



JAEA-Technology

2005-009



JP0650148

パルス時間間隔を利用したバックグラウンド補償型 α線測定装置の開発

Development of New α -ray Measurement Methods with Radon Suppression
Focused on Pulse Time Interval

眞田 幸尚 野原 尚史^{*1} 安達 康敬^{*1}

根本 和彦^{*1} 川井 啓一^{*2} 小林 博英 橋本 哲夫^{*3}

Yukihsia SANADA, Naofumi NOHARA^{*1}, Yasuyuki ADACHI^{*1}
Kazuhiko NEMOTO^{*1}, Keiichi KAWAI^{*2}, Hirohide KOBAYASHI
and Tetsuo HASHIMOTO^{*3}

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
再処理技術開発センター
放射線管理部

Radiation Protection Department
Tokai Reprocessing Technology Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

January 2006

日本原子力研究開発機構

JAEA-
Technology

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に刊行している研究開発報告書です。
本レポートの全部または一部を複写・複製・転載する場合は下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

This report was issued subject to the copyright of Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about the copyright and reproduction should be addressed to :

Intellectual Resources Section,
Intellectual Resources Department
2-4, Shirakata-shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, JAPAN
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

©日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2006

パルス時間間隔を利用したバックグラウンド補償型 α線測定装置の開発

日本原子力研究開発機構東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所再処理技術開発センター放射線管理部
眞田 幸尚, 野原 尚史^{*1}, 安達 康敬^{*1},
根本 和彦^{*1}, 川井 啓一^{*2}, 小林 博英, 橋本 哲夫^{*3}

(2005年12月13日受理)

時間間隔解析法を利用したウラン系列子孫核種によるバックグラウンドを低減し
α線を測定する方法を開発した。まず、時間間隔解析法の理論を用いて²²²Rnの子孫
核種で半減期の短い²¹⁴Po(164μs)とその上位核種である²¹⁴Biの相関事象ペアを測
定する方法について検討を行った。検討結果から、測定に必要な装置の設計・開発を行
った。測定システムには、検出器にSi半導体検出器を用い、システム全体として
不感時間が得る限り短くなるような設計とした。

製作したシステムについて、²³⁰Th電着線源を使用し相関事象を測定できることを
確認するとともに、測定効率である相関事象率の測定を行った。また、実際に作業環
境中で空気粉塵を採取し、相関事象の測定を行った。

今回の研究から以下の事項が確認された。

- ・ 時間間隔解析法による²¹⁴Poの測定理論が示された。
- ・ ²¹⁴Poを測定できる装置を開発した。
- ・ 相関事象測定の確認方法として、²³⁰Th電着線源を使用する方法を示した。
- ・ 空気粉塵試料中の²¹⁴Poを測定し、検出効率を評価した。
- ・ ²³⁰Thの添加試験により、ランダム事象混入時の相関事象の測定方法を示した。

今後、トリウム系列の子孫核種の測定方法等を検討し、実際の放射線管理に反映す
る予定である。

核燃料サイクル工学研究所:〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松4-33

*¹ 日本原燃株式会社

*² 日本放射線エンジニアリング

*³ 新潟大学理学部

Development of New α -ray Measurement Methods with Radon Suppression Focused on Pulse Time Interval

Yukihisa SANADA, Naofumi NOHARA^{*1}, Yasuyuki ADACHI^{*1},
Kazuhiko NEMOTO^{*1}, Keiichi KAWAI^{*2}, Hirohide KOBAYASHI
and Tetsuo HASHIMOTO^{*3}

Radiation Protection Department, Tokai Reprocessing Technology Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency: Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 13, 2005)

An α -ray measurement methods based on analyzing the time interval of pulses was newly developed. This method was developed aiming to suppress the background counts originated in progeny of uranium series. A delayed coincidence and time interval analysis (TIA) methods have been applied to measure α - β decay successive events (correlated events) on microsecond time-scale (164 μ s). The measurement system with such functions using silicon detectors was developed intending to shorten the dead time.

The basic performance of the system was examined by using ^{230}Th electrodeposited sources.

Follows were obtained in this work

- The theory of measurement ^{214}Po using TIA methods was established.
- Measurement system of ^{214}Po was developed.
- Conformation methods of correlated events by using ^{230}Th electrodeposited sources was suggested.
- The efficiency of correlated events in aerosol samples was estimated.
- The methods to measure correlated events was indicated by addition of ^{230}Th .

The method will be adopted to a measurement of radiation protection, after considering an effect from the progeny of the thorium series.

Keywords: Time Interval Analysis, α -spectrometry, Dead Time, ^{214}Po , Pu

^{*1} JNFL (Japan Nuclear Fuel Ltd.)

^{*2} Japan Radiation Engineering Company Ltd.

^{*3} Faculty of science, Niigata University

目 次

1. はじめに	1
2. 再処理施設におけるラドン子孫核種濃度と存在比	3
2.1 試料採取方法	3
2.2 測定方法	3
2.3 Rn-Tn 放射能比	3
3. 時間間隔解析法の概要	4
3.1 相関事象とランダム事象	4
3.2 ウラン子孫核種測定の考え方	4
3.3 測定及び解析方法	5
4. 測定システムの設計・製作	7
4.1 検出器	7
4.2 測定システムの製作	7
5. 試験方法	8
5.1 不感時間の測定	8
5.2 ^{230}Th 電着線源の測定	8
5.3 検出器のタイプによる相関事象率の比較	9
5.4 空気粉塵試料の測定	9
5.5 ランダム事象の測定模擬試験	9
6. 結果と考察	11
6.1 不感時間の測定	11
6.2 ^{230}Th 電着線源の測定	11
6.3 検出器のタイプによる相関事象率の比較	11
6.4 空気粉塵試料の測定	12
6.5 ランダム事象の測定模擬試験	12
7. まとめ	13
8. 終わりに	13
謝辞	14
参考文献	14

Contents

1.	Introduction	1
2.	Rn-progeny at work place of reprocessing facility	3
2.1	Sampling methods	3
2.2	Measurement methods	3
2.3	Ration of activity Rn and Tn	3
3.	Principle of time interval analysis	4
3.1	Correlated events and random events	4
3.2	Principle of measurement of correlated events	4
3.3	Measurement and analysis	5
4.	Design of measurement system	7
4.1	Detector	7
4.2	Measurement system	7
5.	Methods	8
5.1	Dead-time measurement	8
5.2	Measurement of ^{230}Th electrodeposited source	8
5.3	Comparison of efficiency of correlated events by difference detector	9
5.4	Measurement of dust sample	9
5.5	Mock of measurement for random events	9
6.	Results and Consideration	11
6.1	Dead-time	11
6.2	Measurement of ^{230}Th electrodeposited source	11
6.3	Comparison of efficiency of correlated events by difference detector	11
6.4	Measurement of dust sample	12
6.5	Mock of measurement for random events	12
7.	Conclusion	13
8.	Futures	13
	Acknowledgement	14
	Reference	14

1. はじめに

原子力施設では、作業員の内部被ばくを防止するために空気中の放射性物質濃度管理を行う必要がある。日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所再処理技術開発施設における空気中放射性物質濃度管理の方法は Fig. 1 に示すようにエアスニファ方式とダストモニタ方式の 2 つの方法で行っている。

- ① エアスニファ方式：空気中の粉塵をろ紙上に一定期間(約 1 週間)収集し、全 α 線及び $\beta(\gamma)$ 線の測定を行う。
- ② ダストモニタ方式：空気中の粉塵をろ紙上に採取しつつ、その粉塵を検出器によりリアルタイムに測定する。

内部被ばくに寄与する放射性核種の中でウラン及びプルトニウム同位体の多くは(以下 U 同位体及び Pu 同位体)は α 線を放出するため、他の放射性核種より厳しく管理されている。法令で定められている放射性核種毎の空気中放射性物質濃度限度について Table 1 に示す。Pu 同位体の管理は α 線を測定する方法が一般的であるが、天然放射性核種の放出する α 線が擬似計数の役割を果たすため、定量に必要な検出感度を確保するには天然放射性核種の放射能が減衰した後に測定を行う必要がある。気体であるラドン以降の天然放射性核種は、Fig. 2 に示すように短半減期であるものが多いが、それらの放射性核種が測定上無視できるまで減衰するには 3 日程度の時間が必要である。そのため、上記 2 方法による Pu の測定では、最終的な評価まで 3 日以上必要となり、迅速性に課題を有している。

そのような天然放射性核種由来のバックグラウンドを補償し、U 及び Pu 同位体を迅速に測定するために様々な方法が報告されている。それらの方法は、以下の 2 つの方法に大別される。

- ① 天然放射性核種系列、U 及び Pu 同位体が放出する α 線のエネルギーによって分別する方法
- ② 天然放射性核種系列、U 及び Pu 同位体の半減期の違いにより分別する方法

①の方法ではろ紙による α 線の自己吸収や検出器と試料間の距離等の測定条件により低エネルギー側にスペクトルピークが広く分布するため、 α 線スペクトル上で分別することは難しい。Fig. 3 に天然放射性核種系列及び U 及び Pu 同位体が試料中に混在した場合の α 線スペクトル及び核種とエネルギーについて示す。Fig. 3 に示すように、 ^{214}Po の α 線 (7.69MeV) 等が Pu のエネルギー領域で計数される。本方法では Pu の放射能が天然放射性核種と比較して十分に高い場合にのみ測定が可能となる。

半減期の違いにより分別する②の方法の代表例として、短い半減期を持つ放射性核種の測定法である時間間隔解析法が挙げられる。時間間隔解析法は、Hashimoto ら(1990)によって、主に水中に含まれる天然放射性核種系列の測定等に応用されてきた^{(2),(3),(4)}。本方法により測定してきた核種は msec オーダーの半減期をもつ核種のペアであるが、パルス測定回路の遅れや不感時間により msec オーダー以下の短半減期

核種の測定は難しいとされてきた。しかしながら、近年、高速のパルス増幅器やアナログデジタル変換器が開発されていること、パルス間隔の時間を測定する技術が向上したこと、またパソコンの処理能力が上がったことなどから、 μsec オーダーの短半減期核種を測定できると考えられる。ウラン系列における短半減期核種は μsec オーダーであるため、時間間隔解析法を適用することによってウラン系列の核種の測定が可能になると考えられる。

そこで、本研究では U や Pu 由来の α 線を管理する上で妨害となる μsec オーダーの半減期を有する ^{222}Rn 子孫核種を時間間隔解析法によって選択的に測定し、バックグラウンドを補償する α 線測定法について理論的な解析および試験を行った。

2. 再処理施設におけるラドン子孫核種濃度と存在比

再処理施設内作業環境中における天然放射性核種の影響を把握するために、空气中放射性物質濃度管理に用いている空気粉塵試料中の ^{222}Rn (以下 Rn) 及び ^{220}Tn (以下 Tn) の放射能比について調査を行った。

2.1 試料採取方法

空気粉塵試料は、一定の流量により空気を吸入し、その中の粉塵をガラスーセルロース纖維ろ紙(HE-40T: 孔径 $8\mu\text{m}$) 上に集めることによって採取した。試料採取の条件を Table 2 に示す。

2.2 測定方法

空気粉塵試料としてろ紙から放出される α 線は、試料採取直後から 4 時間後までに半減期の短い U 系列核種が減衰し、その後 3 日程度で Th 系列核種が減衰する。一般的な Rn-Tn を含む α 線計数の経時変化について Fig. 4 に示す。実際の管理では、この α 線計数の経時変化を利用し、採取から 3 日後に α 線の測定を行っている。

この α 線の時間変化を考慮し、空気粉塵試料を採取直後と 4 時間後に α 線を測定した。その結果から、4 時間後の測定結果を Th 子孫核種寄与の α 線、採取直後の測定結果から 4 時間後の測定結果を差し引いた結果を Rn 子孫核種寄与の α 線と定義した。 α 線の測定は、試料採取直後に、ZnS(Ag) シンチレーションサーベイメータを用いて行った。

2.3 Rn-Tn 放射能比

上記の方法で測定した試料中の Rn 子孫核種及び Tn 子孫核種の α 線放射能について Fig. 5 に示す。ここで示す Rn/Tn 比は各々の子孫核種の放射能比である。空気粉塵試料中の Rn-Tn 子孫核種による全 α 線放射能は $0.1\sim50\text{Bq}$ の範囲あり、便宜的に 1 週間の総流量から空气中放射性物質濃度を換算すると $2.2\times10^{-11}\text{Bq}/\text{cm}^3\sim1.3\times10^{-8}\text{Bq}/\text{cm}^3$ の範囲であった。

Fig. 5 に示すように、再処理施設の作業環境中における Rn と Tn の関係は正の相関を示し、近似曲線の傾きから Tn / Rn 比は 0.2 程度であった。すなわち、通常の作業環境中では Tn の寄与は 15% 程度であることがわかる。

この結果から、再処理の作業環境で迅速に Pu 等の α 線放出核種の空气中放射性物質濃度を管理するために、寄与の大きい Rn の子孫核種の影響を低減する必要があることが分かる。この結果を考慮し、Rn の子孫核種を選択的に測定し、バックグラウンドを低減する放射能測定装置の設計を行った。

3. 時間間隔解析法の概要

時間間隔解析法は、半減期の短い放射性核種が上位核種の壊変後、短い時間の間に壊変する確率が高いという性質を利用した方法である。Hashimoto ら(1990)(5)(6)(7)(8)(9)は、本方法を確率論的観点から理論式を解くことによって説明している。ここでは、時間間隔解析法の原理を参考とし、ウラン子孫核種の測定理論について述べる。

3.1 相関事象とランダム事象

時間間隔解析法では、測定対象とする半減期の短い放射性核種とその上位核種の崩壊のペアを相関事象と呼んでいる。一方、その他の放射性核種の崩壊はランダム事象とし区別する。

Fig. 6 に相関事象とランダム事象の時間間隔の違いについて示す。同図に示したように、相関事象関係のパルスは下位核種の半減期が短いため上位核種の壊変後、短い時間で下位核種が壊変する。一方、ランダム事象の場合は上位核種の壊変後、下位核種が壊変するまでの時間間隔が相関事象に比べて長いため、上位核種の壊変後に下位核種の壊変する確率は放射能（壊変率）に依存する。

なお、**Fig. 2** で示すように、ウラン系列核種の測定対象は ^{222}Rn 以下の ^{210}Pb までの ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi 及び ^{214}Po である。この中で、相関事象の核種ペアは ^{214}Bi と ^{214}Po となり、 ^{218}Po 及び ^{214}Pb はランダム事象として扱われることとなる。

3.2 ウラン子孫核種測定の考え方

ウラン系列子孫核種の中で ^{214}Bi と ^{214}Po は、 ^{214}Po の半減期が $164\mu\text{s}$ と極端に短いことから相関事象の関係を利用して判別することができる。ここでは $100\mu\text{s}$ オーダーの半減期を持つ核種の時間間隔分布の特徴及びランダム事象との関係について計算式で示す。

一般的に放射性物質が時間 t の間に崩壊する確率 $P(t)$ は式(1)によって表される。

$$P(t) = 1 - \exp(-\lambda t) \quad \dots \quad (1)$$

ここで λ : 壊変定数(s^{-1})、 t : 崩壊する時間(直前のパルスとの時間間隔(s))

放射性核種の計数と壊変する確率の関係がポアソン分布に従うとすると、放射能 N (s^{-1})の場合、時間 t の間に崩壊する下位核種の平均個数 \bar{x} は式(2)のように表される。

$$\bar{x} = P(t) \cdot N \quad \dots \quad (2)$$

(2)に(1)を代入すると、

$$\bar{x} = [1 - \exp(-\lambda t)] \cdot N \quad \dots \quad (3)$$

(3)式から時間間隔単位(Δt)当たりの積算計数 $C(t)$ を計算する。

$$C(t) = N[\exp(-\lambda t) - \exp\{-\lambda(t + \Delta t)\}] \quad \dots \quad (4)$$

(4)式から横軸に時間間隔(t)、縦軸に積算計数 $C(t)$ をプロットすると **Fig.7** のような時間間隔スペクトルを示すことができる。同図で、太線に示したのは相関事象として

模擬した半減期 $100\mu\text{s}$ の放射性核種(1000dps)の場合である。また、同図にランダム事象の例として半減期 10s、1s、0.1s の放射性核種(1000dps)を定義し、式(4)から時間間隔単位 $10\mu\text{s}$ に対する積算計数を加えたスペクトルを相關事象の時間間隔スペクトルに加算したグラフを示す。図のように、相關事象となる放射性核種の崩壊数は時間間隔の増加とともに半減期 $100\mu\text{s}$ の傾きで急激に減少する。一方、半減期の長いランダム事象は時間間隔が長くなるに連れ緩やかな減少傾向を示す。ここで示した時間間隔スペクトルは、ランダム事象及び相關事象が混入した試料を測定した場合に得られる時間間隔スペクトルを模擬したことになる。この時間間隔スペクトルの短時間間隔の崩壊事象はほとんどが相關事象由来であるため、短時間間隔の崩壊事象の崩壊率を計数することによって、全体の放射能の中からランダム事象を選択的に測定することが可能である。

Fig. 8 に(3)式から導出される相關事象(半減期: $100\mu\text{s}$)の積算崩壊数が時間間隔とともに変化する様子を示す。同図から、相關事象の 95%以上が $500\mu\text{s}$ 以内の時間間隔で崩壊することが示される。**Fig. 7** および **Fig. 8** から、 $500\mu\text{s}$ 以上の計数からランダム事象の計数を計算し、 $0\text{--}500\mu\text{s}$ の時間間隔をもつ計数から差し引くことによって相關事象の分別測定が可能であることがわかる。

Fig. 9 にランダム事象の放射能と時間間隔スペクトルの関係について示す。相關事象とランダム事象を時間間隔スペクトル上から区別する方法は、 $500\mu\text{s}$ 以上の計数から導出される近似曲線を $0\text{--}500\mu\text{s}$ の部分に外挿し、その計数を差し引くことによって区別する。すなわち、測定の限界(分別の限度)は $0\text{--}500\mu\text{s}$ の計数による近似曲線と $500\mu\text{s}$ 以上の計数による近似曲線の傾きが等しくなるところまでということになる。**Fig. 9** に示すように時間間隔スペクトル上でランダム事象が多くなるほど相關事象との分別が難しくなることがわかる。実際の分別の限界は相關事象の放射能にも依存するため測定対象に応じて計算が必要である。

3.3 測定及び解析方法

Fig. 6 に時間間隔解析法のデータ採取及び解析の概要について示す。データ採取及び解析は以下のように行う。

- ① 検出器に入射した放射線由来のパルスに対し直前のパルスとの時間間隔を測定し保存する。エネルギー測定のできる検出器の場合は、エネルギーに対応する波高値について測定する。測定したデータは波高値と対応する時間間隔との対データとして保存する。
- ② 保存したデータを、データ処理部にて横軸に時間間隔、縦軸に計数をとり、時間間隔スペクトルを作成する。
- ③ $0\text{--}1\text{ms}$ の計数が相關事象である ^{214}Po であるため、 1ms 以上の時間間隔を持つ計数から $0\text{--}1\text{ms}$ の時間間隔をもつランダム事象を差し引いて、 ^{214}Po の計数を算出する。

- ④ 算出した計数に、あらかじめ電着線源及びバックグラウンドろ紙等で設定した検出器の相関事象率（計数した ^{214}Po の全 α 線計数に対する 0·1ms の時間間隔を持つ計数の割合）及び測定対象における ^{214}Po の全放射能に対する検出器の計数した ^{214}Po の全 α 線計数の割合（検出効率）によって測定対象中の ^{214}Po 放射能を算出する。

4. 測定システムの設計・製作

前章で示したような測定理論を実現する測定システムの設計及び開発を行った。測定を行うまでの要求事項は以下の通りである。

- ① α 線のエネルギー測定ができる
- ② α 線と β 線が測定できる
- ③ 測定時の不感時間が短い

4.1 検出器

α 線のエネルギー測定及び β 線の測定が可能である検出器として Si 半導体検出器を選定した。検出器の性能については、最適なものを選定するために Table 3 の 4 種類の検出器を使用し、比較測定を行った。

4.2 測定システムの製作

システムの設計には、パルスの時間間隔を正確に測定するために、不感時間や時間の遅れの発生が最小になるシステムの構築が必要である。システム上で不感時間や時間の遅れの原因となる要因は以下のとおりである。

- ・ パルス幅による不感時間
- ・ パルスの増幅、変換時の時間の遅れ(AMP, ADC)
- ・ 測定パルスをパソコン等へ記録する時間の遅れ

これらの要因に対し、システムの構築は以下の対策を施した。システムの構成について Fig. 10 に示す。

- ・ 高速ADCの採用(逐次比較型ADC)、AMPからの増幅信号を直接高速タイマーにて測定できる切換スイッチ
- ・ FIFOメモリによる記録方式の採用

本装置は、切換スイッチにより波高値と時間間隔の対データを測定できるエネルギー mode(以下、エネルギー mode)とAMP出力のディスクリレベルを超えたパルスに対して時間間隔を測定する高速 mode(以下、高速 mode)の 2 種類のデータ採取方法の切換を行うことができる。また、FIFOメモリはデータの書き込みと送信が同時に行えるためデータ保存時の不感時間が小さくなると考えられる。

検出部については Si 半導体検出器をろ紙の両側から測定できる構成とすることによって、ろ紙上の放射性核種を高効率で測定できるようにした。また、データ処理部はシステムから切り離すことができ、様々な検出部からの信号に対しデータ処理を行えるように設計した。なお、今回の測定試験ではすべてエネルギー mode により行っている。

5. 試験方法

前章で設計・製作を行った測定システムを用いて、バックグラウンド補償型の α 線測定法を検討するために下記の試験を行った。

5.1. 不感時間の測定

システム全体の不感時間を評価するために、パルス発生器を用いて以下の測定を行った。

(1) パルス発生器による最小のダブルパルス分別時間の測定

パルス発生器により 2 つのパルスを入力し、パルス間の時間間隔を増加させながら装置が 2 つのパルスと認識し始める変移点を観測した。パルスの形状は Si 半導体検出器からの出力に近い形状とした。

(2) パルス発生器による模擬パルス（ホワイトノイズ）入力による不感時間の測定

パルス発生器により模擬パルスを発生させ、実際にデータ処理部に入力し、時間間隔スペクトルを作成することによって不感時間を評価した。

5.2. ^{230}Th 電着線源の測定

相關事象を含む電着線源として ^{230}Th 電着線源を選定した。 ^{230}Th 電着線源(2cm ϕ)の α 線スペクトルの例を Fig. 11 に示す。 ^{230}Th はウラン系列に属しており、電着していることから ^{222}Rn 以降の下位核種についても一定の割合で保持される。Jurado Vargas ら(1996)⁽¹⁰⁾は ^{226}Ra 電着線源の ^{222}Rn 子孫核種が拡散および保持される割合について測定を行っている。結果は、 ^{226}Ra の電着後 300 時間程度で電着線源上の ^{222}Rn と平衡に達するとしている。今回使用した電着線源は少なくとも 1 年以上前に製作されたものであるため、電着線源上に残存する ^{222}Rn 以降の放射性核種は平衡に達していると考えられる。

本電着線源を Si 半導体検出器で測定し、すべてのパルスについて波高値（エネルギー）及び直前のパルスとの時間間隔を対データで保存した。その後、 β 線及び ^{214}Po の α 線のエネルギー領域に入るデータのみを抽出し時間間隔スペクトルを作成した。

作成した時間間隔スペクトルは第 3 章で示した方法に従い、本電着線源の条件を代入した計算結果と比較した。検出器の効率が 100% であれば Fig. 7 の太線で示したような時間間隔スペクトルとなるが、相關事象ペアの片方のみを検出器が計数した場合は相關事象とランダム事象が混在したスペクトルのようになる。検出器の計数効率を考慮し、第 3 章で示した式(4)をもとに下記の計算条件から式(5)を導き時間間隔スペクトルをモデル化し実測値と比較した。

(計算条件)

A	^{214}Po の放射能	2.8 Bq (電着線源の値)
E_{eff}	Si 半導体検出器の検出効率 ^{*1}	0.3
R_{corr}	相関事象率 ^{*2}	0.3
T_{corr}	相関事象の半減期(^{214}Po)	164μs
T_{ram}	ランダム事象の半減期	
t	時間間隔	μs
Δt	時間間隔単位	μs

(計算式)

$$C(t) = A \cdot E_{\text{eff}} \cdot R_{\text{corr}} \cdot \left[\exp\left(-\frac{0.693}{T_{\text{corr}}} \cdot t\right) - \exp\left(-\frac{0.693}{T_{\text{corr}}} (t + \Delta t)\right) \right] \\ + A \cdot E_{\text{eff}} \cdot (1 - R_{\text{corr}}) \cdot \left[\exp\left(-\frac{0.693}{T_{\text{ram}}} \cdot t\right) - \exp\left(-\frac{0.693}{T_{\text{ram}}} (t + \Delta t)\right) \right] \quad \cdot (5)$$

5.3. 検出器のタイプによる相関事象率の比較

本電着線源を用い 3 タイプの検出器ごとに相関事象率を測定し、その結果について比較するとともに、測定時間及びランダム事象混入時の相関事象率の変化について考察した。

5.4. 空気粉塵試料の測定

空気粉塵試料の測定は以下の方法で行った。まず、試料の採取は現在の放射線管理で使用されているガラス・セルロース纖維ろ紙(HE-40T: 孔径 8μm)を使用した。空気粉塵試料は 70L/min で 1 時間、小型の集塵装置を用いて採取し、採取直後に測定を開始した。測定は 100 秒ごとに 2 時間断続的に測定を行い、100 秒毎の測定データを採取した。空気粉塵試料は再処理施設における代表的な作業場で採取した。

本試料は、Canberra 社製の検出器を用いて測定し、相関事象率の経時変化を算出した。

5.5. ランダム事象の測定模擬試験

相関事象の影響を時間間隔スペクトル上から減算し、残ったランダム事象の放射能を換算する条件を考察するために、相関事象の中からランダム事象を抽出する試験を行った。方法は、5.2 章で示した ^{230}Th 線源から得た相関事象のみを測定したデータ

*1 検出器の ^{214}Po 起源α線計数率 / 試料中の ^{214}Po 放射能

*2 0.1ms の時間間隔を持つ計数 (検出器が相関事象を測定した計数) / 検出器の ^{214}Po 起源α線計数率

に、線源上でランダム事象となるエネルギー領域の計数（ β 線および ^{214}Po 以外のエネルギー領域）を一定量加え、加えたデータ系列によって作成した時間間隔スペクトルから相関事象由来の計数を算出した。算出した計数にあらかじめ設定した相関事象率から全体の相関事象計数に換算し、換算した計数値を全体の α 線計数から差し引くことによってランダム事象の計数値を算出した。算出したランダム事象の計数値とデータに加えたランダム事象計数値を比較した。

6. 結果と考察

6.1. 不感時間の測定

パルス発生器による最小のダブルパルス分別時間の測定の結果、測定器が 2 つのパルスと認識できる最小の分別時間（不感時間）はエネルギー モードで $19\mu\text{s}$ 及び高速モードで $2\mu\text{s}$ であった。エネルギー モードでは ADC の変換時間が $10\mu\text{s}$ の固定値であるため、その他の $9\mu\text{s}$ は AMP の增幅時間やメモリへの書き込み時間であると考えられる。また、高速モードによる不感時間が Si 半導体検出器のパルス幅程度であったことからエネルギー情報が必要としない測定では不感時間による数え落としはほとんど発生しない。

また、Fig. 12 に擬似パルスを測定した時間間隔スペクトルを示す。ランダムなパルスを測定するとシステムの不感時間が存在する場合、計数しない領域が現れる。測定できない領域の最大時間が不感時間となり、エネルギー モードで $19\mu\text{s}$ 及び高速モードで $2\mu\text{s}$ となることがわかる。測定結果は、ダブルパルスの最小分別時間から評価した結果とも矛盾しない。

実際の測定時には、測定対象に応じて 2 つのモードを切り替えて測定する必要がある。不感時間による数え落としは、式(3)から計算すると $19\mu\text{s}$ の不感時間で 7%、 $2\mu\text{s}$ で 0.8% 程度となると予想される。

6.2. ^{230}Th 電着線源の測定

^{230}Th 電着線源の時間間隔スペクトルを Fig. 13 に示す。スペクトルから単位時間間隔当たりの計数は $0\text{-}1\text{ms}$ まで指数関数的な減少を示し、 1ms 以降は緩やかな指数関数的な減少を示している。5.2 章で述べた方法により計算条件を設定し、理論式から導いた計算結果計算結果ともよく一致した。

6.3. 検出器のタイプによる相関事象率の比較

Table3 で示した検出器で、測定時間は 1000s とし ^{230}Th 電着線源の測定を行い相関事象率の測定を行った。検出器の種類と相関事象率の測定結果を Table4 に示す。4 タイプの検出器のうち、最も相関事象率が高かったのは検出面積の広い検出器 4 であった。また、検出面積の小さい検出器 1・3 では検出器 1 が最も相関事象率が高かった。検出器 1 は検出面のコーティングが他のものに比べ薄いため放射線に対する感度が高い結果によるものと考えられる。また、検出器 2 と 3 を比較すると空乏層の厚い検出器 3 の方が 2 倍以上高かったことから、空乏層の厚みによって β 線の効率が高くなり結果的に相関事象率も高くなることが示唆される。これらの結果から、相関事象を測定する上で有効な検出器の条件として以下の事項が挙げられる。

- ① 測定対象に対して検出面積が大きい
- ② 検出面のコーティングが薄い
- ③ 空乏層が厚い

本結果と、実際の放射線管理上で使われていること、検出器のコストが低いことの3点を考慮し、検出器1を使用し実際の空気粉塵試料に関する試験を行った。

6.4. 空気粉塵試料の測定

Fig. 14に空気粉塵試料の α 線スペクトルを示す。このように、採取直後の空気粉塵にはウラン系列に属する ^{222}Rn の子孫核種が有意となる。スペクトルの形状はろ紙の α 線自己吸収及び検出器との距離によって低エネルギー側へシフトする。

空気粉塵試料の時間間隔スペクトルを**Fig. 15**に示す。このように、0·1msまでに相關事象由来である指指数関数的な計数の上昇がみられる。この結果は、空気粉塵中の相關事象を測定できている証拠と考えられる。

Fig. 16に検出器の計数する全 α 線計数と相關事象率の時間変化について示す。このように、試料採取後、全 α 線計数が減衰していくのに対し、相關事象率は若干の変動があるものの20%程度で一定であることが分かった。空気粉塵試料中には、トリウム系列核種、 ^{218}Po 及び ^{214}Pb の相關事象以外の核種が存在すると考えられ、各々の核種の半減期によって試料上で生成および減衰すると考えられる。相關事象以外の核種の組成の変化は相關事象率に影響を与えると考えられる。しかしながら今回の結果は時間経過により相關事象率の大きな変動は見られず、ろ紙上に存在するウラン系列核種の平衡状態の変化が相關事象率に大きな影響を与えないことが示唆される。すなわち、本作業環境中に存在する ^{214}Po の放射能に対し ^{218}Po の放射能が小さいか、 ^{218}Po が早い時間に減衰し相關事象率に影響を与えない量になっていると考えられる。相關事象率は放射能への換算で大きな影響を与える因子となるため、試料中の系列核種の平衡状態については今後詳細な調査が必要である。

6.5. ランダム事象の測定模擬試験

^{230}Th 線源から得た相關事象のみを測定したデータに、線源上でランダム事象となるエネルギー領域の計数(β 線および ^{214}Po 以外のエネルギー領域)を一定量加えた。加えたランダム事象の計数は、5Bqから210Bqの計12個のデータ系列とし、これらのデータから作成した特徴的な時間間隔スペクトルを**Fig. 17**に示す。

Fig. 17に示すように、添加した ^{230}Th の放射能が大きくなると相關事象が優位な0·1msの計数と分別しにくくなる。 ^{230}Th の添加量と相關事象率との関係を**Fig. 18**に示す。このように、 ^{214}Po の放射能12Bqに対し、添加量が70Bq程度までは相關事象率が減少する。その後、添加量が増えると相關事象率は上昇傾向を示す。この結果は添加量70Bqまでは、0·1msに入る相關事象率の計数がランダム事象の計数を上回っていることに起因し、ランダム事象の計数が相關事象の計数を越えると相關事象率はランダム事象の混入率に合わせて上昇する。この結果は、相關事象率を評価することによりランダム事象の混入を予想できることを示している。

実際に、ランダム事象混入時における相關事象の定量方法を検討するために、**Fig.**

19 にランダム事象のみの時間間隔スペクトルを示す。Fig. 9 に示すように理論的にランダム事象の時間間隔は 0s で最大となるが、システムに存在する 19μs の不感時間が原因となる“まひ時間^{*3}”により 0–300μs 程度まで計数が少なくなる。この結果より、Fig. 17 に示す相關事象とランダム事象が混入した時間間隔スペクトルからランダム事象の寄与を差し引く場合には、1ms 以上の時間間隔を持つ計数の単位時間当たりの計数の平均を計算し、0–1ms に混入するランダムパルス計数を差し引く必要がある。まひ時間による計数の減少については、300μs までの計数を半分にして差し引くこととした。この方法により、Fig. 17 で示したランダム事象を添加した試験で得られた時間間隔スペクトルから、相關事象の放射能を求めた結果を Fig. 20 に示す。このように、もともとの添加量である ^{214}Po に対し、上述した方法により計算した相關事象の定量値はほぼ同様な値を示した。ただし、添加量が多くなると定量値は誤差が大きくなることが示唆された。

7. まとめ

本研究により、以下の事項が明らかとなった。

- (1) 時間間隔解析法による ^{214}Po の測定理論が示された。
- (2) ^{214}Po を測定できる装置を開発した。
- (3) 相関事象測定の確認方法として、 ^{230}Th 電着線源を使用する方法を示した。
- (4) 空気粉塵試料中の ^{214}Po を測定できることを確認した。
- (5) ^{230}Th の添加試験により、ランダム事象混入時の相關事象の測定方法を示した。

特に、今回の試験結果により相關事象とランダム事象の分別測定が可能であることが示唆された。本測定方法は、特に大量の相關事象の中から少量のランダム事象を選択的に測定する際に有効であるため、天然の Rn 子孫核種の妨害を多く受ける試料から少量の人工放射性核種を測定することができると考えられる。

8. 終わりに

本研究では、Rn 子孫核種からの妨害を有効に低減化する方法を提示することができた。

今後は、天然放射性核種の影響を除去し、正確に人工放射性核種の測定を行うには以下の事項について検討を行う予定である。

- (1) ^{214}Po 以外のウラン系列放射性核種の測定に対する影響（平衡状態）

空気粉塵試料では、バッチ測定を行う場合、試料採取直後からランダム事象である ^{218}Po が減衰するため、試料全体のα線に対する相關事象(^{214}Po)の割合が変化する。 ^{218}Po の半減期は 3.1 分であるため採取後 10–20 分程度で減衰すると考えられるが、迅速な人工放射性核種の測定のためには平衡状態の影響を調査する必要がある。

^{*3} パルスの計数後、不感時間内にパルスが計数されることによって見かけ上不感時間が伸びること。

今回の試験では、Fig. 16 に示すように採取直後の相関事象率と 30 分以降の相関事象率に優位な変化が見られなかった。この結果から、平衡状態の変化が相関事象率に大きな影響を与えないことが示唆されるが、サンプリングする場所や採取時間によって差が出ることが予想されるため、今後詳細な調査が必要である。

(2) Th 系列放射性核種の影響

第 2 章で示したように環境中には、トリウム系列の放射性核種がウラン系列の放射性核種に対し一定量存在している。これらの放射性核種も時間間隔解析法ではランダム事象として扱われるため測定に与える影響について調査が必要である。

謝辞

新潟大学理学部放射化学研究室の皆様には研究内容について貴重な意見をいただきました。ここに感謝の意を表する次第です。

参考文献

- (1) Hashimoto, T. and Sakai, Y.: "Selective determination of extremely low levels of thorium series in environmental samples by a new delayed coincidence method." *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 138, 195-206 (1990)
- (2) 橋本哲夫、久保田知明: "時間間隔解析法を用いた玉川温泉水中の Th 系列核種の絶対測定", *Radioisotope*, 38, 415-420 (1989)
- (3) Hashimoto, T., Uezu, Y., Ishizuka, F. and Washio, H.: "Detection sensitivity of time interval analysis for the determination of α -radionuclides with millisecond order lives." *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 173, 87-97 (1993)
- (4) Hashimoto, T., Uezu, Y., Yamamoto, Y., Washio, H. and Noguchi, M.: "Principle of single and multiple time interval analysis applicable to radioactive nuclides with half-life of millisecond order." *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 159, 375-387 (1992)
- (5) Hashimoto, T., Ishizuka, F., Yoneyama, Y., Kubota, T. and Fukuyama, N.: "Determination of natural alpha-radionuclides related to millisecond order lives in environmental samples using time interval analysis (TIA) method." *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 197, 99-114 (1995)
- (6) Hashimoto, T., Sato, K., Yoneyama, Y. and Fukuyama, N.: "Simultaneous determination of environmental radionuclides using liquid scintillation counting combined with time interval analysis (TIA) and pulse shape discrimination." *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 222, 109-116 (1997)
- (7) Hashimoto, T., Yoneyama, K. Sato and Komatsu, Y.: "Pulse time interval analysis (TIA) combined with liquid scintillation counting for the

determination of environmental alpha nuclides. "Preparation and utilization of Ra-225 as a yield tracer." J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 239, 619-629 (1997)

- (8) Sato, K., Hashimoto, T. Noguchi, M., Nitta, W. Higuchi, H., Nishikawa, N. and Sanada, T.: "A simple method for determination of Ra-226 in environmental samples applying beta-alpha coincidence liquid scintillation counting." J. Environ. Radioactivity, 48, 247-256 (2000)
- (9) Hashimoto, T., Sanada, Y. and Uezu, Y.: "Simultaneous determination of radionuclides separable into natural decay series by use of time-interval analysis." Anal. Bioanal. Chem., 379, 227-233 (2004)
- (10) Jurado Vargas, M. and Fernandez de Soto, F.: "A study of ^{222}Rn emanation in electron-deposited sources of ^{226}Ra with barium." Nucl. Inst. Meth. Phys. Res., A 368, 488-491 (1996)

Table1 法令で定められている空气中放射性物質濃度
平成 12 年 10 月 23 日科学技術庁告示第 5 号：別表第 1

第1欄		第4欄	第5欄
放射性同位元素の種類		空気中濃度限度 (Bq/cm ³)	排気中又は空気中の 濃度限度(Bq/cm ³)
核種	化学形等		
Am-241	すべての化合物	8×10^{-7}	3×10^{-9}
Pu-239	不溶性の酸化物以外の化合物	7×10^{-7}	3×10^{-9}
U-235	不溶性の酸化物	3×10^{-5}	2×10^{-7}
Co-60	酸化物、水酸化物、ハロゲン化合物及び硝酸塩	1×10^{-3}	4×10^{-6}
Sr-90	チタン酸ストロンチウム以外の化合物	7×10^{-4}	5×10^{-6}
I-131	蒸気	1×10^{-3}	5×10^{-6}
Cs-137	すべての化合物	3×10^{-3}	3×10^{-5}
Bi-212	硝酸ビスマス以外の化合物	1×10^{-3}	1×10^{-5}
Bi-214	硝酸ビスマス以外の化合物	1×10^{-3}	9×10^{-6}
Po-218	酸化物、水酸化物及び硝酸塩	7×10^{-3}	5×10^{-5}
Pb-212	すべての化合物	6×10^{-4}	6×10^{-6}
Pb-214	すべての化合物	4×10^{-3}	4×10^{-5}

Table2 Dust Sampling

項目	条件
<u>使用ろ紙</u>	Glass-Cellulose fiber filter HE-40T (孔径 8μm)
<u>サンプリング条件</u>	
採取期間	1週間
空気採取量	70L/min
<u>試料採取場所</u>	分離精製工場 (MP) 再処理作業場: 458 試料
	分析所 (CB): 318 試料
	廃棄物処理場 (AAF): 253 試料

Table3 Si semiconductor detectors

No	Detector Type	Active Area (mm ²)	Depletion Depth (μm)	HV (V)	Production
1	PIPS*	450	100	70	Canberra
2	SSB**	450	100	50	Ortec
3	SSB**	450	2000	350	Ortec
4	SSB**	2000	100	50	Ortec

*PIPS: Passivated Implanted Planar Silicon Detectors

**SSB: Totally Depleted Silicon Surface Barrier Detectors

Table4 Comparison of efficiency of correlated events by difference detector

No	Depletion Depth (μm)	Detector Type	Active Area (mm ²)	Detected ²¹⁴ Po Count rates (s ⁻¹)	Count rates of short time interval (0-1ms) (s ⁻¹)	Efficiency of correlatied events (%)
1	100	PIPS*	450	2.54	0.81	32
2	100	SSB**	450	1.61	0.16	10
3	2000	SSB**	450	1.65	0.42	25
4	100	SSB**	2000	2.73	1.05	38

*PIPS: Passivated Implanted Planar Silicon Detectors

**SSB: Totally Depleted Silicon Surface Barrier Detectors

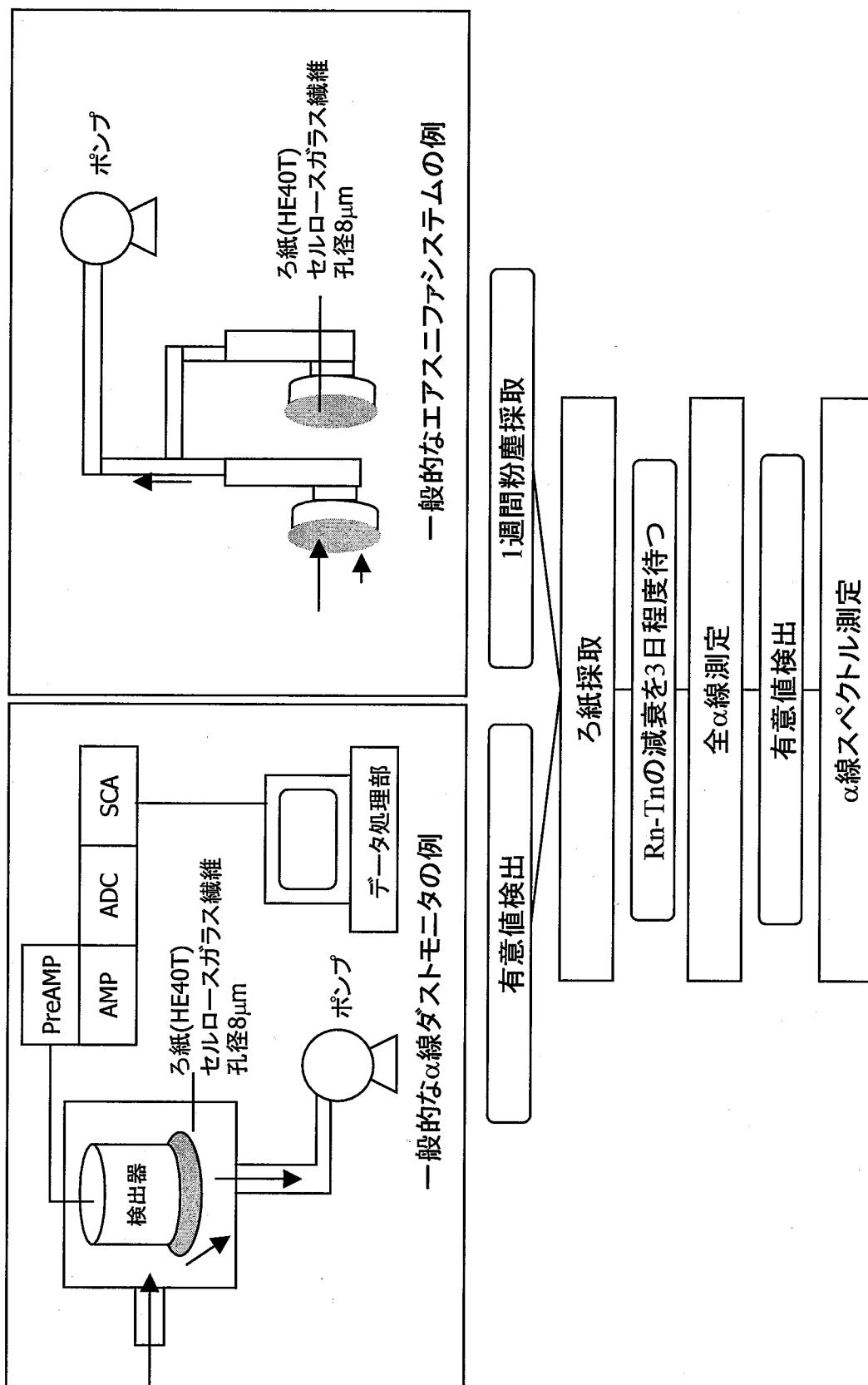


Fig.1 Measurement methods for radioactivity of dust sample

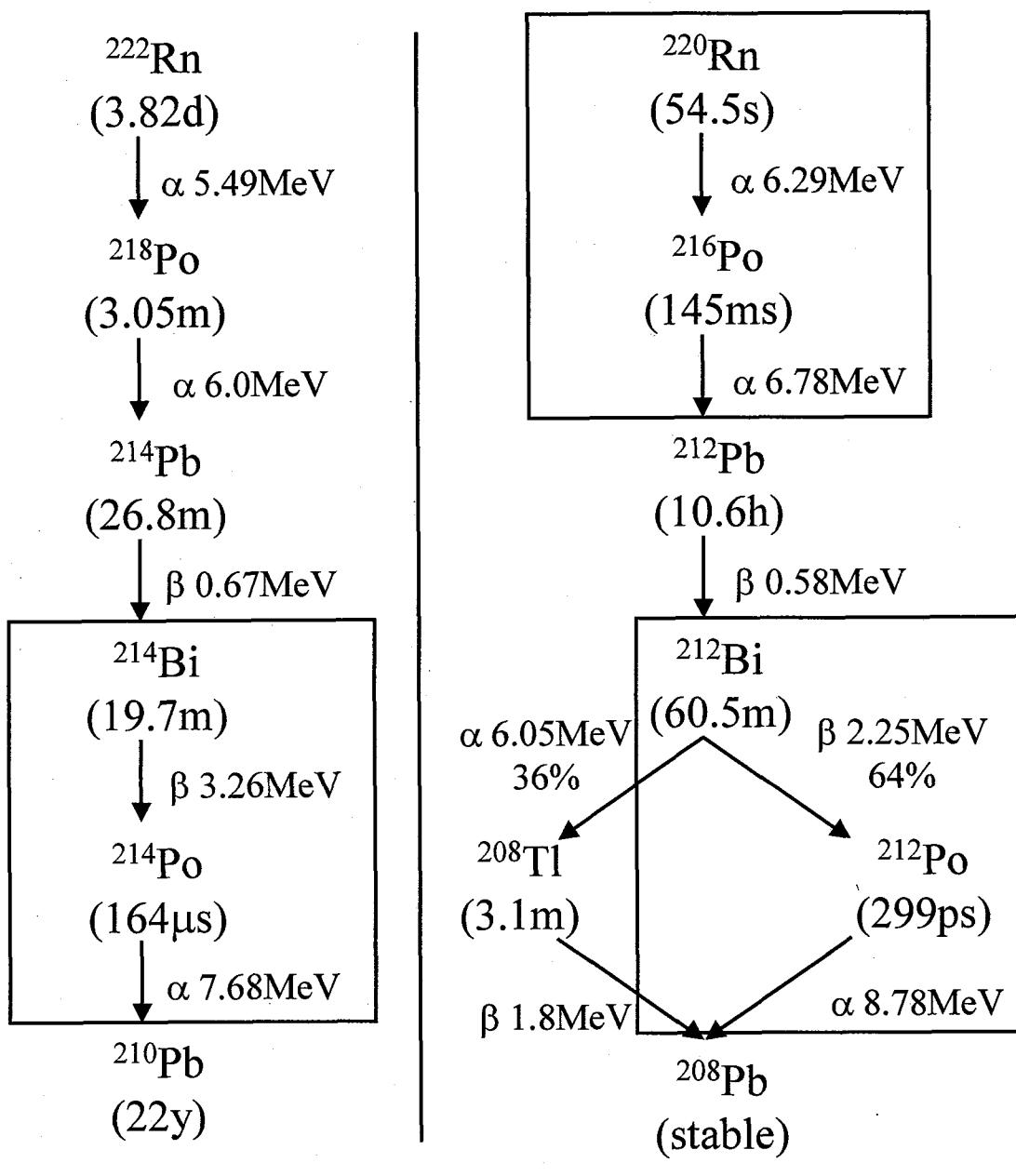
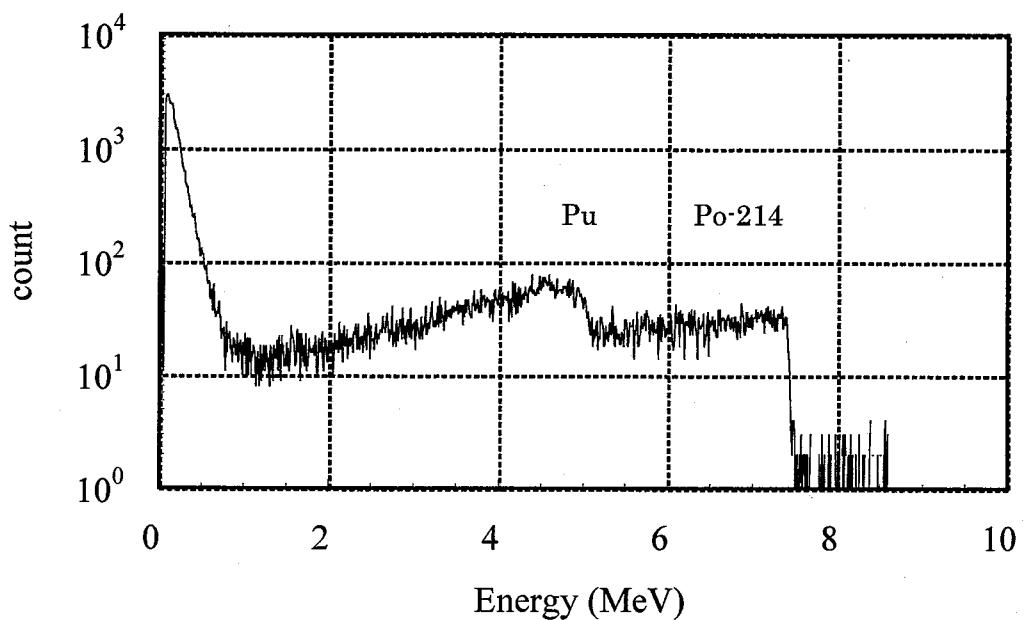


Fig. 2 Decay series of Uranium and Thorium



U isotopes		Pu isotopes		U series		Th series	
nuclide	α -ray energy	nuclide	α -ray energy	nuclide	α -ray energy	nuclide	α -ray energy
U234	4.78 MeV	Pu238	5.50 MeV	Po218	6.00 MeV	Po216	6.78 MeV
U235	4.40 MeV	Pu239	5.16 MeV	Po214	7.69 MeV	Po212	8.79 MeV
U238	4.20 MeV	Pu240	5.17 MeV				

Fig. 3 Example for α -spectrum of dust sample (Coexistence Pu and Rn-Tn) and summary for α -ray energy and main radioisotope.

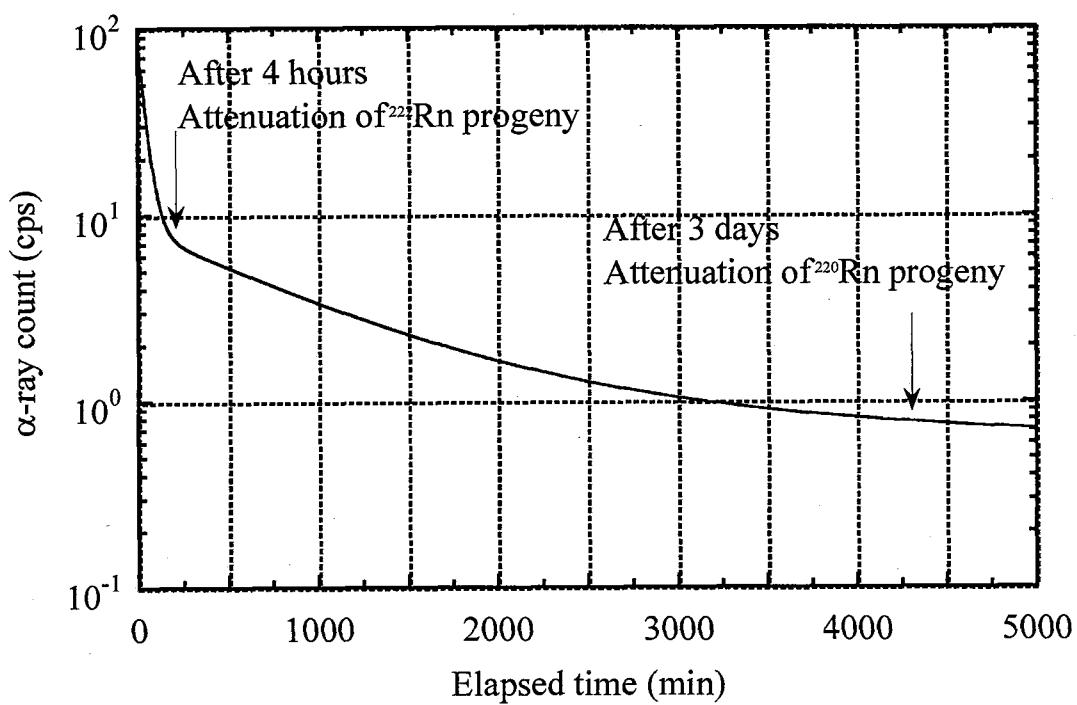


Fig. 4 Example of α -ray counts with elapsed time of dust sample

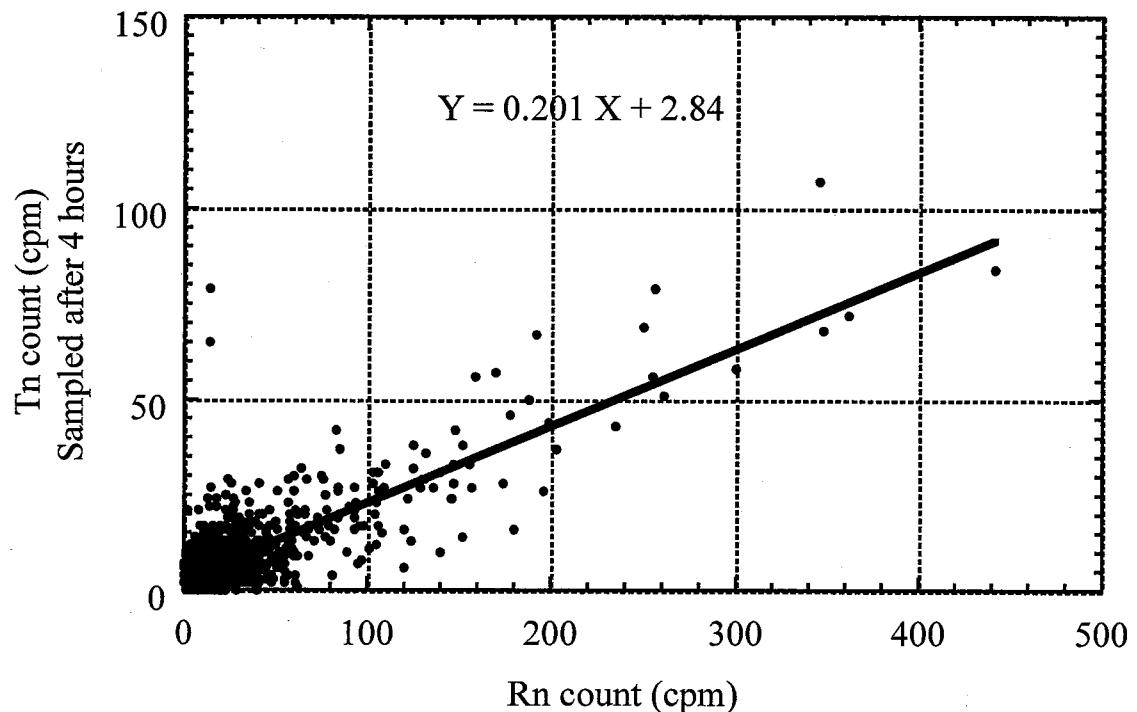


Fig. 5 Radioactivity ratio of ^{222}Rn (Rn) progenies and ^{220}Rn (Tn) progeny
(Work place of reprocessing facility, Excluding the uranium treatment facility)

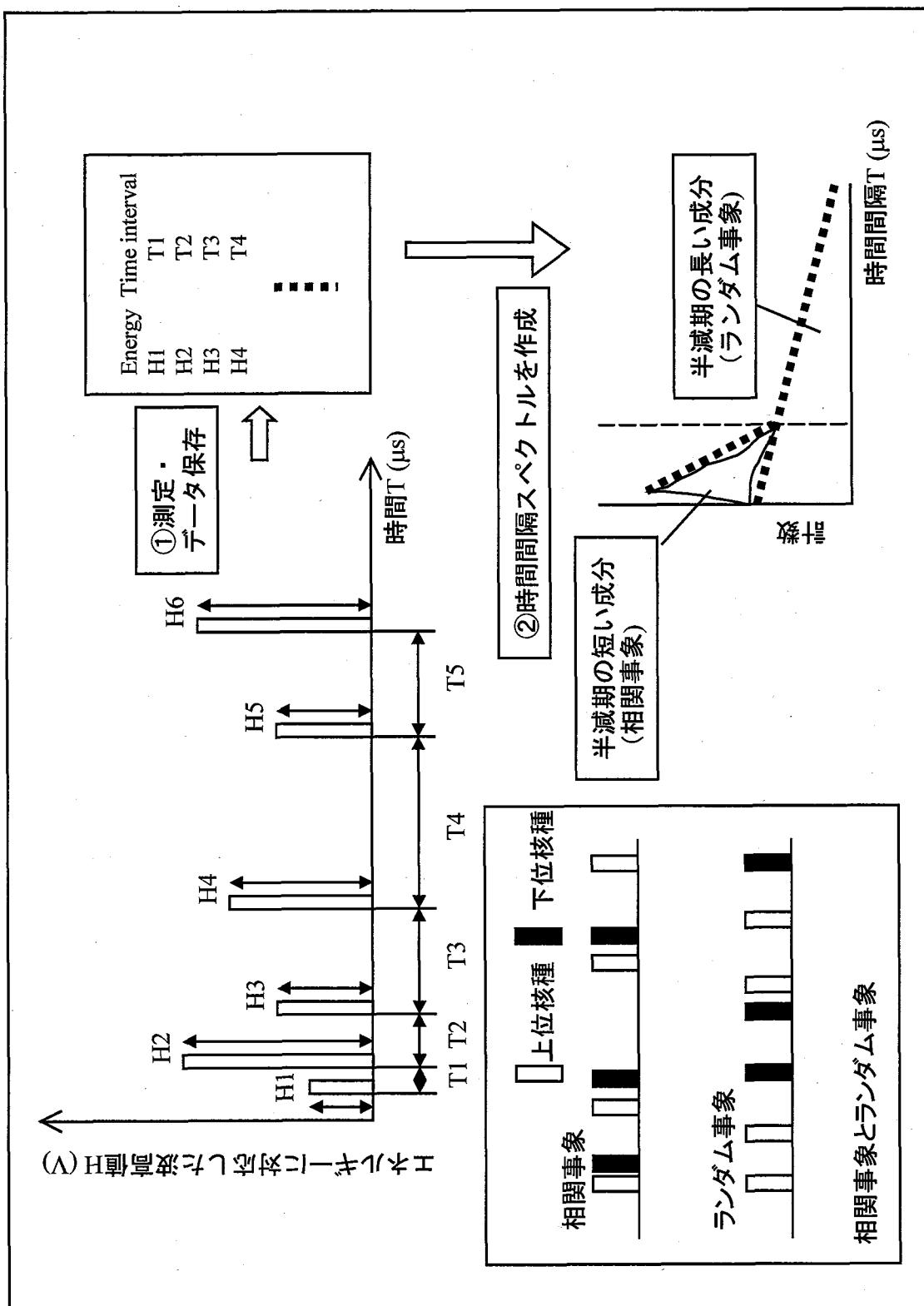


Fig. 6 Methods of time interval analysis

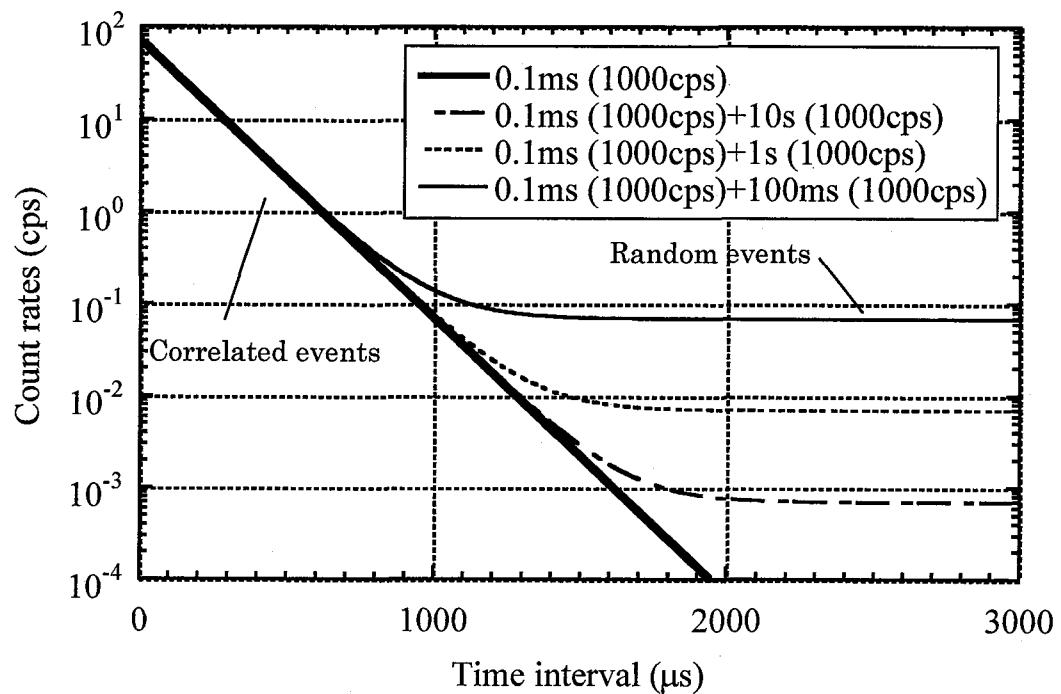


Fig. 7 Theoretical time interval spectrum by single time analysis
(Relation between half-life and time interval spectrum)

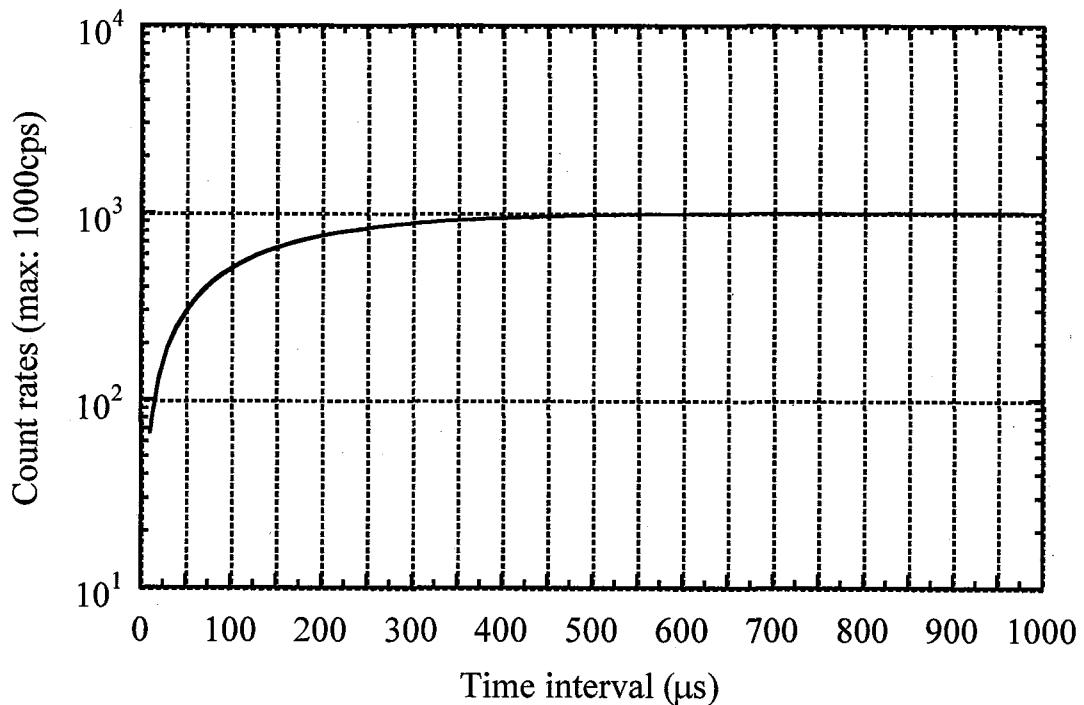


Fig. 8 Multiplication at time interval unit

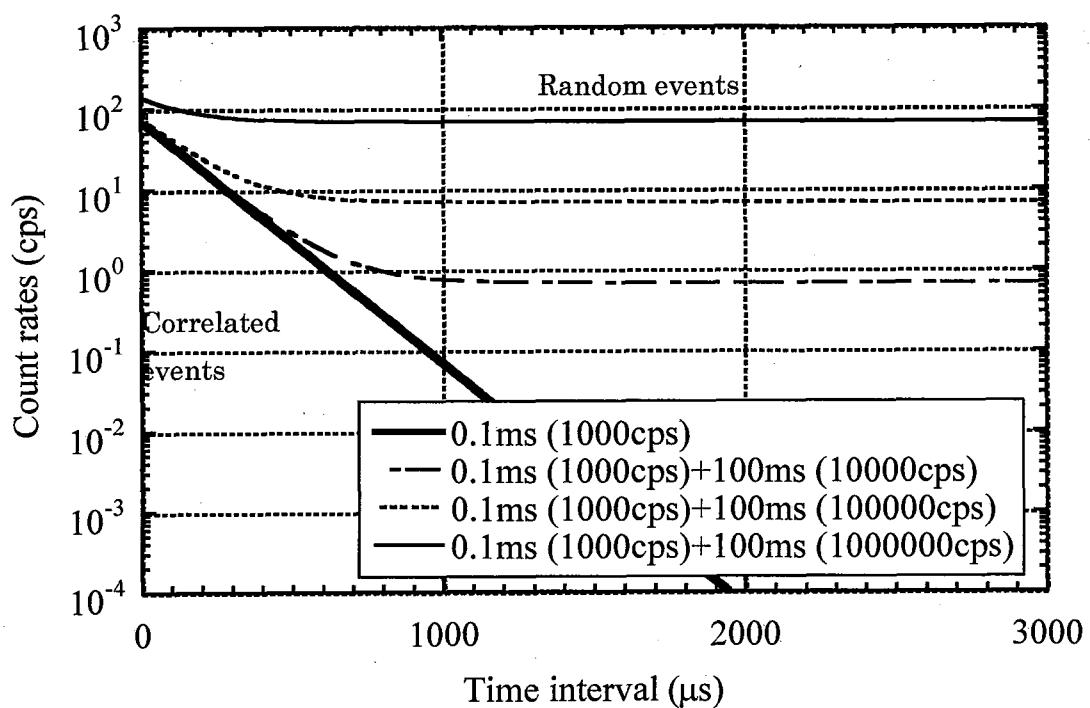


Fig. 9 Theoretical time interval spectrum by single time analysis
(Relation between counts and time interval spectrum)

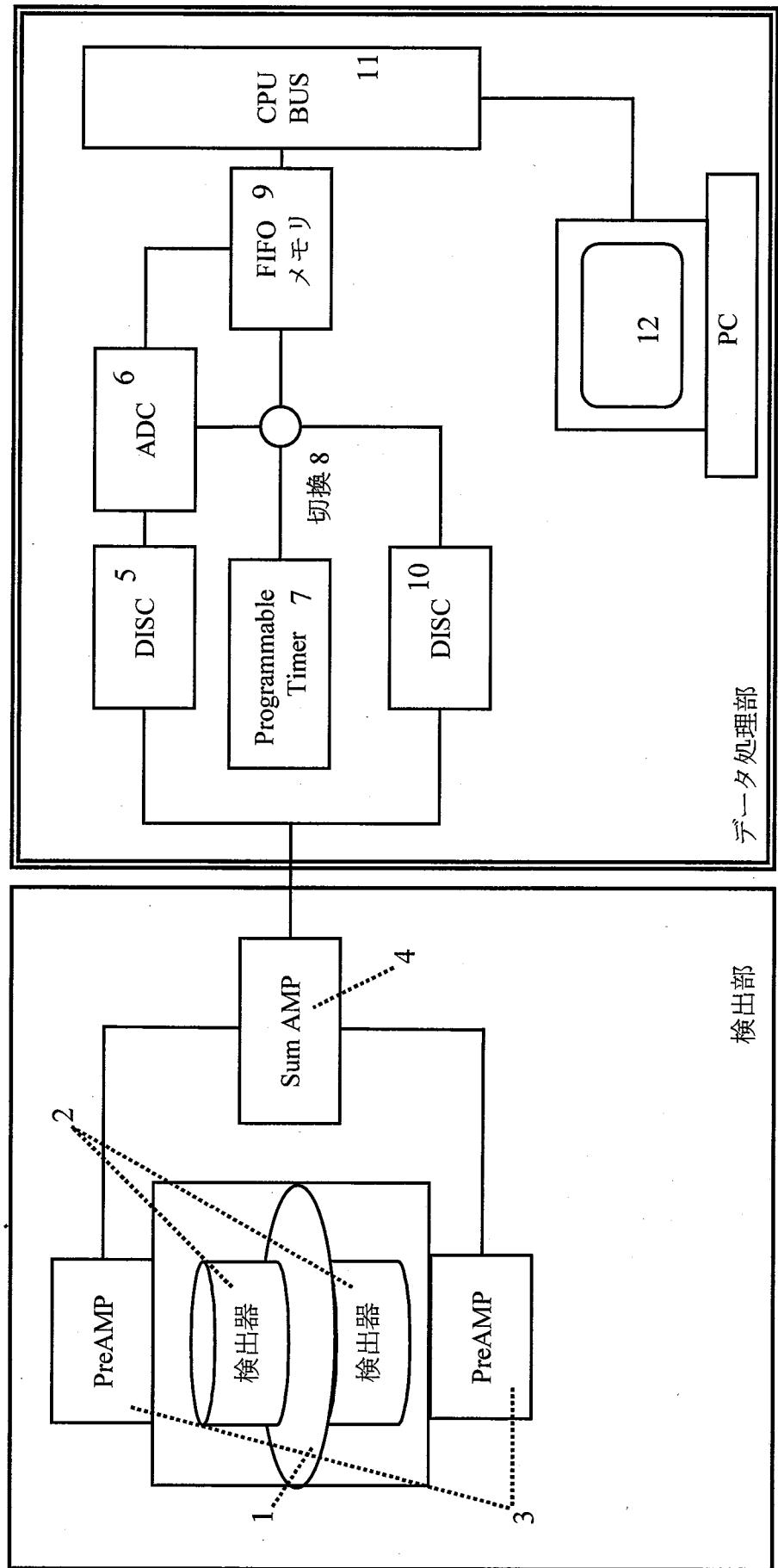
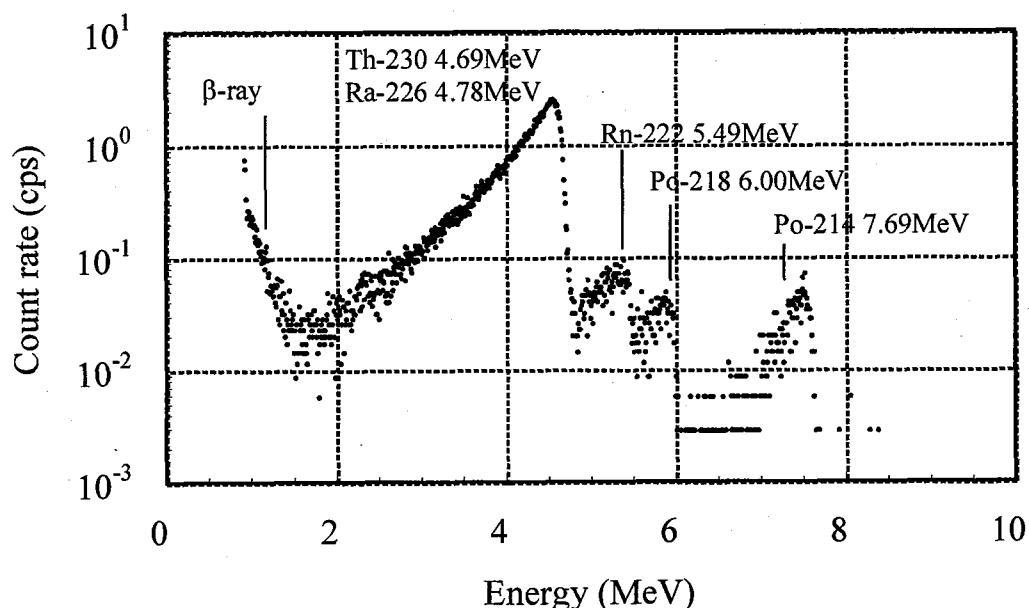


Fig. 10 Block diagram of the measuring system



α -線放出体			β -線放出体		
Nuclide	Half Lived	α -ray energy	nuclide	Half Lived	Maximum of β -ray energy (Emission rate)
Th230	7.5×10^4 y	4.68 MeV	Pb214	26.8 m	0.67 MeV (48.9%)
Ra226	1.6×10^3 y	4.78 MeV			0.73 MeV (42.2%)
Rn222	3.82 d	5.49 MeV	Bi214	19.9 m	1.51 MeV (17.0%)
Po218	3.10 m	6.00 MeV			1.54 MeV (17.8%)
Po214	164 μ s	7.69 MeV			3.27 MeV (18.2%)

Fig. 11 α -spectrum of ^{230}Th electrodeposited sources

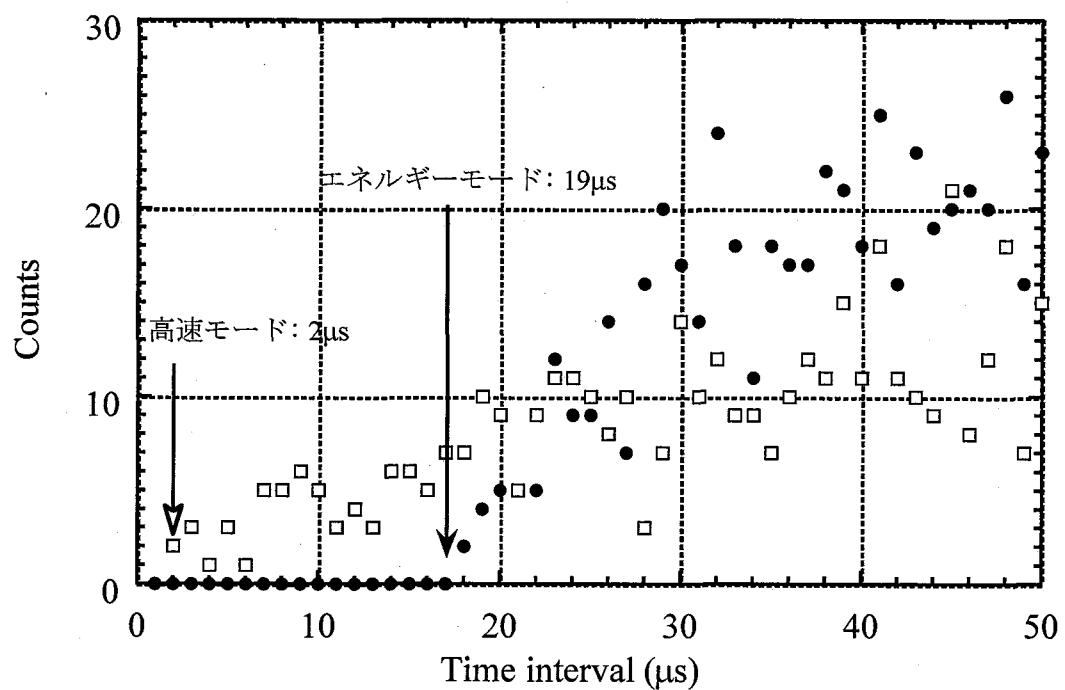


Fig. 12 Deadtime of measuring mode
(Deadtime: The maximum time interval when input pulse is not counted)

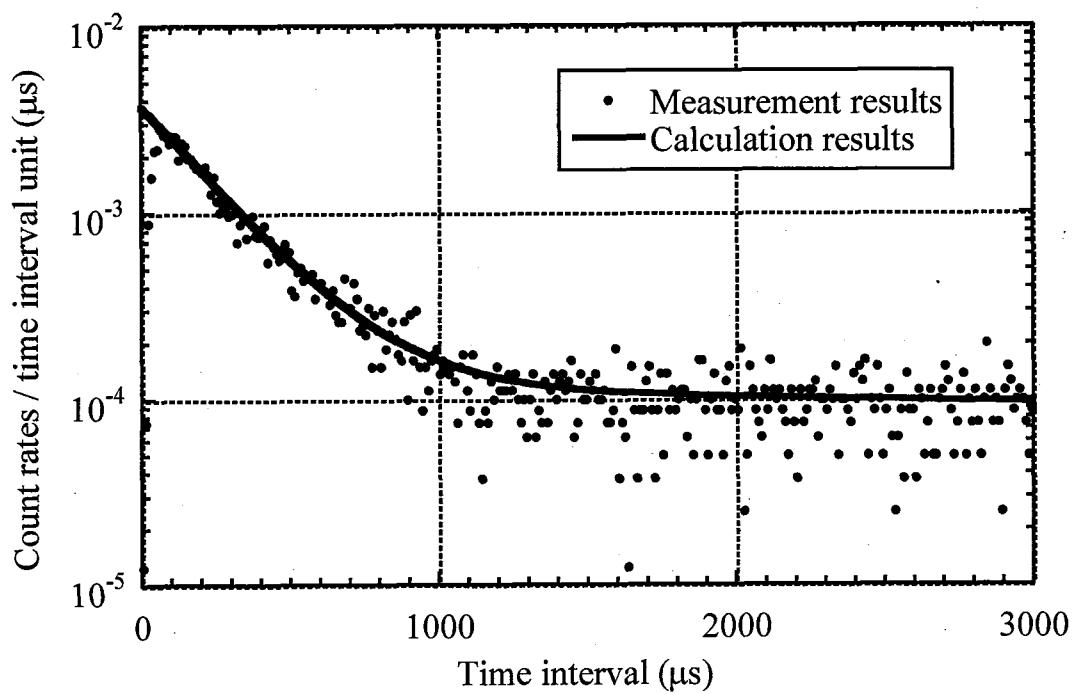


Fig. 13 Time interval spectrum of ^{230}Th electrodeposited sources

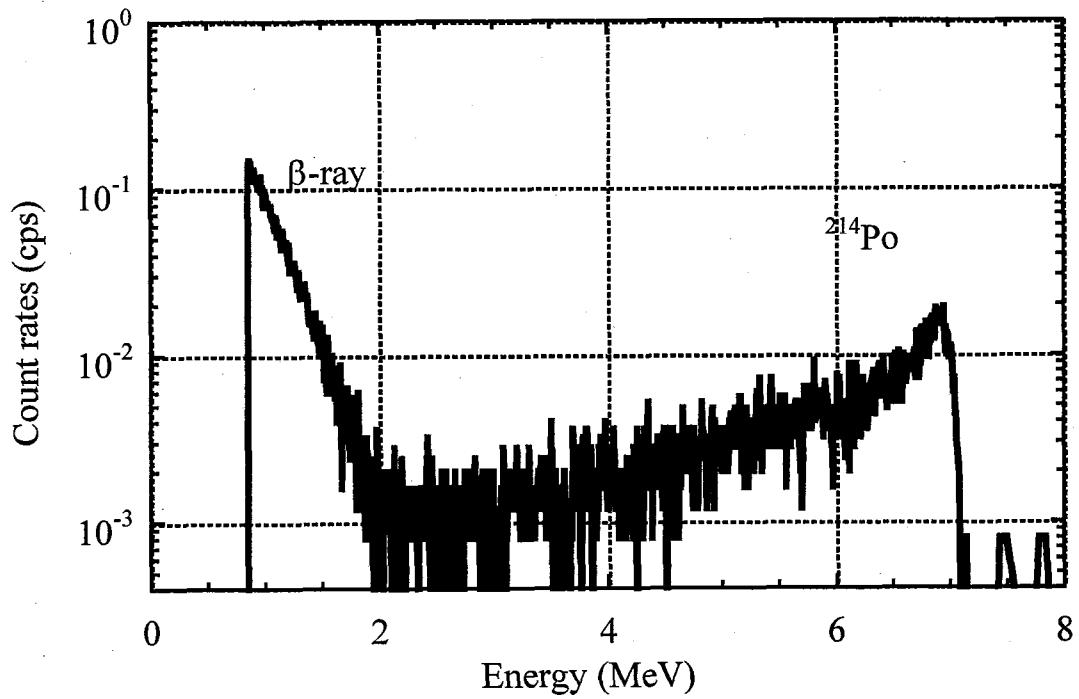


Fig. 14 α -spectrum of dust sample

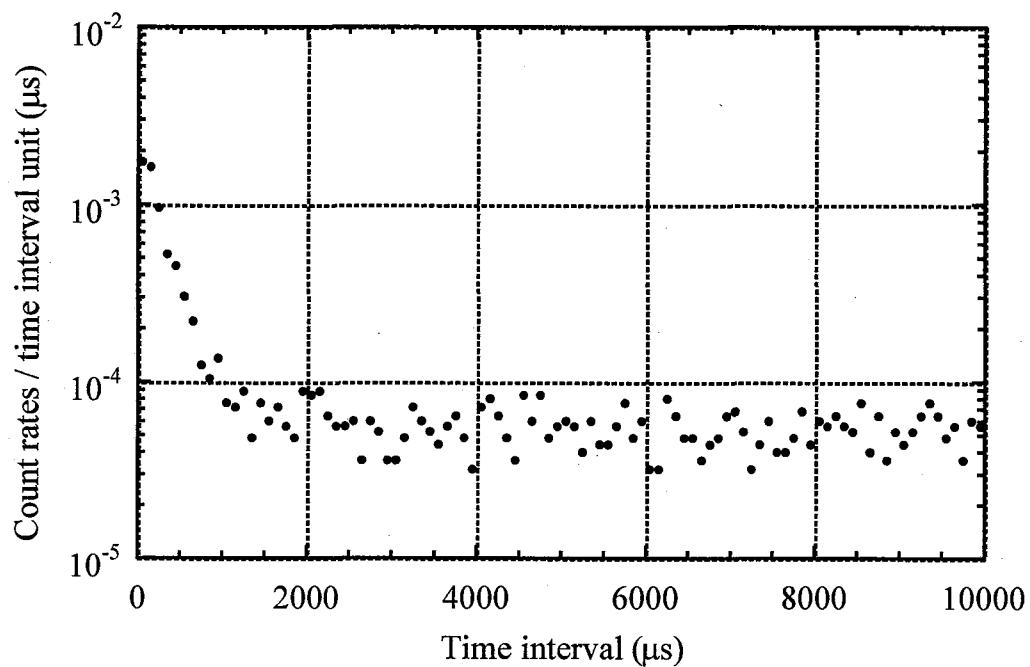


Fig. 15 Time interval spectrum of dust sample

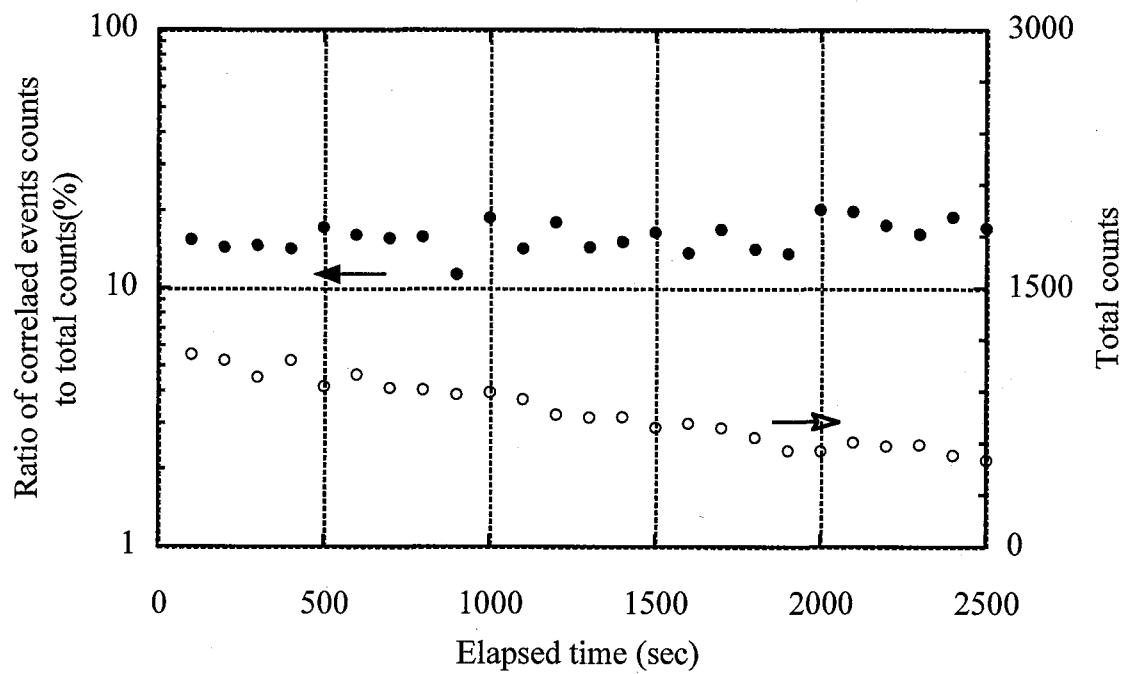


Fig. 16 α -ray total counts and ratio of correlated events counts to total counts with elapsed time of dust sample

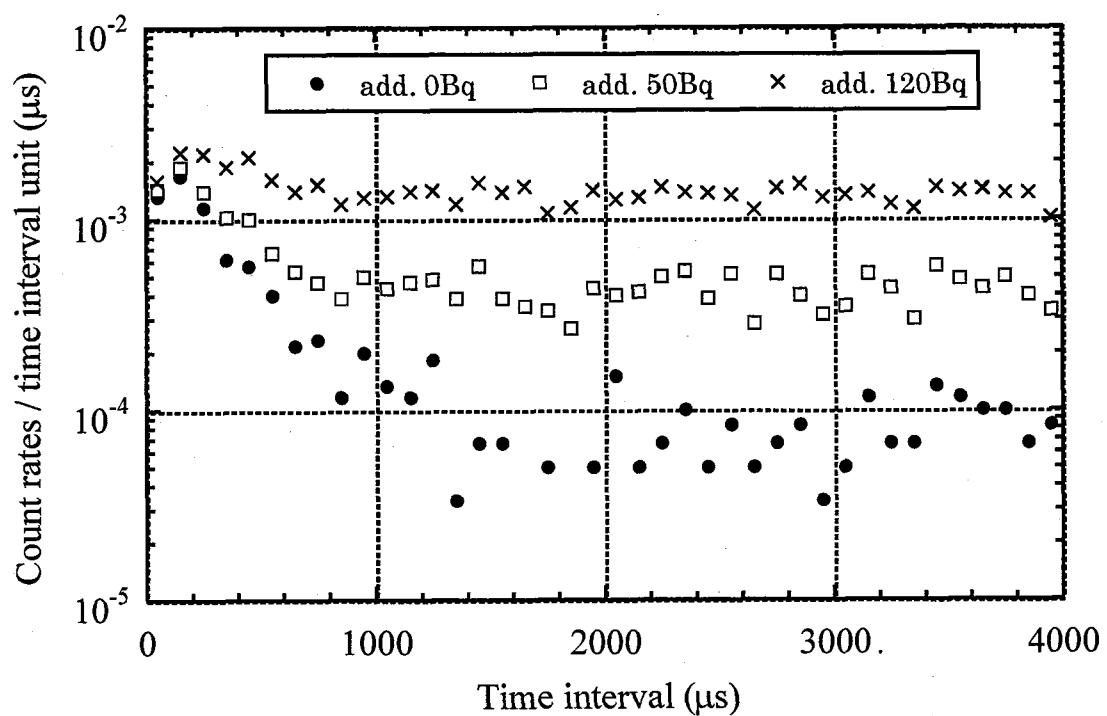


Fig. 17 Time interval spectrum of correlated events and additional random events.

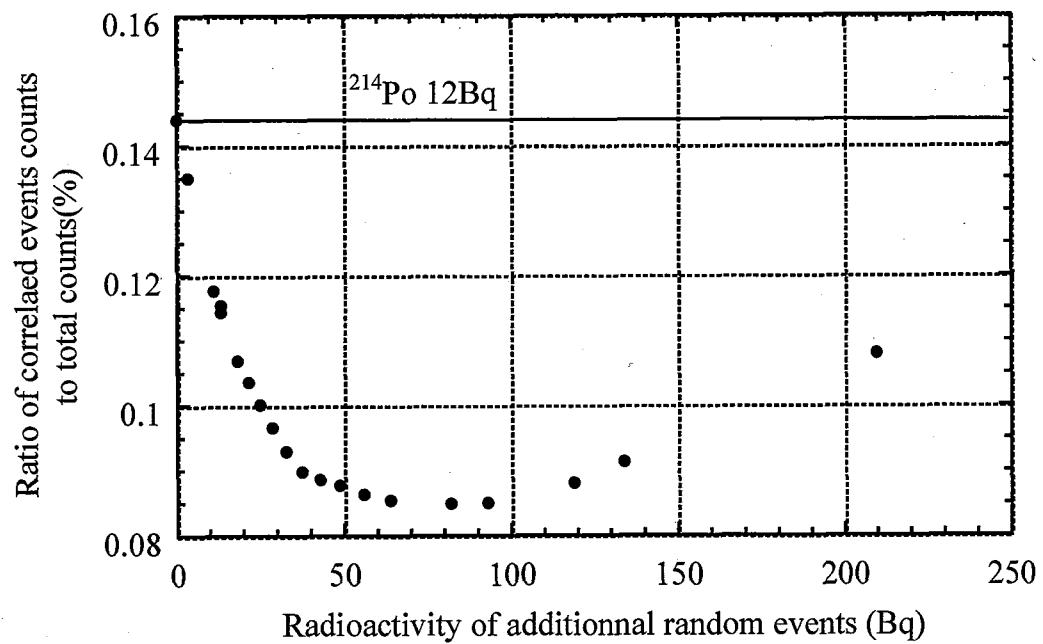


Fig. 18 Relation between additional radioactivity and calculating ratio of correlated event counts to total counts

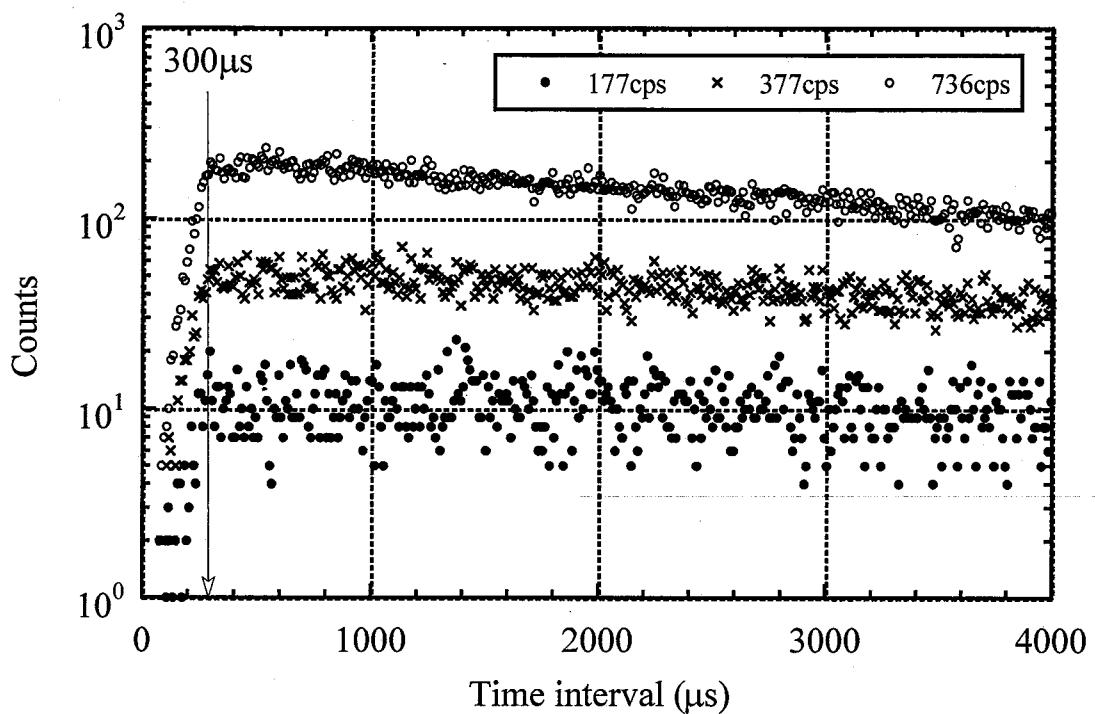


Fig. 19 Time interval spectrum of random events

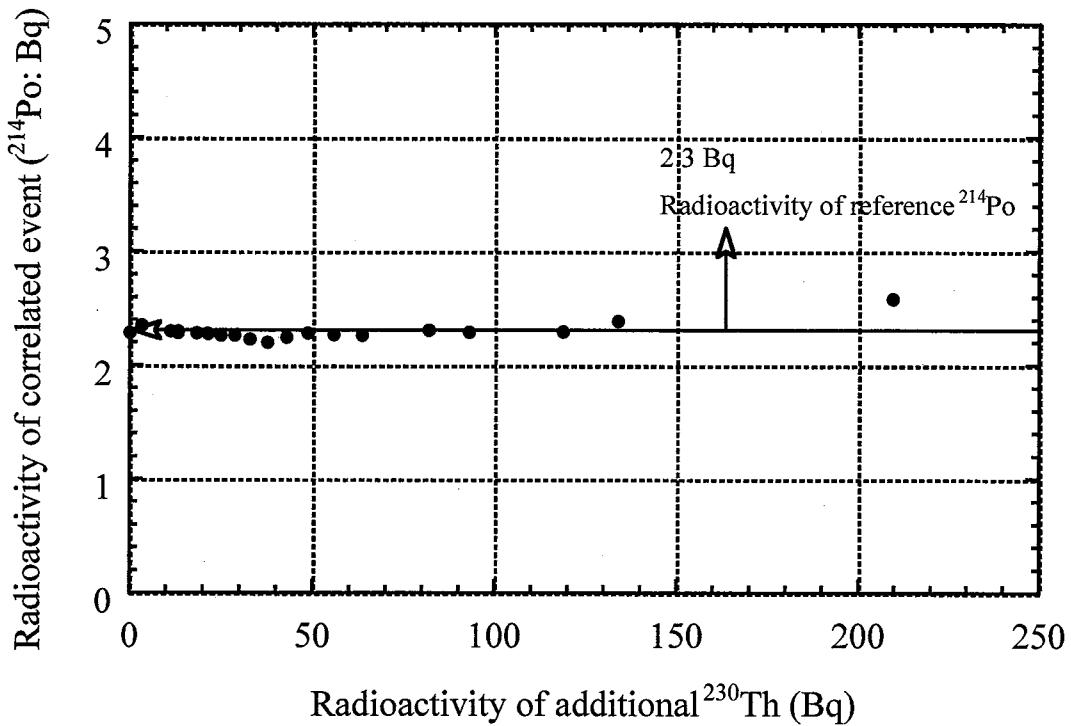


Fig. 20 Relationship of radioactivities between ^{230}Th added as standard and ^{214}Po determined by time interval analysis