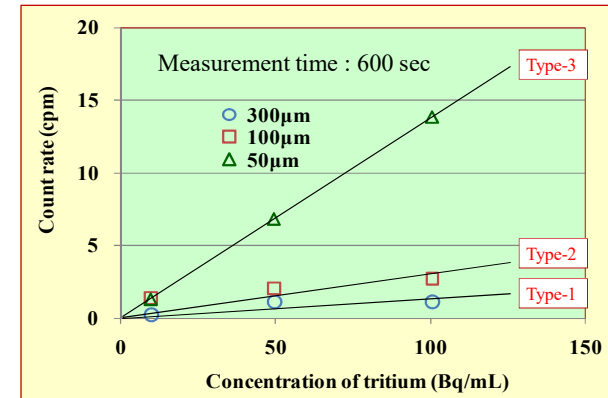


性能評価試験結果 (測定時間: 10000秒)



9

性能評価試験結果 (測定時間: 600秒)



10

計数効率および検出限界 (測定時間: 10000秒)

Tritium sample (Bq/mL)	10000 sec-measurement					
	Counting efficiency(%)			Detection limit(Bq/mL)		
	Type-1	Type-2	Type-3	Type-1	Type-2	Type-3
10	0.674	0.830	1.62	15.9	18.0	6.95
50	0.314	0.437	1.16	33.2	25.5	9.51
100	0.159	0.351	1.25	69.9	30.8	8.96

11

計数効率および検出限界 (測定時間: 600秒)

Tritium Sample (Bq/mL)	600 sec-measurement					
	Counting efficiency(%)			Detection limit(Bq/mL)		
	Type-1	Type-2	Type-3	Type-1	Type-2	Type-3
10	0.210	1.22	1.20	321	42.8	50.4
50	0.192	0.367	1.22	335	159	41.1
100	0.096	0.238	1.23	477	220	39.7

12

試験装置の性能

1. 放射能濃度(トリチウム)と計数率が**直線関係**にあることを確認
2. 検出感度は、 CaF_2 -シンチレーターの**粒径**が小さいほど良い
3. 粒径 $50\text{ }\mu\text{m}$ のセルの場合、**1万秒測定**で **10Bq/ml** のトリチウムを、また**600秒測定**では、 **50 Bq/ml** のトリチウムを検出

13

装置改良の方針

装置の性能を上げるために必要なことは、

(1)バックグランド計数の低減

(2)フローセルの計数率向上

である。今後、**1万秒測定**で **1 Bq/ml** 、また**600秒測定**では、 **5 Bq/ml** のトリチウム検出を目標に、改良を進めたい。

14

謝 辞

以上、紹介させて頂きましたトリチウム水連続測定装置は、私が核融合科学研究所の現役時代に開発したのですが、当時この装置の製作にあたって、応用光研工業株式会社の関係スタッフの皆様方に、また性能の測定評価においては株式会社アトックスの皆様方に、サポートを頂きました。ここに深く感謝致します。

15

参考文献

- (1) TRITIUM WATER MONITORING SYSTEM BASED ON CaF_2 FLOW-CELL DETECTOR, T. Kawano, et al., FUSION SCIENCE AND TECHNOLOGY, 60, P.952-955 OCT. 2011
- (2) Shielding Effect on Tritium Water Monitoring System Based on CaF_2 Flow-Cell Detector, T. Kawano, et al., NUCLEAR SCIENCE AND TECHNIQUES, 25, S010401 2014
- (3) Comparative Testing of Various Flow-Cell Detectors Fabricated using CaF_2 Solid Scintillator, Kawano, et al., Fusion Science and Technology, Proceedings of TRITIUM 2013 / [dx.doi.org/10.13182/FST14-T39](https://doi.org/10.13182/FST14-T39) (2014)
- (4) Portable Tritium Water Monitoring System Based on a CaF_2 Flow-Cell Detector Shielded with 3-cm Lead, T. Kawano, et al., The IRPA 2014 Congress (IRPA-2014), Jun 22- 27 2014 in Geneva Switzerland, Centre International de Conférences Geneva

16