



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	ガス入り計数管のガス材料改善 (1) : 放電基礎パラメータの測定
Author(s)	関之山, 勝博; 下妻, 光夫; 山口, 成厚 他
Citation	北海道大学医療技術短期大学部紀要, 1, 93-100
Issue Date	1988-10
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/37487
Type	departmental bulletin paper
File Information	1_93-100.pdf



ガス入り計数管のガス材料改善 (1)

—放電基礎パラメータの測定—

関之山勝博, 下妻 光夫, 山口 成厚, 酒井 洋輔*

Improvement of Counter Gas (1).

Measurement of Basic Discharge Parameters

Katsuhiro Sekinoyama, Mitsuo Shimozuma,

Shigeatsu Yamaguchi and Yosuke Sakai*

Abstract

A purpose of the present study is improvement of counter gas. Basic parameters (the ionization and the secondary ionization coefficients) of Ar+freon mixtures were measured, and were compared with PR gas (Ar+10%CH₄). Freon gases used here were CF₄, C₂F₆, C₃F₆, C₃F₈ and C₄F₈. The ionization coefficient in Ar+1% freon mixtures were in agreement with that of PR gas. However, the secondary ionization coefficient in Ar decreases rapidly by adding 1%freon by partial pressure. The rapid decrease may be accounted for qualitatively by the strong quenching power of freon gases over the excited states of Ar. Particularly, the quenching power of C₃F₈ was large compared with that of CH₄, CF₄, C₂F₆, C₃F₆ and C₄F₈. Accordingly, there was little difference between electron ionization amplification of Ar+C₃F₈ mixture and PR gas, and the quenching power of C₃F₈ against Ar is larger than that of CH₄. From these results, it appears that Ar+C₃F₈ mixture has a good characteristic for counter gas.

和文要旨

放射線計測用ガス入り計数管の特性改善を目的として、PRガスに代わる材料ガスを、フロンガスと希ガスの混合ガスに取りその適性を検討する研究を始めた。Arに1%のフロンガス、

CH₄, CF₄, C₂F₆, C₃F₆, C₃F₈, C₄F₈それぞれを混合し、これら混合ガスの電離係数を20~80V/cmTorrの範囲で測定し、全測定範囲でAr+C₃F₈を除き、Arのそれを大きく変えることがなかった。二次電離係数 γ を測定した結果、どのフロンガスでもAr二次作用をお

北海道大学医療技術短期大学部診療放射線技術学科

*北海道大学工学部電気工学科

Department of Radiological Technology, College of Medical Technology, Hokkaido University

*Department of Electrical Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University

さえることが明らかに確認され、特に Ar と 1 % の C_3F_8 の混合ガスで、Ar の γ 値より 2 桁程も減少することがわかった。これは CH_4 混合より抑制力が大きく、電離係数が同じで電子増倍力が変わらず Ar のクエンチング作用が大きいいため、放射線カウンター材料ガスとしての適性を持っている可能性が認められた。

1. はじめに

放射線計測としての GM 管や比例計数管を用いる方法は、確立された測定法として使用され、測定器も完成度が高いものとされている。これら計数管は、1940, 50 年代に多くの研究者により研究され改善が大いに進んだ。現在では、特殊なものを除きあまり研究がなされないようである。しかし、これらの計数管は、完成度が高いとされているが、最近の他分野における目覚ましい発展から開発される新材料や新技術を利用することで更に完成度を増し、また新しいタイプの計数管が開発される可能性があると考えられる。

ガス入り計数管で使用されている材料ガスは、微少な電子雪崩を大きな電離増倍により高出力パルスとして外部回路に取り出せ、更に自続放電の原因となるガス励起種からの光子や準安定励起原子分子を速やかに抑え、雪崩パルスの立ち下がり急激にし、不感時間を短縮させる役割が必要がある。この点について Q ガスや PR ガス以外で可能性のある材料ガスとして、最近、大出力ガスレーザ分野で使われることが検討されている大電流スイッチング・ナノ秒技術^{1, 2)}において使われようとしている、希ガスとフロンガス、また H_2 , N_2 , O_2 , 空気などの一般的なガスとフロンガスの混合ガスがある。これは、この混合ガスによる相乗効果を期待し、例えば電子移動速度の増加、また電子付着作用によるトリガーオフ時の高電界時における高インピーダンス保持等を実現させている³⁾。また、近年、放射線入射位置検出として使われる MWPC (Multi Wire Proportional Chamber) の材料ガスに⁴⁾、より高出力、高分解

能が得られるガス材料として、PR ガスにフロン系ガスの添加によるマジックガスがある。このガスの開発で、MWPC を SQS (Self Quenching Streamer)⁵⁾ モードで動作させることが効果的であるという研究報告もある。このように、フロン系ガスを使って新しいガス材料の開発が盛んに行われており、この放射線計測の分野においてもフロンの利用が考えられる。

本研究は、これらのことを考え、まず Ar と各種フロンガス、 CH_4 , CF_4 , C_2F_6 , C_3F_8 , C_3F_8 , C_4F_8 との混合ガスの放電基礎データについて測定し、MWPC を含めたガス入り計数管の特性改善を行なおうとするもので、これらの信号増幅媒体であるガス材料の最適組合せや使用最適条件を開発することが最終目的である。本報告は、その研究の途中経過である。

2. 実験装置と方法

図 1 に、各種フロンガス、 CH_4 , CF_4 ,

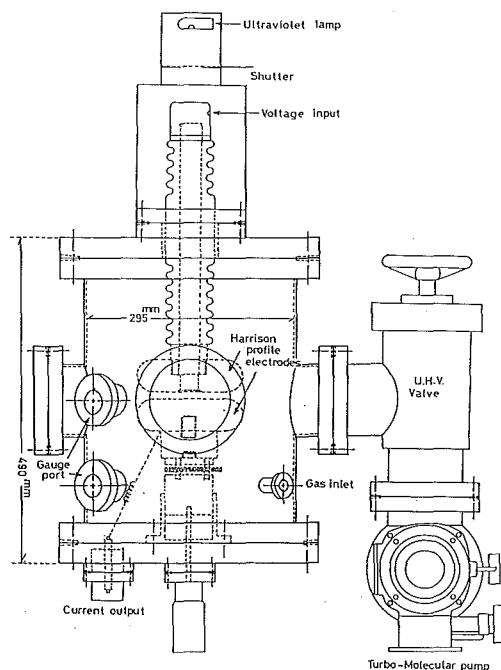


図1 各種混合ガスの基礎データ測定用電離チェンバ

C_2F_6 , C_3F_8 , C_3F_8 , C_4F_8 とArとの混合ガスの放電基礎データを測定するための電離チェンバを示す⁹⁾。直径295mm高さ490mmの円筒形であり、観測窓が付いたステンレス製である。これは、ターボ分子ポンプとロータリーポンプで 10^{-8} Torrまで真空排気できる。更に、不純物混入割合は、気圧にして30分につき 10^{-8} Torrである。また、気圧の設定には、バラトロン気圧計を用い、電圧印加は、高安定直流電源(FLUKE 408B 0-6KV)で行っている。電離電流は、エレクトロンメータ(タケダ理研 TR-84M)で測定した。使用電極はハリソン形状⁷⁾を持つ平行平板穴開き電極(150mm ϕ)である⁸⁾。また、チェンバは実験に先立ち、十分に焼き出し(最高200℃まで)を行った。なお、これらの実験に使用した、試料ガスである各種フロンガス純度は、99.9% (日本酸素(株), ダイキン工業(株))以上である。また、混合ガスとしてのArガスの純度は、99.999% (高千穂化学工業(株))である。

これらのフロンガスとPRガスの混合ガスを市販されている2 π ガスフローカウンター(アロカ(株)FC-1E型)を使用して、放射線源をRaDEFとして電圧・計数率特性を測定した。

3. 実験結果と考察

3.1 放電パラメータの測定

一般的に計数管で使われるPRガス(Proportional Gas)は、Arに10%CH₄を混合したものである。このArは、他のガス、例えばH₂, N₂, O₂, 空気などの一般的なガスに比べ電離係数が大きく電子雪崩の増幅が容易であり、また反応性が低く不活性であることから計数管の材料として適当である。更に放射線によるAr放電中の励起原子(準安定励起分子も含む)Ar*とCH₄の衝突により、非常に効率よくこれの持っているエネルギーがCH₄に移動し、CH₄が解離する。このため、CH₄が放電一次雪崩の後続雪崩発生を抑える(クエンチング作用)⁹⁾。従って、ArとCH₄混合ガスが、適切なガス材料であると言われている。

ここで、CH₄の解離エネルギーの臨界値を示すと、ほぼ10eVであり¹⁰⁾、Arの最低励起エネルギーが11.5eVである¹¹⁾。

このAr*励起原子に対するクエンチング作用が、フロンガスCF₄, C₂F₆, C₃F₈, C₃F₈, C₄F₈に存在するか、またこれらのガスでCH₄より大きなクエンチング作用を持つものはどれか、について実験的に明らかにする。

実験方法は、電離チェンバにより、電極間隔dに対する電離電流Iを測定し、次式から算出されるタウンゼント二次電離係数 γ ¹²⁾、電離係数 α を測定算出する。なお、このパラメータ算出は、線形化最小二乗法によって行った¹³⁾。

$$\frac{I}{I_0} = \frac{\exp(\alpha d)}{1 - \gamma \{\exp(\alpha d) - 1\}}$$

I : 電離電流

I₀ : 電極から放出される電子による電流(初期電子電流)

d : 電極間隔, α : 電離係数

γ : 二次電離係数

本実験では、Arに1%のCH₄, CF₄, C₂F₆, C₃F₈, C₃F₈, C₄F₈それぞれを混合し γ を測定しやすい条件で行った。また、電子雪崩の増倍のパラメータである電離係数 α/P も算出した¹²⁾。しかし、厳密には、フロンガスが電子付着作用を持っているため、電離と電子付着の差である、実行電離係数 $\bar{\alpha}/P = (\alpha - \eta)/P$ が測定されるが、ここでは、1%のフロンガスのため電子付着作用を無視している。なお、Pは0℃における換算ガス圧である。

3.1.1 電離電流増倍曲線と電離係数

それぞれの混合ガスについての電離電流増倍曲線を図2に示す。換算電界E/P = 65.4V/cm Torr, P = 4.6Torrを一定として測定を行った。基本となるArの電離電流は、dの小さい所からすでに二次電離作用により急激な増倍を示してい

る事が認められる。 CH_4 1%を混合する事で、Arの曲線は、大きく変化する。電離係数の違いはあまり認められないが(dの小さい所での直線部分の傾き)、二次電離作用が抑えられ $\text{Ar}+\text{CH}_4$ 混合ガスが放射線カウンター材料ガスとして適当である事がわかる。フロン系ガスを、Arに混合するとどのフロンガスでもArの二次作用をおさえることが明らかに確認される。しかし、 CF_4 は、他のガスよりその作用が小さいようである。また、 C_3F_8 がArの二次作用を最も効率よく抑えるようである。ここで、 C_3F_8 を混合した曲線が他のものと傾向が異なるが、これは後述するが電離係数が増加しているものと思われる。

図3にそれぞれの混合ガスの電離係数を $20 < E/p < 80 \text{ V/cm Torr}$ の範囲で測定した結果をArの本測定値とKruithofとPenning¹⁰⁾の値と共に示す。筆者らのArの実験結果は、KruithofとPenning¹⁰⁾が行った実験結果と広い範囲

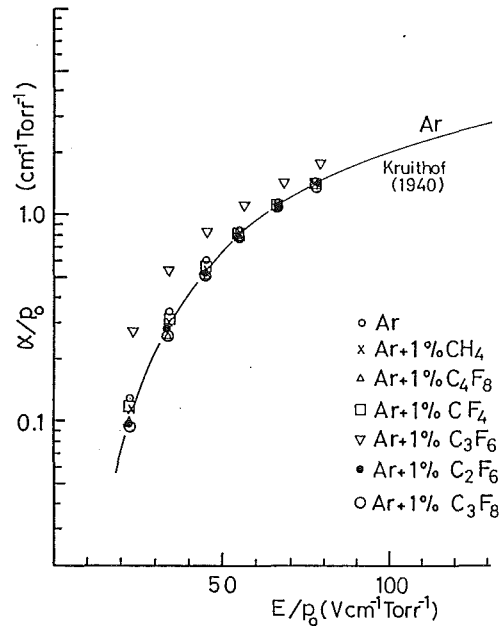


図3 混合ガスの電離係数 α/p ($20 < E/p < 80 \text{ V/cm Torr}$)

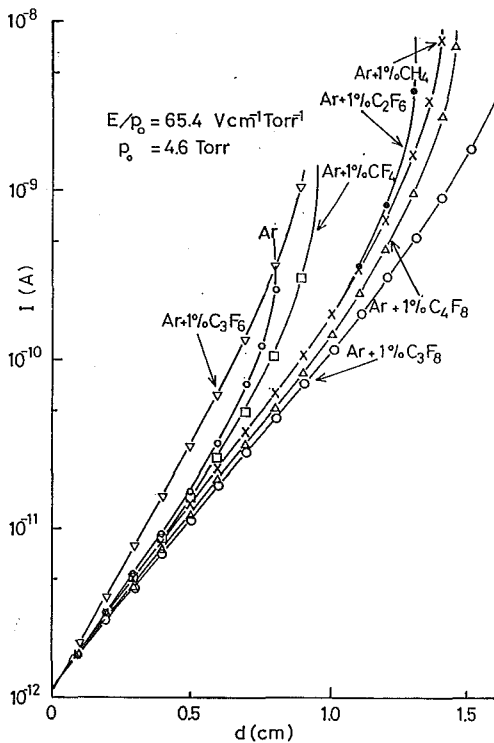


図2 混合ガスの電離電流増倍曲線

でよく一致している。KruithofとPenningの値は、これまでに信頼性のあるものとして他のものと比較されてきた。従って、本実験系、および測定方法の信頼性の確認ができたものと考えられる。 $\text{Ar}+\text{C}_3\text{F}_8$ を除いて、全測定範囲で他の混合ガスに大きな違いはないようである。図2でも示したように、 $\text{Ar}+\text{C}_3\text{F}_8$ 混合ガスは他と違いが現れており、この図から電離係数が増加していることが認められる。この原因は、 C_3F_8 の電離エネルギーが、 10.6 eV ¹⁰⁾とArの準安定励起状態を作る臨界エネルギー約 11.5 eV ¹⁰⁾と近いため少量の C_3F_8 が混合されるとペニング電離を起こすものと考えられる。

3.1.2 二次電離係数

図4に、二次電離係数 γ を $20 < E/p < 80 \text{ V/cm Torr}$ の範囲で測定した結果を示す。この図から、Arにわずか1%の C_3F_8 を混合することで、Arの γ 値を2桁程も減少させる事が出来ることがわかる(C_3F_8 単ガスの γ は、 10^{-7} 以下であ

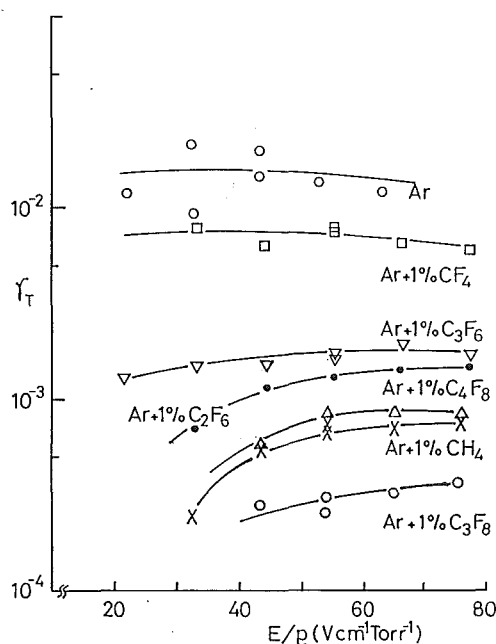


図4 混合ガスの二次電離係数 γ ($20 < E/p < 80 \text{ V/cm Torr}$)

ると考えられる¹⁶⁾。これは、 CH_4 混合より図からわかるように二次作用に対する抑制力が大きい。従って、電離係数が同じで電子増倍力が変わらず、 Ar^+ 励起原子のクエンチング作用が大きい $\text{Ar} + \text{C}_3\text{F}_8$ 混合ガスは、放射線カウンター材料ガスとして適当である可能性が出てくる。ここで問題となることは、 C_3F_8 が電子付着作用を持つことである。 C_3F_8 の電子付着断面積は、低エネルギーにあり、最大値が 2.5 eV に約 10^{-17} cm^2 の大きさを持っている¹⁷⁾。電子付着係数 η/p にしてほぼ $0.2 \text{ cm}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$ ($E/p = 80 \text{ V/cm Torr}$)であることがわかっている¹⁶⁾。このため、計数管の動作範囲において低電界領域では付着作用により電子増倍が十分行われな可能性が考えられる。

3.2 フレオンガスの計数管への適用

基礎パラメータの測定結果やSQSの研究報告から、フレオンガスを混合することで、計数管の不感時間の短縮や高出力パルスの取り出しなどが期待できるので、まず、 2π ガスフローカウンター

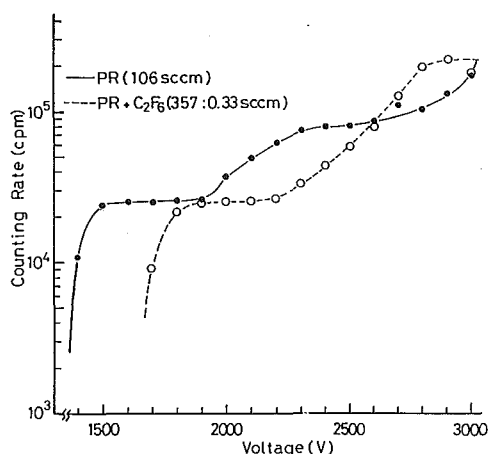


図5 電圧—計数率特性。実線：PRガス，点線：PRガス+ C_2F_6 混合ガス

を使用して、フレオンガス C_2F_6 とPRガスとの混合ガス ($\text{Ar} + \text{CH}_4 + \text{C}_2\text{F}_6$) について電圧—計数率特性を測定した。PRガス ($\text{Ar} + 10\% \text{ CH}_4$) のみの測定結果を図5の実線で示す。印加電圧 $1500-1900 \text{ V}$ に α 線によるプラトーが、また、 $2300-2600 \text{ V}$ 付近に α 線と β 線によるプラトーが見られる。更に、電圧を上昇して行くと 2800 V から急激な増加となり、これ以上の電圧上昇は連続放電を起こすものと思われる。なお、PRガスのガス流量は、約 106 sccm である。

はじめの α 線によるプラトーの計数率であるが、線源の放射能 (895 Bq 1985年3月19日現在) から考えて妥当なものである。また、つぎの α 線と β 線によるプラトーの計数率であるが、 α 線によるプラトーの計数率の約3倍程度である。この数値も、線源の放射能、及び、 RaDEF 線源の壊変を考えると妥当なものである。

これに対して、PRガス (357 sccm) に C_2F_6 (0.33 sccm) を混合 (混合率約 0.1%) して同様な測定実験を行ったのが図5の点線である。 1800 V くらいから飽和特性が見られ、この計数率はPRガスのみの場合の α 線のプラトーの計数率と同じ値である。従って、PRガスに混合されている CH_4 に対し僅か 1% の C_2F_6 の混合でも α 線のプラトーが約 350 V (20% 程度) 高電圧側に移動し

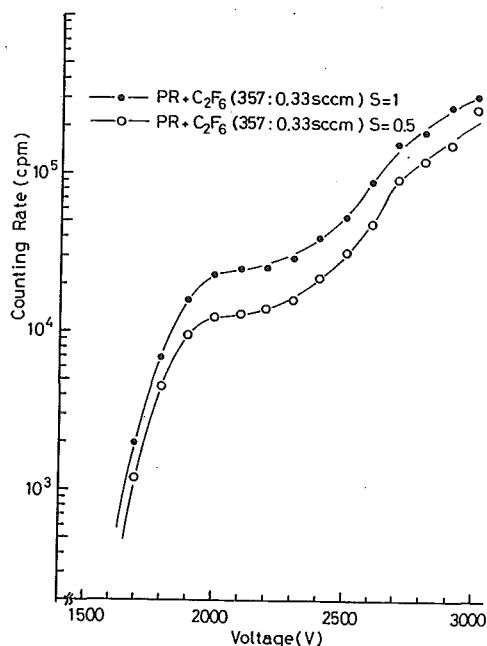


図6 電圧—計数率特性。S：面線源の面積，全面積を1に規格化した

てしまう。これは、フレオンの低電界における電子付着の断面積が大きい、印加電圧を上げなければ、PRガスのみの場合と同じだけの電離増倍が出来ないためであると考えられる。また、PRガスのみの場合に見られた α 線と β 線によるプラトーが現れていないが、2800V以上で再び飽和する傾向を見せている。これが飽和するか否かについては、更に高電圧側の測定をしなければ明らかにはならない。

2600V以上で示す高計数率が、放射線量と関係するかどうかについての確認実験を行った結果、図6のように放射線量を $S=0.5$ にすると、1700—2900Vの領域で計数率もほぼ0.5となり、2600—2900Vの領域においても放射線量に関する量を測定していると思われる。また、なぜフレオンガスを混合すると計数率が増加するのかについては、SQSの発生³⁾によるものが原因となっていることも考えられ、今後の課題である。

更に、フレオンガスを増加して行くと、低電圧側ではフレオンガスの電子付着現象が顕著となり、

計数率が極端に減少するとともに、 α 線のプラトーも消失してしまうことが認められた。また、2800—3000Vの領域では、微量混合した時と同様に、計数率が微量混合時と同程度の値で飽和する傾向を示した。

3000V以上の高電圧領域での測定は、現在の所、測定機器の制限で実験を行う事が出来ないため今後の研究課題であり、また今回得られた最適混合ガスと思われる $\text{Ar} + \text{C}_3\text{F}_8$ の電圧—計数率特性を測定する予定である。

4. まとめ

放射線計数管やその入射位置検出で使われるMWPC (Multi Wire Proportional Chamber) の特性改善を目的として、従来から使われているPRガスに代わる材料として、最近電流ナノパルススイッチングで使われ始めているフレオンガスと希ガス（本研究ではAr）の混合ガスを取り上げ、その適性を検討する研究を始めたので、その研究の経過報告として述べた。得られた結果は、次のようであった。

- 1) 本実験では、Arに1%の CH_4 、 CF_4 、 C_2F_6 、 C_3F_6 、 C_3F_8 、 C_4F_8 それぞれを混合し、電離電流増倍曲線を測定した。Arに CH_4 1%を混合する事で、二次電離作用が大きく抑えられ、更に、フレオン系ガスをArに混合すると、どのフレオンガスでもArの二次作用を抑えることが明らかに確認された。しかし、 CF_4 は、他のガスよりその作用が小さく、また C_3F_8 がArの二次作用を最も効率よく抑えることがわかった。
- 2) それぞれの混合ガスの電離係数を、 $20 < E/p < 80 \text{ V/cm Torr}$ の範囲で測定した結果、 $\text{Ar} + \text{C}_3\text{F}_8$ を除いて、全測定範囲で、他の混合ガスに大きな違いはないようであった。 $\text{Ar} + \text{C}_3\text{F}_8$ 混合ガスが他と違い、電離係数の増加が認められ、この原因は、Arに少量の C_3F_8 を混合するとペニング電離を起こすものと考えられた。

- 3) Ar とフレオン混合ガスの二次電離係数 γ を $20 < E/p < 80 \text{ V/cm Torr}$ の範囲で測定した。結果は, Ar にわずか 1% の C_3F_8 を混合しても, Ar の γ 値より 2 桁程も減少した。これは, CH_4 より Ar の二次作用に対する抑制力が大きく, 電離係数がほぼ同じであることから, Ar + C_3F_8 混合ガスは, 放射線カウンター材料ガスとして適当である可能性が見出された。
- 4) フレオンガス C_2F_6 と PR ガスの混合ガスの 2π ガスフローカウンターによる電圧-計数率特性測定を行い, PR ガスに混合されている CH_4 に対し C_2F_6 の 1% 程度の混合で, α 線のプラトーが高電圧側に移動し, 混合の割合を増すと α 線のプラトーが消失する。また, 2800 V 以上でプラトーをもつ傾向も認められた。
- 最後に, 本研究をまとめるに当たり, 有益なご助言ご協力をいただきました, 本学工学部電気工学科 田頭博昭教授と, 医療技術短期大学部診療放射線技術学科 花田博之助教授に感謝致します。

<参考文献>

- 1) E. E. Kunhart and M. G. White : Nano-second pulse discharge in C_3F_8 -Ar mixtures, J. Appl. Phys., 56, 1391-1397, 1984
- 2) W. C. Wang and L. C. Lee : Shortening of electron conduction pulse by electron attacher C_3F_8 in Ar N_2 and CH_4 , J. Appl. Phys., 58, 184-187, 1985
- 3) L. G. Christophorou, S. R. Hunter, J. G. Carter et al : Basic studies of gases for diffuse-discharge switching application, Proc. of the 4th IEEE Trans. Pulsed Power Conf., 702-708, 1983
- 4) 桑折範彦, 川村憲造, 酒井日出男, 他 : Magic gas mixtures and self-quenching streamer, 原子核研究, 28, 17-30, 1984
- 5) M. Atac, A. V. Tollestrup and D. Potter: Self-quenching streamers, Nuclear Instruments and Methods, 200, 345-354, 1982
- 6) 下妻光夫 : 混合ガスの電離係数, 電子付着係数の測定, 学位論文 (北海道大学), 1983
- 7) J. S. Pearson and J. A. Harrison: A uniform field electrode for use in a discharge chamber of restricted size : design and performance, J. Phys. D: Appl. Phys., 2, 77-84, 1969
- 8) M. Shimozuma, Y. Sakai and H. Tagashira: Prebreakdown current growth and the ionization coefficients in hydrogen, J. Phys. D: Appl. Phys., 10, 1671-1682, 1977
- 9) M. Shimozuma and H. Tagashira: Measurement of the ionization coefficients in nitrogen and methane mixtures, J. Phys. D: Appl. Phys., 14, 1783-1789, 1981
- 10) J. F. M. Aarts, C. I. M. Beenakker and F. J. De Heer: Radiation from CH_4 and C_2H_6 produced by electron impact, Physica, 53, 32-44, 1971
- 11) P. Laborie, J. M. Rocard, J. A. Rees et al: Electron cross-section and macroscopic coefficients, DUNOD (Paris), 1968
- 12) 坂本三郎, 田頭博昭 : 新高電圧工学, 新倉書店, 1974
- 13) R. W. L. Thomas : The application of least squares curve fitting techniques to Townsend spatial growth experiments, Proc. of 7th Int. Conf. on Phenomena in Ionized Gases, 1, 271-274, 1966
- 14) A. A. Kruithof and F. M. Penning: Determination of the Townsend ionization coefficient α for pure Argon, Physica, III, 515-533, 1936
- 15) T. H. Aschwanden, H. Bottcher, D. Hansen et al: Mobility and recombination of inos and the effective ionization coefficient in hexafluoropropene (C_3F_8), Proc. of the 3rd Int. Symp. on Gaseous Dielectrics, III, 23-33, 1982 (Knoxvi11)

- 16) 石塚文嘉, 下妻光夫, 北守一隆, 他: $C_3F_8 + Ar$ 混合ガスの電離係数および放電破壊特性の測定, 電気学会放電研究会資料, ED-87-33, 11-18, 1987
- 17) S. R. Hunter and L. G. Christophorou: Electron attachment to the perfluoroalkanes $n-C_NF_{2N+2}$ ($N=1-6$) using high pressure swarm techniques, J. Chem. Phys., 80, 6150-6164, 1984.