

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。

01.10.-4

[技術情報室]

## 放射能強度絶対測定法に基づくガスモニタ校正技術 に関する研究(Ⅱ)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1997年3月

名古屋大学工学部

本資料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ください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒319-11  
茨城県那珂郡東海村大字村松4-23  
動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所



## 放射能強度絶対測定法に基づくガスモニタ校正技術に関する研究（Ⅱ）

森 千鶴夫<sup>※1</sup>， 吳 幼陽<sup>※1</sup>， 宮原 洋<sup>※1</sup>，  
揚村 寿英<sup>※2</sup>

## 要 旨

表記の研究は、原子力関連施設などで用いられている放射性ガスモニタ（以下「ガスモニタ」という。）の校正を容易にかつ高精度で行えるような方法・装置を開発し、測定精度などを検討・評価し、実用化を図ることを目的として昨年度から継続している委託研究である。

ガスモニタの校正には、放射能強度を絶対測定する基準系と、ガスモニタを校正する校正系の二つのガスループを、サンプリング容器で介して結合した装置を用いる。校正系内の試料ガスの一部をサンプリング容器で基準系に分取し、基準系において長軸比例計数管内拡散法（DLPC法）を用いて測定した放射能強度を基準にしてガスモニタの校正を行う。

本年度は、対数増幅器のような波高の抑制効果を持ち、分解時間が短く、かつ非常にシンプルな時定数変化型前置増幅器を開発して壁効果や低エネルギー損失を評価し、DLPC法を実用化できるようにした。またこれに基づいて、比例計数管を含む基準系に空気が入り込まない方法、被校正のガスモニタを含む校正系から基準系への試料の移行に伴う誤差を消去する方法を用いて通気型電離箱の校正を行い、その結果、得られた濃度換算係数の値は他の結果と極めてよい一致を示し、不確かさも99.7%の信頼率で±1.5%以内に収まった。これにより本委託研究で検討したガスモニタの校正方法は、十分に小さい測定誤差でしかも簡便にガスモニタの校正が行うことができる非常に有効な方法であると言える。

本報告書は、名古屋大学教授 森 千鶴夫 が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究成果である。

契約番号 :

事業団担当部課室及び担当者 : 東海事業所 安全管理部 放射線管理第一課 (江花 稔)

※1 : 名古屋大学工学部原子核工学科

※2 : 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻博士前期課程

# 目 次

1.	はじめに .....	1
1.1	研究の背景と目的 .....	1
1.2	本報告書の構成 .....	4
2.	気体状試料の放射能強度絶対測定法 .....	5
2.1	比例計数管法の問題点 .....	5
2.1.1	端効果 .....	5
2.1.2	壁効果と低エネルギー損失 .....	6
2.2	長軸比例計数管内拡散法 .....	7
2.3	対数増幅器 .....	8
2.4	対数型前置増幅器の開発 .....	9
3.	測定装置 .....	12
3.1	測定装置の構成 .....	12
3.2	対数型前置増幅器 .....	12
3.2.1	パルス波高抑制型前置増幅器 .....	14
3.2.1.1	パルス波高抑制前置増幅器の原理 .....	14
3.2.1.2	実験結果と検討 .....	19
3.2.2	時定数変化型前置増幅器 .....	25
3.2.2.1	時定数変化型前置増幅器の原理 .....	26
3.2.2.2	プラトー曲線と計数誤差の評価 .....	33
3.2.2.3	充填ガス圧力の影響 .....	46
3.2.2.4	分解時間 .....	50
4.	長軸比例計数管内拡散法による放射能強度の絶対測定 .....	53
4.1	最適計数時間 .....	53
4.1.1	測定原理と方法 .....	53
4.1.2	最適計数時間 .....	57
4.2	放射能強度の決定 .....	57

5. 放射性ガスモニタの校正 .....	6 1
5.1 校正装置 .....	6 2
5.1.1 装置の構成 .....	6 2
5.1.2 耐高圧力循環ポンプ .....	6 2
5.1.3 気体状試料のサンプリング容器 .....	6 7
5.1.4 放射性ガス試料の注入装置 .....	6 7
5.2 校正方法 .....	6 9
5.2.1 校正原理と方法 .....	6 9
5.2.2 気体状試料のサンプリング方法 .....	7 2
5.3 換算係数の評価 .....	7 4
5.4 通気型電離箱の校正 .....	7 5
6. まとめ .....	7 7
引用文献 .....	7 9

# 図表の目次

## Figures

Fig. 2-1	Pulse height spectra of $^{85}\text{Kr}$ from (a) linear amplifier and (b) logarithmic amplifier. ....	1 0
Fig. 3-1	Block diagram of instrument and the signal processing system for radioactivity measurement by DLPC method. ....	1 3
Fig. 3-2	Properties of Si diode 1s1588. (a) Property of the rectification. The ordinate of the inset graph is logarithmic scale. (b) Relation between forward bias voltage and diode resistance. ....	1 5
Fig. 3-3	Configuration of the logarithmic preamplifier with pulse height suppression. ....	1 6
Fig. 3-4	(a) Relation between the applied voltage to the terminal of the resistor R of Fig. 3-3 and the voltage across the diode for different resistance of R. (b) The extended graph of (a). ....	1 7
Fig. 3-5	Pulse height spectra with P-10 gas at 101.3 kPa for different applied voltages. (a) : 1970 V, (b) : 2050 V, (c) : 2130 V. ....	2 0
Fig. 3-6	Pulse height spectra with $\text{CH}_4$ gas at 101.3 kPa for different applied voltages. (a) : 3240 V, (b) : 3400 V, (c) : 3560 V. ....	2 1
Fig. 3-7	Pulse height spectra for different resistance of R. (a) : 300 $\Omega$ , (b) : 500 $\Omega$ , (c) : 1 k $\Omega$ . ....	2 3
Fig. 3-8	Pulse height spectra for different bias voltages to the diode. (a) : 0.3 V, (b) : 0.4 V, (c) : 0.5 V. ....	2 4
Fig. 3-9	Configuration of the logarithmic preamplifier with the variational time constant and its equivalent circuit for the current signals. ....	2 7
Fig. 3-10	Pulses from the preamplifier for (a) 3.3 M $\Omega$ and (b) Si diode 1s1588 as a load resistor. ....	2 9
Fig. 3-11	Pulses from the linear amplifier for (a) 3.3 M $\Omega$ and (b) Si diode 1s1588 as a load resistor of the preamplifier. ....	3 1

Fig. 3-12	Pulse height spectra with (a) $^3\text{H}$ and (b) $^{85}\text{Kr}$ for the diode and the resistor as the load resistor. ....	3 2
Fig. 3-13	Pulse height spectra for different applied voltages in the plateau measurements. ....	3 4
Fig. 3-14	(a) Plateau measurement for different discrimination levels. (b) The extended graph of (a). ....	3 6
Fig. 3-15	Differential plateau measurement in order to determine the optimum applied voltage. ....	3 7
Fig. 3-16	Pulse height spectra for different applied voltages. ....	3 9
Fig. 3-17	(a) Pulse Height spectrum for the appropriate applied voltage and discrimination level. (b) The extended graph of (a), in order to account for the correction of the count loss due to wall and threshold effects. ....	4 0
Fig. 3-18	Block diagram for the measurement in order to investigate whether the pulses with very small pulse height are due to wall effect or after-pulses. ....	4 3
Fig. 3-19	Pulses from the delay amplifier ( upper pulse shape in each figure (a), (b), (c) ) and from the pulse generator ( lower pulse shape in each figure ) for different delay times, 0 $\mu\text{s}$ , 400 $\mu\text{s}$ , 2 ms. ....	4 4
Fig. 3-20	Pulse height spectra for different delay times of gate pulses. Components of the distribution are the chance coincidence counts due to true and background pulses and the counts due to after-pulses. ....	4 5
Fig. 3-21	Time distribution of after-pulses. ....	4 7
Fig. 3-22	Pulse height spectra with P-10 gas at 101.3 kPa for (a) $^3\text{H}$ , (b) $^{14}\text{C}$ , (c) $^{85}\text{Kr}$ . ...	4 8
Fig. 3-23	Pulse height spectra with P-10 gas at 405.2 kPa for (a) $^3\text{H}$ , (b) $^{14}\text{C}$ , (c) $^{85}\text{Kr}$ . ...	4 9
Fig. 3-24	Circuit of the logarithmic preamplifier with the variational time constant. ....	5 2
Fig. 4-1	Relative counting rate as a function of diffusion time for (a) $^3\text{H}$ , (b) $^{14}\text{C}$ , (c) $^{85}\text{Kr}$ . ....	5 6
Fig. 4-2	(a) Relative error of measured radioactivity as a function of counting time calculated with eq. (4-10) for different injected radioactivity. (b) Optimized counting time as a function of radioactivity determined from eq. (4-10) for different gaseous samples. ....	5 8

Fig. 5-1	Setup of gas loops for calibration of radioactive gas monitoring instruments. ....	6 3
Fig. 5-2	Relative ionization current in (a) air, (b) P-10 and (c) Ch4 at 405.2 kPa as a function of circulation time. ....	6 5
Fig. 5-3	Relative counting rate as a function of elapsed time and circulation time. ....	6 6
Fig. 5-4	Block diagram of the radioactive gas injection system. ....	6 8
Fig. 5-5	Relative counting rate as a function of diffusion time of the radioactive gas injected with a microsyringe and with the radioactive gas injection system. ....	7 0
Fig. 5-6	Simplified gas loops in order to account for the new sampling method. ....	7 3

## Tables

Table 3-1	Results of resolving time measurement with Source-Pulser method. ....	5 1
Table 4-1	Results of radioactivity measurements with the DLPC method applying optimized counting time and curtailed one for $^3\text{H}$ , $^{14}\text{C}$ and $^{85}\text{Kr}$ . ....	5 9
Table 5-1	Results of $k$ measurements for $^3\text{H}$ and $^{85}\text{Kr}$ . ....	7 6
Table 5-2	Conversion factors in air at 101.3 kPa for 1.5 l ionization chamber. ....	7 6



# 1. はじめに

## 1.1 研究の背景と目的

現在、放射性物質は多くの分野で使用されており、作業環境や一般環境におけるそれらの管理には十分に注意を払う必要がある。特に、原子力関連施設およびその周辺環境における気体状放射性物質の放射能を正確に把握することは極めて重要である。環境管理のため種々の放射性ガスモニタが使用されているが、これらのガスモニタを用いて得られる放射能の測定値の信頼性を確保するためには、実際の放射能ガスを用いた校正が不可欠となる。この校正には、校正用の標準試料ガスの放射能強度を直接かつ高い精度で測定することが基本的な問題となっている。また、標準試料ガスは単にガスモニタの校正にとどまらず、気体状試料の一般的使用に対する基準として与えられる。このような意味からも、精度の高い気体状試料の放射能強度絶対測定法の開発は重要な課題となっている。

気体状試料の放射能強度の絶対測定法としてはいくつかの方法がある。一つは電離箱を用い充填ガスの一成分として放射性同位元素(RI) 試料ガスを混入し、測定した電離電流から試料ガスの放射能強度を求める方法である[1~3]。電離箱を用いる利点は、空気を充填ガスとして利用でき、連続したモニタリングが可能であることである。したがって、放出されるベータ粒子のエネルギーが低いトリチウムのような試料には応用できる。しかし、ベータ粒子のエネルギーが大きくなると電離箱の内壁中で失われるエネルギーの割合が大きくなり、測定される電離電流を適切に校正しなければ利用できない。

その他の方法として、比例計数管を用いる方法がある。この方法はベータ粒子によるパルスを計数して放射能強度を決定する方法である。比例計数管を用いる場合に問題となるのは、端効果、壁効果・低エネルギー損失である。端効

果は、計数管端の電場の弱い領域においてベータ粒子によるパルスが計数されないことである。この端効果を低減するための一つの方法としてフィールドチューブ法[4]がある。この方法は、フィールドチューブという陽極線より直径のずっと大きい導電性の管を陽極線のまわりに置く方法である。直径が陽極線より大きいため、フィールドチューブと陰極間ではガス増倍は起こさない。しかしこの方法においてもなお電場の不均一な領域は存在する。

現在広く用いられている方法は、米国 NIST (National Institute of Standards and Technology) で開発された長さ補償比例計数管法である[5~6]。この方法は、構造が全く同じで長さが違う二本以上の計数管内に試料を導入し濃度を均一にして、測定した計数の差を取ることによって、計数管端部の計数を消去できる。しかし、計数管端部の構造を全く同じにするのは実際上かなり困難であること、二本以上の計数管が必要なこと、計数の差を取ることによる統計誤差が増加することなどから、得られる測定精度は 2~3% である。

さらに精度の高い測定方法として、長軸比例計数管内拡散法 (Diffusion in Long Proportional Counter (DLPC) method) が名古屋大学工学部原子核工学科原子核計測工学講座において考案された[7]。この方法は、測定する試料ガスを計数管中央に注入して、試料ガスが計数管の両端に拡散するまでの間に計数するという簡便な方法で、得られる測定精度は 0.5% 以下である。

比例計数管法においてはそれでもなお壁効果・低エネルギー損失の問題が残る。壁効果は、ベータ粒子が計数管内壁の近傍で放出された場合にベータ粒子によって生成されるパルス波高がディスクリミネーションレベル以下の場合に起こる計数損失である。また低エネルギー損失は、ベータ粒子のエネルギー分布が連続分布のためディスクリミネーションレベル以下のエネルギーのベータ粒子によるパルスは計数されないことである。トリチウムのようなエネルギーの低い核種に対しては、ガス増倍度の飽和を用いてこれらの影響を除去することができる[8]。しかし、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  のようなエネルギーの高い核種の場合、計数されるパルス波高が 2~3 桁の広い範囲に及び比例増幅器一台のダイナミックレンジでは対処できない。 $^{14}\text{C}$  に対しては、利得の異なる二台の比例増幅器を用いて一定の成果を上げている[9] が、 $^{85}\text{Kr}$  では三台以上の比例増幅器が必要で、それらの調整は非常に困難である。そこで比例増幅器のダイナミックレン

ジの狭さをカバーするため対数増幅器が同講座において開発された[10~11]。対数増幅器の導入によって、すべての核種において、すべての波高を増幅器のダイナミックレンジに収めることができ、かつ微小な波高のパルスも容易にノイズと弁別できる。しかし、作製・調整が困難で、また時間応答性が悪いためにパルス幅は広くなり、システム全体の分解時間は非常に遅い。

DLPC 法を実用化するためには、前置増幅器、比例増幅器、波高弁別器、スケーラという簡単な装置で測定ができることが望ましい。したがって、対数増幅器を用いなくて微小なエネルギーのベータ粒子も計数できるよう、上記の装置内で改良する必要がある。

先にも述べたように、気体状放射性核種のモニタリングは、空気を充填ガスにでき、かつ連続モニタリングができることから電離箱が汎用されている。トリチウム以外の核種についても正確にその放射能強度を知るために、実際の放射性ガスを用いて定期的にそれらを校正する必要がある。現在わが国においては、放射能強度既知の放射性標準線源を外国から購入してガスモニタに導入して校正する方法か、国家標準の通産省電子技術総合研究所によって校正された標準電離箱との比較によって校正する方法しかない。前者の方法は標準線源が高価であり、その放射能強度の精度も非常に悪い。後者の方法は、手間がかかり、また、長さ補償比例計数管法によって標準ガスの放射能強度を与えているため、校正の不確かさは 10% と大きい。そのため容易でかつ高い精度が得られるようなガスモニタの校正方法の開発が望まれていた。

そのような状況の中で、DLPC 法の有用性に着目した放射性ガスモニタの校正方法が、吉田らによって開発された[12]。この方法による校正の不確かさは大きく改善されて 4% である。しかし、この不確かさをさらに低減し、より簡便にガスモニタの校正が行なえることが望まれる。

本委託研究の目的は、対数増幅器のような特性を持ち、分解時間が短く、かつ非常にシンプルな前置増幅器を開発して壁効果や低エネルギー損失を評価して DLPC 法を実用化し、これに基づいて、いくつかの新しい放射性ガスモニタの校正方法を導入し、簡便さの追求と精度の向上を検討することである。

## 1.2 本報告書の構成

1.では、長軸比例計数管内拡散法と放射性ガスモニタの校正のこれまでの状況について述べ、これらとの関連において本研究の目的について述べた。

2.では、比例計数管法を用いた放射能強度の絶対測定法の問題点を詳しく述べ、また対数増幅器の利用における問題点を挙げ、対数型前置増幅器の開発の必要性について述べる。

3.では、測定装置の構成について述べる。そのなかで本研究で開発した二つの対数型前置増幅器について詳しく議論する。ひとつは通常のエミッタフォロワ型緩衝増幅器の出力に抵抗、ダイオード、直流電圧源を配置し、ダイオードの整流特性を利用するパルス波高抑制型前置増幅器である。もうひとつは、高電圧端子と比例計数管の陽極線の間にある負荷抵抗をダイオードに置き換え、比例計数管からの出力パルスの波高に対応してダイオードの抵抗が変化することを利用する時定数変化型前置増幅器である。

4.では、長軸比例計数管内拡散法における最適な計数時間について述べる。長軸比例計数管内拡散法では計数時間を長くすれば統計誤差が小さくなるので有利であるが、あまり長くすると試料ガスが計数管の端へ拡散していくので、端効果による系統誤差が大きくなる。この二つの誤差を含む全相対誤差が最小になる最適計数時間について検討し、放射能強度の精度について評価する。

5.では、長軸比例計数管内拡散法を利用した放射性ガスモニタの校正について、吉田らの方法[12]よりもさらに不確かさを低減させるために考案した方法について述べる。ひとつは、比例計数管内に空気が混入しない方法であり、もうひとつは、放射性試料ガスを校正系から基準系に移行するより簡便な方法である。これらの方法の信頼性を評価するため、通気型電離箱を対象とした校正結果について述べ、他の結果と比較する。

6.では、本研究を通して得られた結果、知見をまとめ、結論を述べる。

## 2. 気体状試料の放射能強度絶対測定法

### 2.1 比例計数管法の問題点

$\beta$ 崩壊核種の気体状試料の放射能強度の絶対測定を行う場合、一般的に、同軸円筒型比例計数管の内部に試料を導入して測定されることが多い。この方法は自己吸収がまったくないため非常に有効な方法である。この方法における誤差をもたらす要因は、端効果、壁効果、低エネルギー損失の三つが挙げられる。以下にこの三つについて詳しく述べる。

#### 2.1.1 端効果

高電圧のかかった同軸円筒型比例計数管内の電場は、管の端部においては壁の存在やその他の陽極線を導入する構造物の存在に起因して著しく歪む。この端部領域に作られたイオン対は管の体積全体に作られたイオン対と異なった大きさのガス増倍を起こす。これを端効果という。

この方法の最も一般的な解決法は、端部近傍に起こる事象に対してガス増倍が起こらないようにするために、この不感領域と、比例計数管の残りの有感体積の間で急激な変化が生じるように計数管を設計してやればよい。この条件を満たす方法がフィールドチューブ法[4]である。陽極線よりもずっと大きな直径のフィールドチューブという導電性管を陽極線のまわりに置き、その直径に対応した高電圧をかける。フィールドチューブの直径が大きいため、フィールドチューブと陰極間の領域ではガス増倍を起こさない不感領域となる。したがってフィールドチューブの端は、比例計数管の端からある距離において有感体積の始まりを明確に定める。しかしベータ粒子のエネルギーが高い場合、不感領域内で発生したベータ粒子の一部は有感体積内に入ってくるため、本来計数されるべきでないベータ粒子が計数されてしまう。これも端効果の一種である。

気体状試料の放射能強度の絶対測定におけるこれら端効果の影響を取り除いた方法として、米国 NIST で開発された長さ補償比例計数管法[5~6]が、現在世界各国において標準の測定法となっている。この方法は、構造が全く同じで長さが異なる二本以上の計数管内に試料を導入し、濃度を均一にして測定し、それらの計数の差をとることによって端効果の影響を取り除くことができる。しかしこの方法は、すべての計数管の端効果の特性およびその他の測定条件が等しいという条件を満たしていなければならない。實際上これらの条件を満たすことはかなり困難である。また、計数の差を取るため統計誤差が増加し、得られる放射能強度の測定精度はせいぜい 2~3% である。さらに二本以上の計数管を用いるため、装置はやや大がかりなものとなる。

### 2.1.2 壁効果と低エネルギー損失

比例計数管法において、計数管内に導入された気体状試料から放出されるベータ粒子が計数管内壁の近傍になるとそのエネルギーの大半を壁の中で失い、この場合ベータ粒子によって生成されるパルス波高は非常に小さい。実際の測定においては、ノイズなどを除去するためにパルス波高弁別器のディスクリミネーションレベルをある一定のパルス波高に設定するため、もし生成されたパルス波高がこのレベルより小さい場合には計数されない。これを壁効果という。壁効果の影響は、ベータ粒子のエネルギーの高い  $^{85}\text{Kr}$  のような核種では顕著になる。何故ならば、エネルギーが高い場合にはエネルギー損失  $dE/dx$  が小さいからである。そのため、計数管内に充填されている比例計数ガスの圧力を高くして  $dE/dx$  を大きくすることや、阻止能の大きい計数ガスを使用することなどが有効である。また、計数管内に導入された同じ放射能強度の試料ガスに対して、種々の圧力で計数を測定し圧力の無限大まで外挿すること、すなわち圧力の逆数をゼロに外挿することによって、壁効果の影響を知ることができる。圧力を無限大にすれば  $dE/dx$  も原理的には無限大になり壁効果がなくなるからである。

ベータ粒子のエネルギー分布は、ある最大エネルギーを持った連続分布である。このため、ある一定のパルス波高にディスクリミネーションレベルを設定すると、ディスクリミネーションレベル以下のエネルギーに対応するベータ粒

子によって生成されたパルスは計数されない。これを低エネルギー損失という。この計数損失は、もし設定するディスクリミネーションレベルが同一であるならば、壁効果による計数損失とは逆に、エネルギーの低いベータ粒子を放出する  $^3\text{H}$  のような核種ほど大きくなる。実際の  $^3\text{H}$  の測定では、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  の測定に比べるとディスクリミネーションレベルを比較的低く設定できるため、あまり重大な問題とはならない。この低エネルギー損失は、ディスクリミネーションレベルのエネルギー校正を行えば計算により評価できる[7]。このエネルギー校正は通常、計数損失をできるだけ小さくするために  $^{37}\text{Ar}$  から放出される L-Auger 電子のエネルギー 220 eV に設定する。しかし、 $^{37}\text{Ar}$  は半減期が 35.04 d と短いため比較的入手が困難で、汎用的な利用は難しい場合が多い。

実際の測定では、これら二つによる計数損失はディスクリミネーションレベル以下の計数損失として一つの補正因子として扱う。

## 2.2 長軸比例計数管内拡散法

長さ補償比例計数管法よりもさらに精度の高い放射能強度絶対測定法として、長軸比例計数管内拡散 (DLPC) 法が開発された[7~9]。この方法は、試料ガスを計数管の中央から注入して拡散させ、試料ガスが有感体積内を出ないうちに計数を測定して放射能強度を求めるのが基本的な方法である。したがって全く端効果の影響を受けないということになる。この方法は、測定時間を長くすれば統計誤差が小さくなって精度はより高くなる。しかしあまり長くすると試料が有感体積を出て端効果を引き起こし系統誤差が大きくなる。これら二つを含む全相対誤差が最小になる時間すなわち最適計数時間が存在する[13]。実際は最適計数時間を評価しなくても、有感体積を出る前までの測定時間で 0.5% 以下の精度で放射能強度を決定することができる。最適計数時間については、4. で詳しく述べる。

## 2.3 対数増幅器

DLPC 法によって端効果の影響は完全に取り除くことが可能となった。しかし、正確に放射能強度を決定するためには壁効果と低エネルギー損失の影響を考慮しなければならない。エネルギーの極めて小さいベータ粒子によって生成された微小パルスを計数するために、単純に比例増幅器の利得をあげればよいというわけにはいかない。ベータ粒子のエネルギー分布は連続分布のため、中程度以上の最大エネルギーを持った核種が計数管に付与したエネルギーに対応するパルス波高分布は、比例増幅器のパルス波高のダイナミックレンジを越えてしまい、後段の波高弁別器の動作に悪影響を及ぼす。そこで、比例増幅器の出力にツェナーダイオードを入れて波高をツェナー電圧以下に制限する方法が用いられる。しかし、この方法においてはパルス幅が大きくなって分解時間が長くなってしまう。したがって、全てのパルスを適切な波形と波高にして比例増幅器のダイナミックレンジに収め、かつ微小パルスも計数することが最も望ましい。

エネルギーの低いベータ粒子を放出するトリチウムのような核種では、ガス増倍度の飽和を利用してこれらの影響を除去できる[8]。トリチウムの最大エネルギーが 18.6 keV で比例計数ガスとして用いる 101.3 kPa の P-10 ガス中での最大飛程が 0.4 cm であるため、ほぼ全てのエネルギーを計数ガス中で失う。このため、印加電圧と比例増幅器の利得を適当に選ぶことによって高いエネルギーのベータ粒子に対してはガス増倍度の飽和を起こさせ、その結果それに対応するパルス波高は比例増幅器で飽和を起こさない。また、低エネルギーのベータ粒子に対してはガス増倍度の飽和は起こりにくく、そのパルスとノイズとの弁別が可能となる。

$^{14}\text{C}$  は最大エネルギーが 156.1 keV で、101.3 kPa の P-10 ガス中での最大飛程が 18 cm である。高いエネルギーのベータ粒子が計数管の軸方向に放出されると大きなエネルギーを失う。しかも計数管の陽極線方向の単位長さあたりに生成されるイオン対の密度はそれほど大きくないため、ガス増倍度の飽和は起こりにくくパルス波高は大きくなる。一方、低いエネルギーのベータ粒子や、計数管の軸に垂直方向に放出されるベータ粒子に対応するパルス波高は小さい。



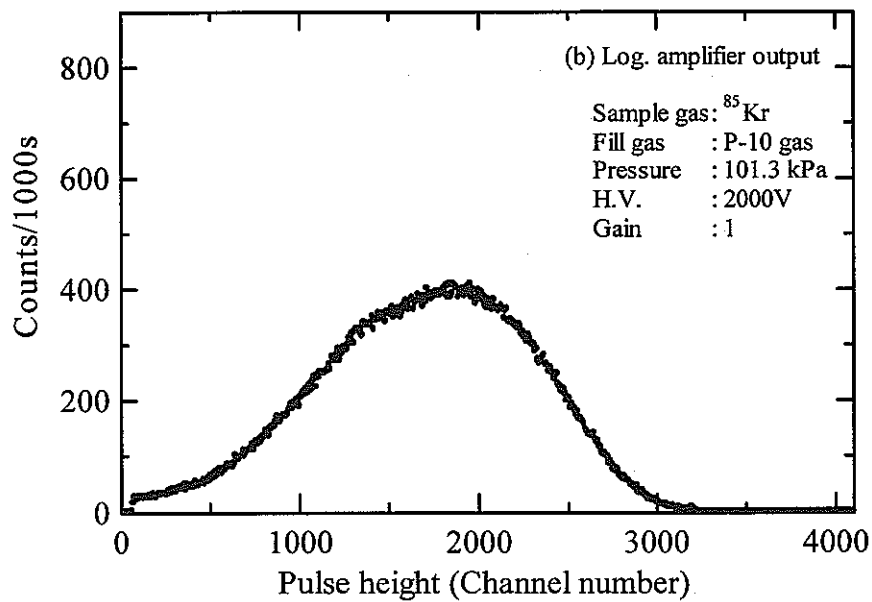
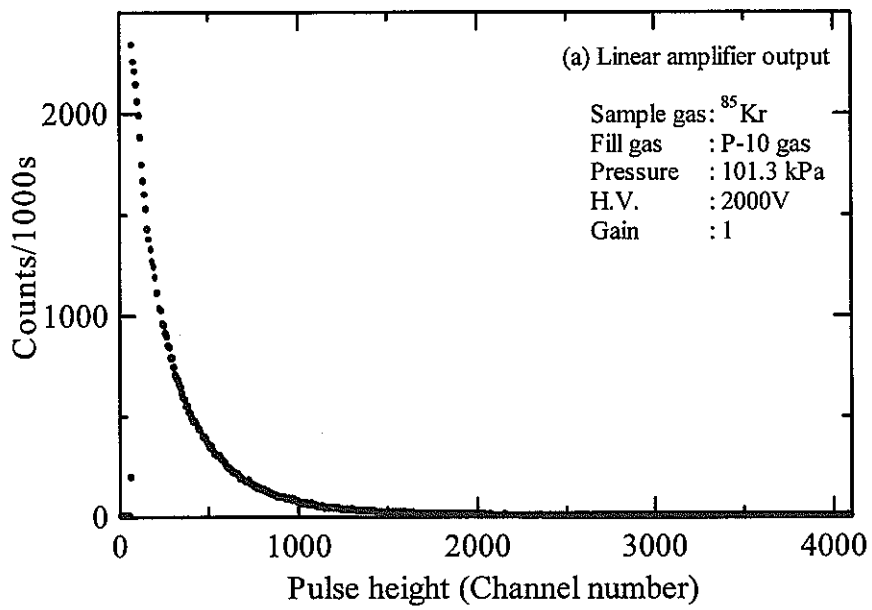
したがって、パルス波高の範囲が広がってしまい、相対的に低いパルス波高成分が多くなりノイズとの弁別が困難となる。そこで、二台の利得の違う比例増幅器を、計数管の左右両方にそれぞれ用いることで一定の成果を挙げている[9]。しかし比例増幅器の利得の調整がやや困難で、さらに高いエネルギーのベータ粒子を放出する $^{85}\text{Kr}$ のような核種には三台以上の比例増幅器が必要となり汎用性がない。

以上の困難さを克服するために、対数増幅器が開発された[10~11]。Fig. 2-1に $^{85}\text{Kr}$ における比例増幅器と対数増幅器のパルス波高分布を示す(この図はパルス波高分布をわかりやすくするために8chのバンチングを施してある。これ以後に挙げるパルス波高分布も同じ処理を施してあるのでここで言及しておく)。波高の低いパルスは大きく増幅され、波高の高いパルスはあまり増幅されていないことがよくわかる。これによって、エネルギーの高いベータ粒子を放出する核種でも、比例増幅器のダイナミックレンジに収めることができ、かつ微小パルスも計数できるようになった。しかし、汎用性を考えると、設計・作製の困難さは問題である。また、使用するADCに応じて基準電流と基準電圧を調整しなければならない。さらにその最大の欠点は、時間応答性が遅いことである。このため比例増幅器の波形整形時定数は $3\ \mu\text{s}$ 以上に設定しなければならない。その条件下で測定された分解時間はおおよそ $70\ \mu\text{s}$ [14]と非常に長い。500 cps程度の計数率でも3.5%は計数損失するということになる。これは高計数率の測定では非常に不利である。

## 2.4 対数型前置増幅器の開発

これまでの内容を総合すると、ベータ粒子の放射能強度絶対測定法としてDLPC法を実現するためには、

- (1) 微小パルスも計数できること、もしくはディスクリミネーションレベル以下の壁効果と低エネルギー損失の影響をうまく補正できること、
- (2) 波高の高いパルスを比例増幅器のダイナミックレンジに収めること、
- (3) 分解時間が短いこと、
- (4) 装置がシンプルであり汎用性があること、



**Fig. 2-1** Pulse height spectra of  $^{85}\text{Kr}$  from  
 (a) linear amplifier and  
 (b) logarithmic amplifier.

の四つが挙げられる。(4)の装置のシンプルさを追及すると、試料ガスのハンドリングの簡便さを別とすればエレクトロニクス系は前置増幅器、比例増幅器、波高弁別器、スケーラというような装置で測定ができることが望ましい。したがって、残りの(1)(2)(3)を満たすためには、上記のエレクトロニクス系内で改良する必要がある。この中で最も重要なことは、できる限り早い段階でパルスとして扱う電荷量を過大にしないことである。すなわち高電圧系を含む前置増幅器を改良することである。対数増幅器は、基本的にはダイオードの順方向電圧と順方向電流の対数特性を利用したものである。したがって、ダイオードのような非線形回路素子とそのほかの線形回路素子、電源などをうまく組み合わせることで、対数増幅器のような特性を持ち、分解時間が短く、かつ非常にシンプルな前置増幅器を開発することを目的に、二つのタイプの対数型前置増幅器を考察・検討した。

## 3. 測定装置

### 3.1 測定装置の構成

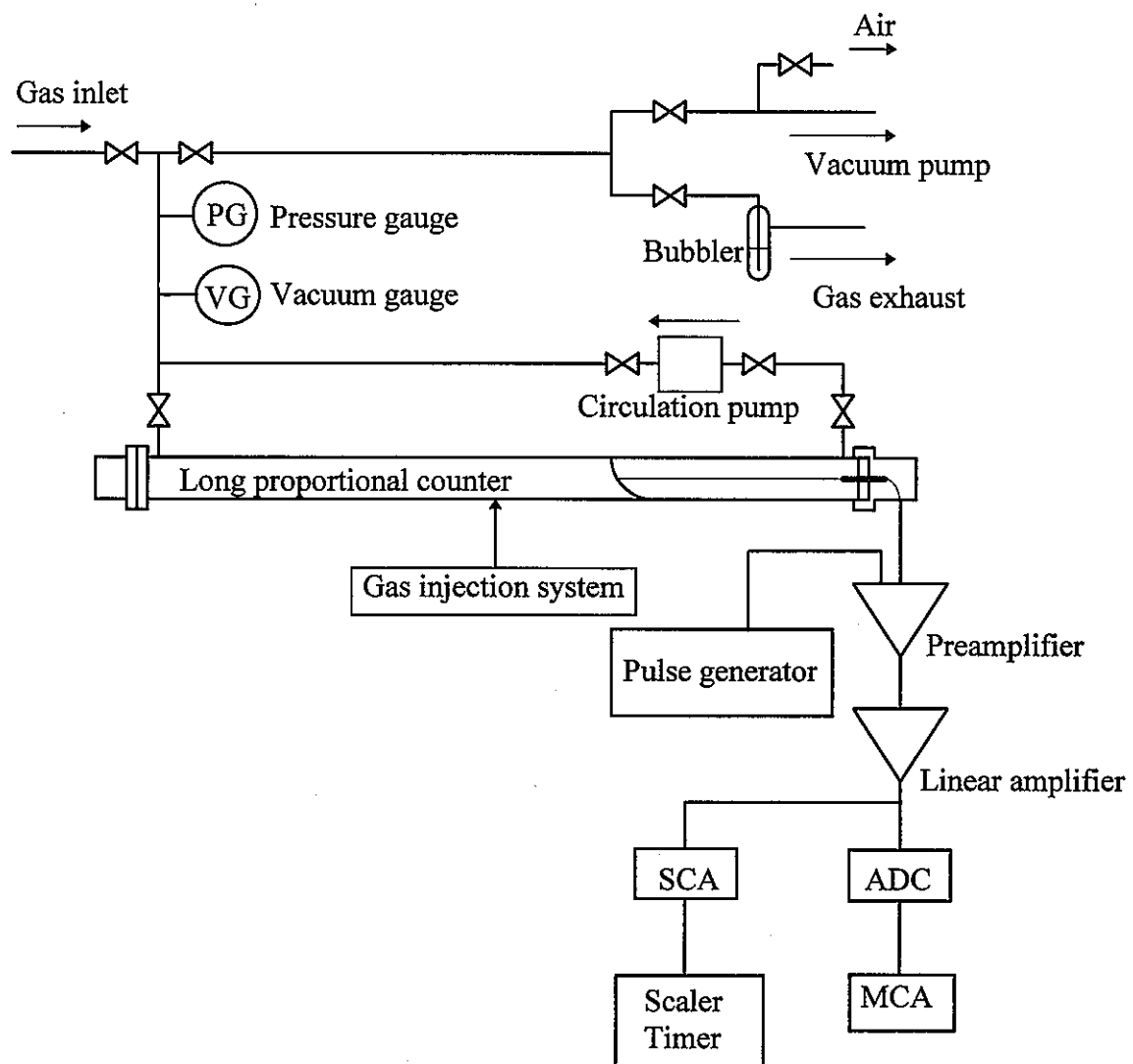
測定装置の概略を Fig. 3-1 に示す。長軸比例計数管は、内径 40 mm、長さ 1000 mm のステンレス製円筒形陰極と直径 25  $\mu\text{m}$  の金メッキタングステン陽極線からなる。長軸比例計数管からの信号は、3.2 で述べる対数型前置増幅器と比例増幅器、波形弁別器を通して計数される。本来はデットタイムセッタを用いるべきであるが、今回は時間的なゆとりがなく用いなかった。同時に、パルス波高分布はマルチチャンネル波高分析器によって記録できる。

計数管への試料の注入は、これまでのマイクロシリンジを用いた方法とは異なり、5.1.4 で述べる注入装置を用いて行った。また、注入した試料を計数管内に均一に混合するための循環ポンプが取り付けられている。詳しくは 5.1.2 で述べる。ガスの置換は真空ポンプを用いてもよいが、多数回の使用による計数管内へのオイルの付着から疑似パルスが発生するおそれがある[14]ので、通常はガスフローによって行った。

計数管全体は、バックグラウンド計数率を低減させるため、厚さ 50 mm の鉛で遮蔽されている。このため、バックグラウンド計数率は 8 cps 以下である。

### 3.2 対数型前置増幅器

2.4 で述べたような理由で、前置増幅器の改良が必要である。時間応答性の遅さを除けば、特性的には対数増幅器を用いた場合のようなパルス波高分布が得られるのが理想的である。そういった意味も含めて、この節で検討する改良を施した前置増幅器のことを今後、対数型前置増幅器と呼ぶことにする。た



**Fig. 3-1** Block diagram of the instrument and the signal processing system for radioactivity measurement by DLPC method.

だし、波形の観点からはパルス幅が広く、必ずしも理想的ではない。以下に述べる二つのタイプの対数型前置増幅器は、基本的にはよく知られたダイオードの順方向電圧  $V_f$  と順方向電流  $I_f$  の関係、

$$I_f = I_s \left\{ \exp\left(\frac{qV_f}{kT}\right) - 1 \right\} \quad (3-1)$$

から予想できる対数特性を利用する。ここで、

$I_s$ : 逆方向飽和電流

$q$ : 素電荷量  $1.602 \times 10^{-19}$  [C]

$k$ : ボルツマン定数  $1.38 \times 10^{-23}$  [J/K]

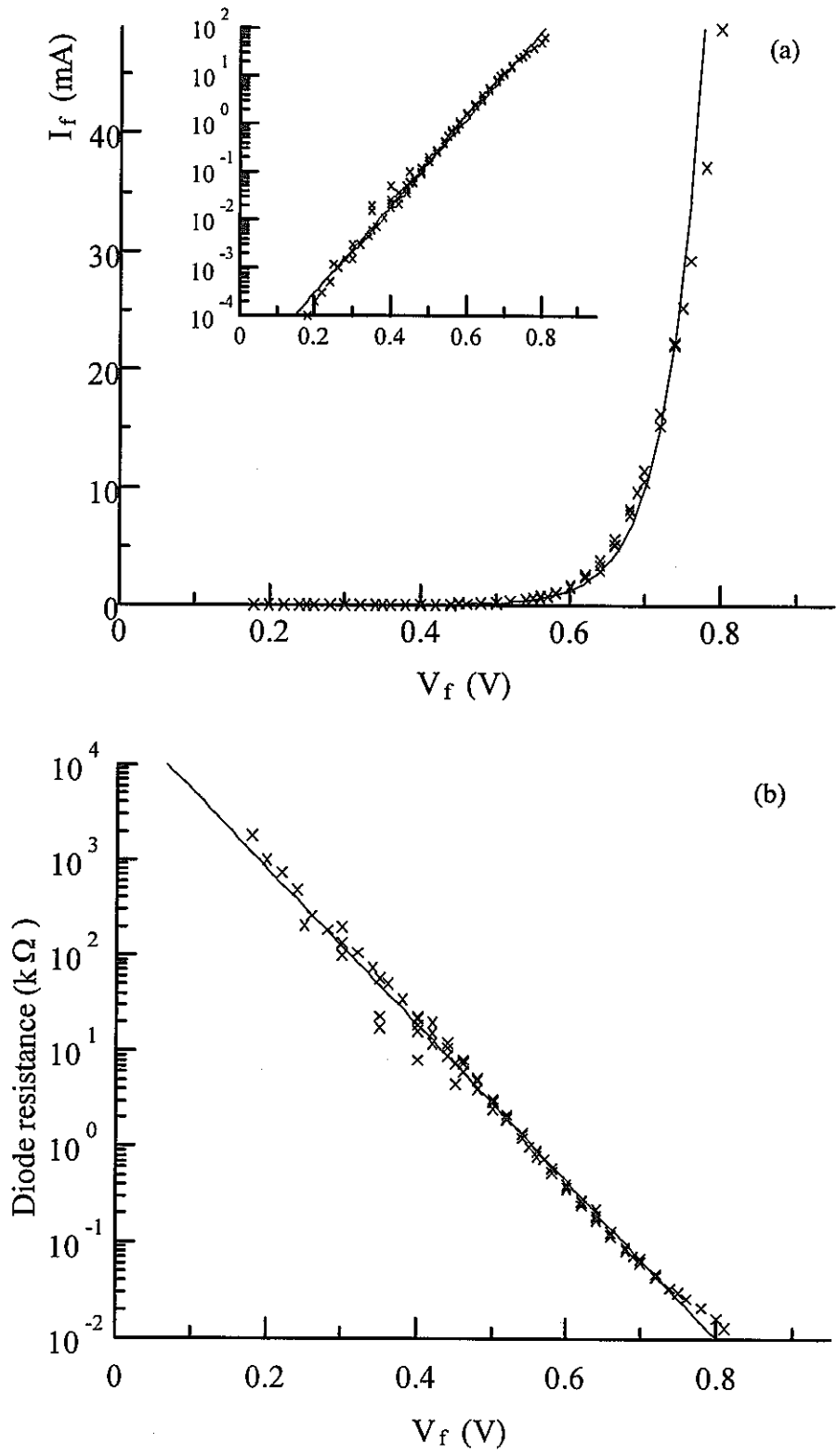
$T$ : 絶対温度 [K]

である。ダイオードは（株）東芝製の 1s1588 シリコンダイオードを利用する。Fig. 3-2(a) に 1s1588 シリコンダイオードの  $V_f$  と  $I_f$  の関係を測定した結果を示す。図の中にあるグラフは、縦軸を対数にとった場合の図で、 $V_f$  と  $I_f$  が対数関係にあるのがよくわかる。また Fig. 3-2(b) に Fig. 3-2(a) から求めた  $V_f$  とダイオードの抵抗  $R_d$  の関係を示す。3.2.2 で述べる対数型前置増幅器は  $V_f$  - $I_f$  特性よりもむしろこの図の特性が重要となる。詳しくは後に述べる。

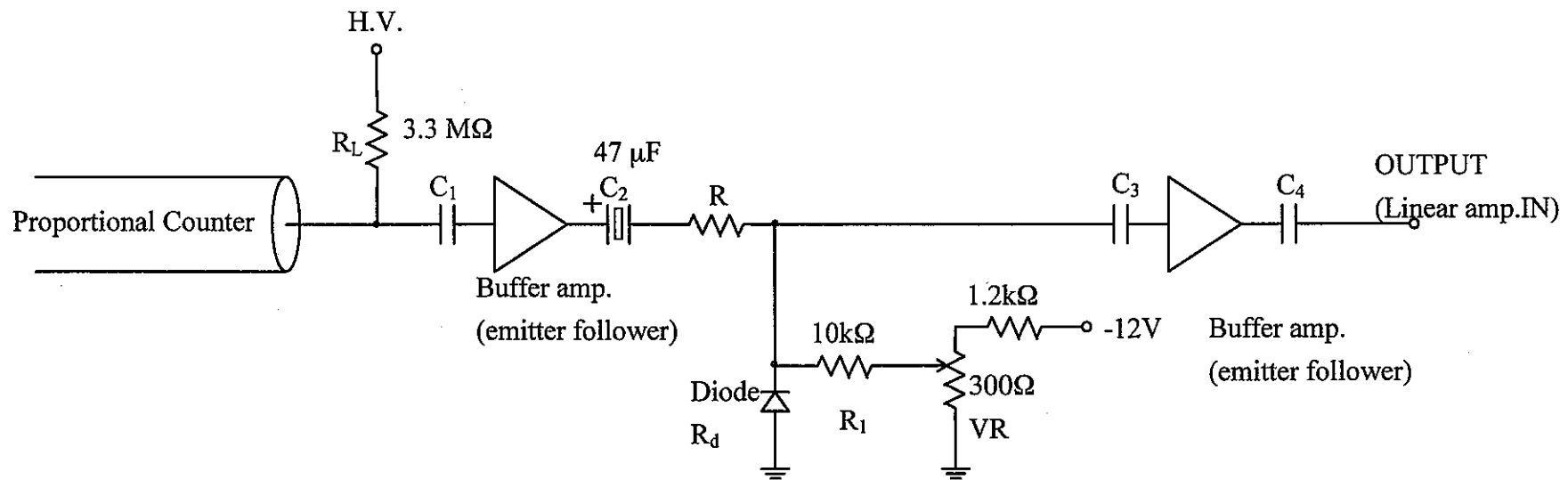
### 3.2.1 パルス波高抑制型前置増幅器

#### 3.2.1.1 パルス波高抑制型前置増幅器の原理

まず初めに考案したのが、Fig. 3-3 に示すパルス波高抑制型前置増幅器である。比例計数管からの信号は、緩衝増幅器（エミッタフォロワ）を通じてインピーダンス変換され、そのままのパルス波形を保って抵抗  $R$  の左端子に電圧信号として入力する。このパルスの時定数は、負荷抵抗  $R_L$  が 3.3 M $\Omega$ 、計数管の幾何学的形状から計算できる静電容量が 7 pF であるからおよそ 23  $\mu$ s である。この方法は、抵抗  $R$  の左側に入力した電圧と、ダイオードの両端に現れる電圧との対数関係、すなわち基本的には Fig. 3-2(a) を利用する。 $R$  を 100  $\Omega$ 、1 k $\Omega$ 、10 k $\Omega$  としたときの入力電圧と出力電圧の関係を Fig. 3-4 に示す。ある程度大きな波高のパルスであれば、 $R$  を入力するパルスの波高の広がりに合わせて適

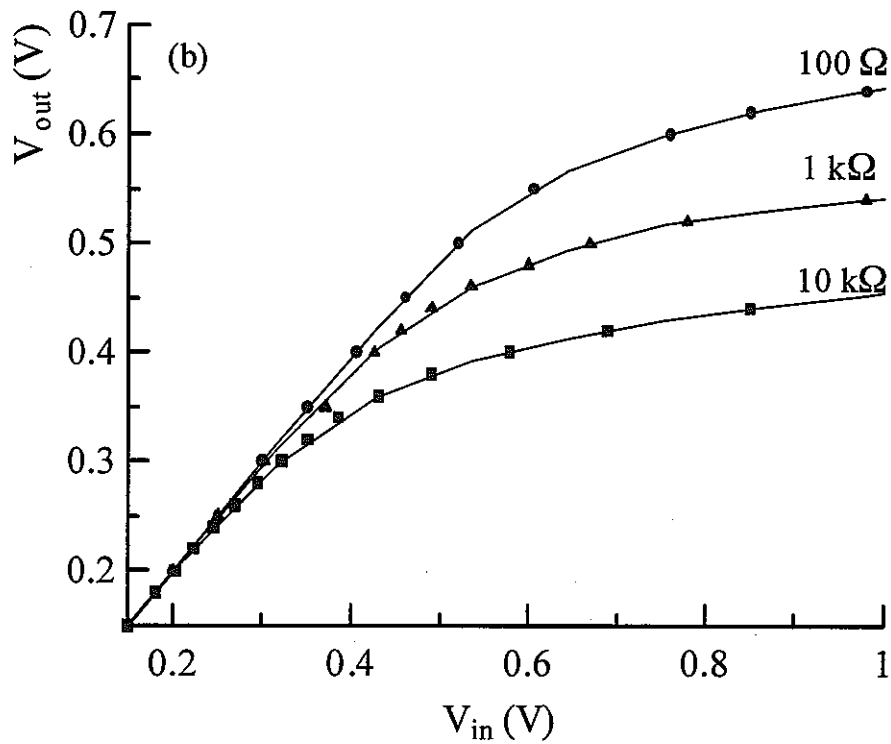
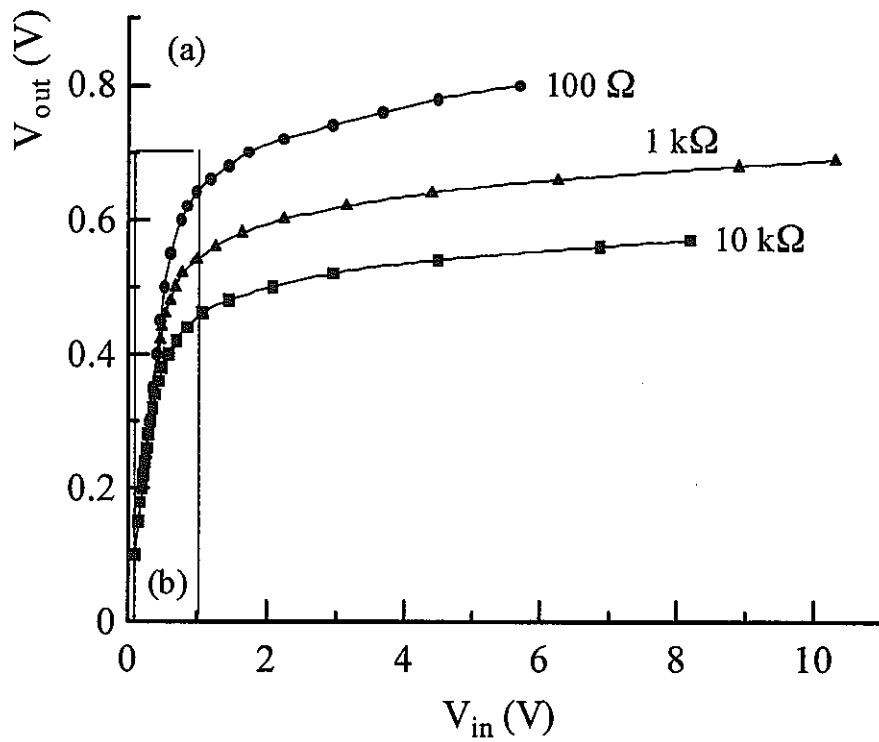


**Fig. 3-2** Properties of Si diode 1s1588.  
 (a) Property of the rectification. The ordinate of the inset graph is logarithmic scale.  
 (b) Relation between forward bias voltage and diode resistance.



**Fig. 3-3** Configuration of the logarithmic preamplifier with the pulse height suppression.





**Fig. 3-4** (a) Relation between the applied voltage to the terminal of the resistor  $R$  of Fig. 3-3 and the voltage across the diode for different resistance of  $R$ .  
 (b) The extended graph of (a).

当に選べば、うまくこの対数関係の中に収まり、パルス波高分布を抑制できるはずである。しかし、およそ 0.4 V 以下の波高のパルスに対しては、ほとんど入力電圧のままの波高で出力される。入力してくる電圧パルスの最大値は、計数管の印加電圧を限界いっぱいまで上げて高いエネルギーのベータ粒子を放出する核種に対してせいぜい数 V なので、連続分布をもつベータ粒子によって生成されるパルスの多くは、その波高があまり抑制されず、したがってまだパルス波高分布の広がりは大いと思われる。

そこである一定の直流電圧 (0.3~0.5 V) を常にダイオードに供給し、入力してくるパルスに対して Fig. 3-4 の原点をシフトさせる。こうすればある程度低い波高のパルスでも Fig. 3-4 の対数関係のある範囲に収めることができる。波高が抑制された直流成分を含むパルスは、すぐ後ろの段の  $C_3$  によって直流成分がカットされ、入力したパルスよりも波高が抑制されたパルスだけが出力される。これによって比例増幅器の利得をある程度上げて飽和することなく、微小パルスが計数できるようになると思われる。

この回路を作製するにあたって注意する点がいくつかある。まず緩衝増幅器の直流成分をカットするための結合コンデンサ  $C_2$  である。この  $C_2$  とすぐ後段にある  $R$  とダイオードの抵抗  $R_d$  の和とで、微分回路が形成されている。この時定数が小さいと、入力したパルスが整形されて、比例増幅器に入るパルスがバイポーラになる。市販されている比例増幅器はそのような入力パルスに対応していないので、比例増幅器の出力パルスは著しく歪む可能性がある。そのため入力してくるパルスの時定数 23  $\mu\text{s}$  よりも大きな時定数に設定しなければならない。 $R_d$  は変更できないため、 $R$  と  $C_2$  で調整する。 $R$  を大きくすれば、ある一定電圧をダイオードに供給する直流電源を構成している抵抗と  $R$  とで入力パルスを分圧し、パルス波高をよけいに抑制してしまう。 $R$  を小さくして  $C_2$  を大きくすればよいが、10  $\mu\text{F}$ 、100  $\mu\text{F}$  クラスのコンデンサは電解コンデンサしかない。通常よく用いられるアルミ電解コンデンサは比較的リーク電流が大きい。ダイオードには常に直流電圧を供給するため、これが  $C_2$  でリークすると緩衝増幅器の出力インピーダンスでよけいな電圧源が発生し、入力してくるパルスに重なって著しくベースラインを変化させ、ノイズが上昇する。したがって、比

較的リークの少ないタンタル電解コンデンサを利用し、 $R$  を大きくする必要がある。これは先に述べたことと矛盾してしまう。

次にダイオードの後段には必ずもうひとつ緩衝増幅器を入れなければならない。ダイオードの出力をそのまま比例増幅器に入力すると、比例増幅器の入力インピーダンス  $1000 \Omega$  が並列に接続されたことになる。ちょうどダイオードの特性が現れる程度の抵抗値のため、出力されるパルス波高は予期できないものになってしまう。

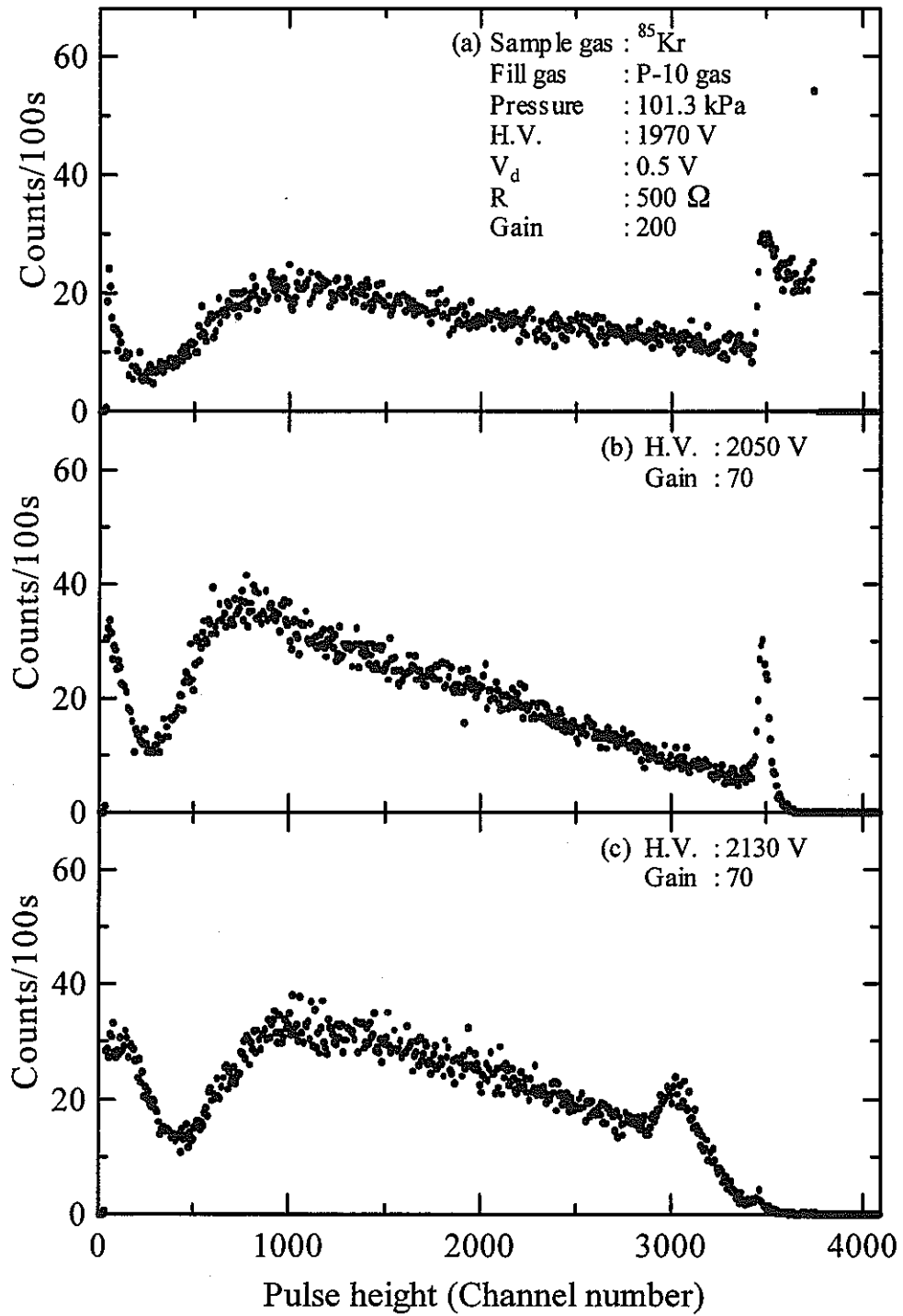
電源供給部を構成している  $R_1$  と  $VR$  の和は、 $R$  よりも大きくなければならない。これは先に述べた分圧によるよけいな波高の抑制を避けるためである。同時にこれらはダイオードが対数特性を示す範囲でのダイオードの抵抗値  $R_d$  より十分大きくなければならない。入力するパルスから見ればこれらは並列に接続されている。したがってこの並列抵抗値は、 $R_1$  と  $VR$  の和が  $R_d$  よりも十分大きければ、ほぼ  $R_d$  と見なすことができる。また、 $VR$  は  $R_1$  と  $R_d$  の和よりも小さくなければならない。安定した基準電圧を与えるため、電源から流れてくる電流をダイオード側に流れないようにするためである。

Fig. 3-3 にはこれらの条件をよく考慮して決定した数値を記載してある。

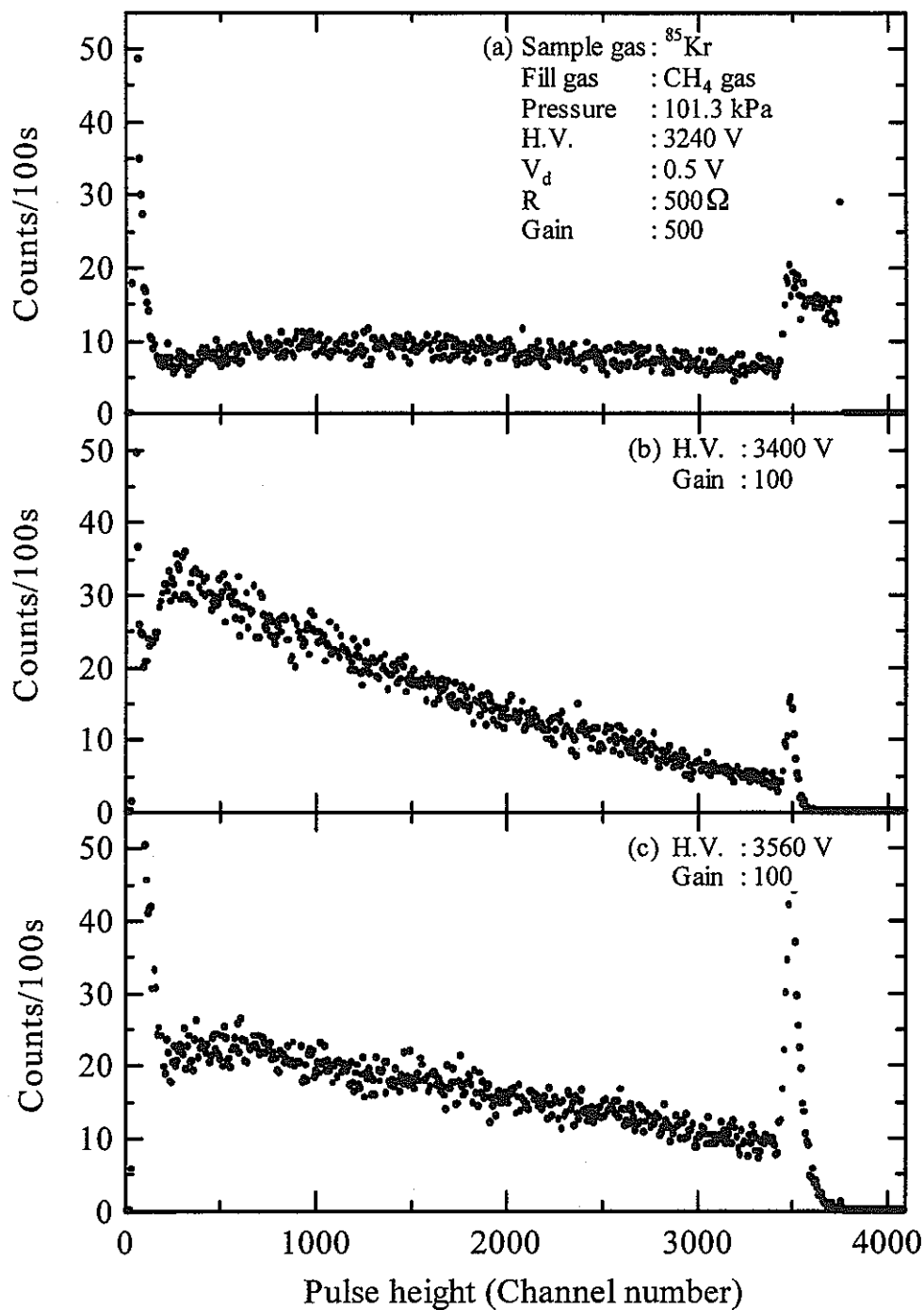
### 3.2.1.2 実験結果と検討

Fig. 3-5 に比例計数ガスに P-10 ガスを用いた場合の、Fig. 3-6 にメタンガスを用いた場合の、印加電圧を変化させたときのパルス波高分布をそれぞれ示す。測定の条件は図中に示してある。まず波高の大きい成分についてみると、(a) におけるように印加電圧が低くガス増倍度が小さい場合は、Fig. 3-4 に示した対数特性が利用できるほどのパルス波高に達していないため、ただ単純に比例増幅器の利得を大きくしているだけである。そのため飽和しているパルスの数が多い。(b)、(c) のように印加電圧が高くなってくると対数特性が利用できる波高のパルスが増えてくるため、利得を小さくしても、比例増幅器のダイナミックレンジの範囲内で微小パルスも波高の大きいパルスも観測できる。これはその割合は違うがどちらの比例計数ガスでも言えそうである。

次に微小パルス成分についてみると、その様子は大きく変わる。P-10 ガスの場合、メタンガスに比べて同じエネルギーをもったベータ粒子でも  $dE/dx$  が大



**Fig. 3-5** Pulse height spectra with P-10 gas at 101.3 kPa for different applied voltages. (a) : 1970 V, (b) : 2050 V, (c) : 2130 V.

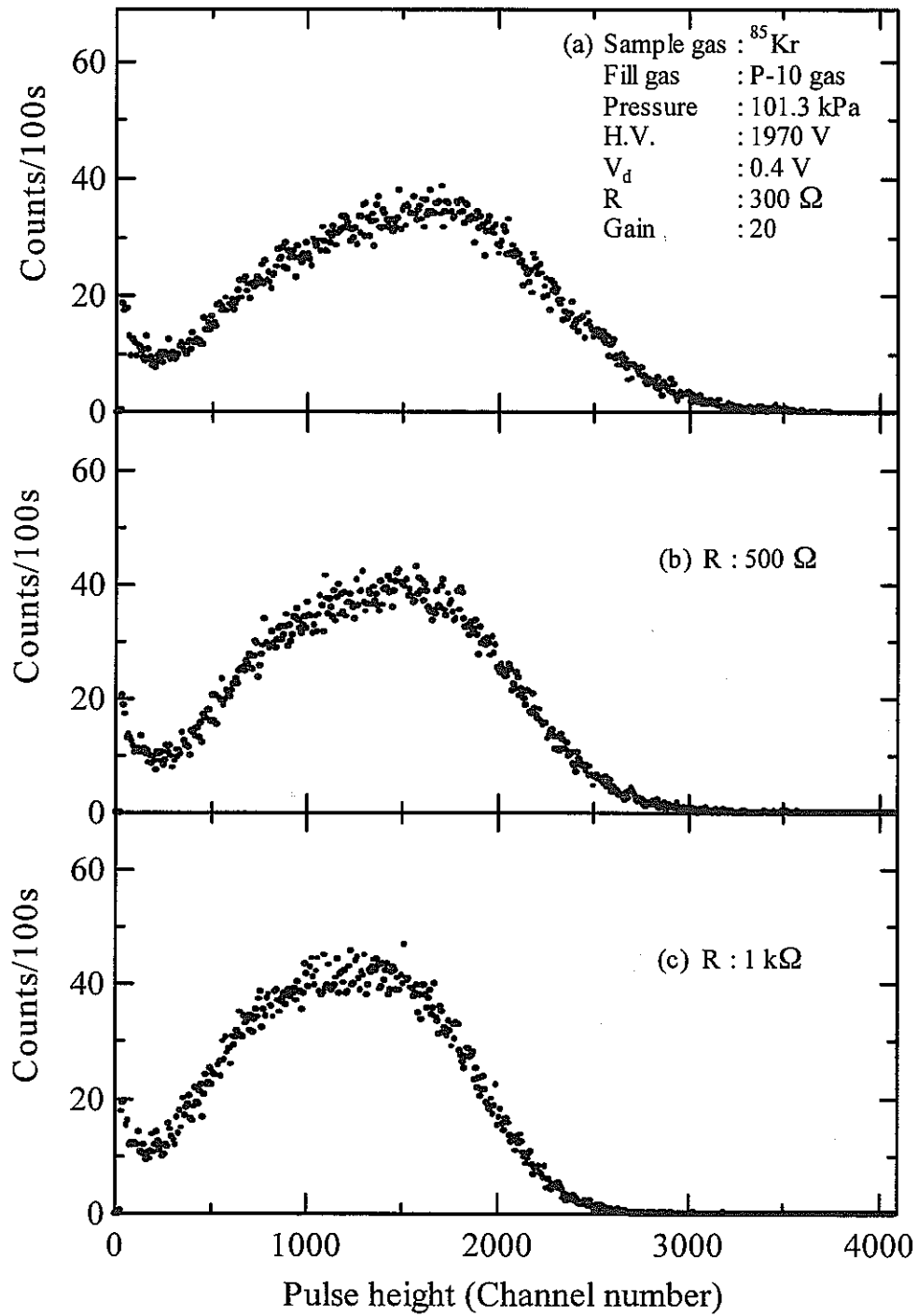


**Fig. 3-6** Pulse height spectra with  $\text{CH}_4$  gas at 101.3 kPa for different applied voltages. (a) : 3240 V, (b) : 3400 V, (c) : 3560 V.

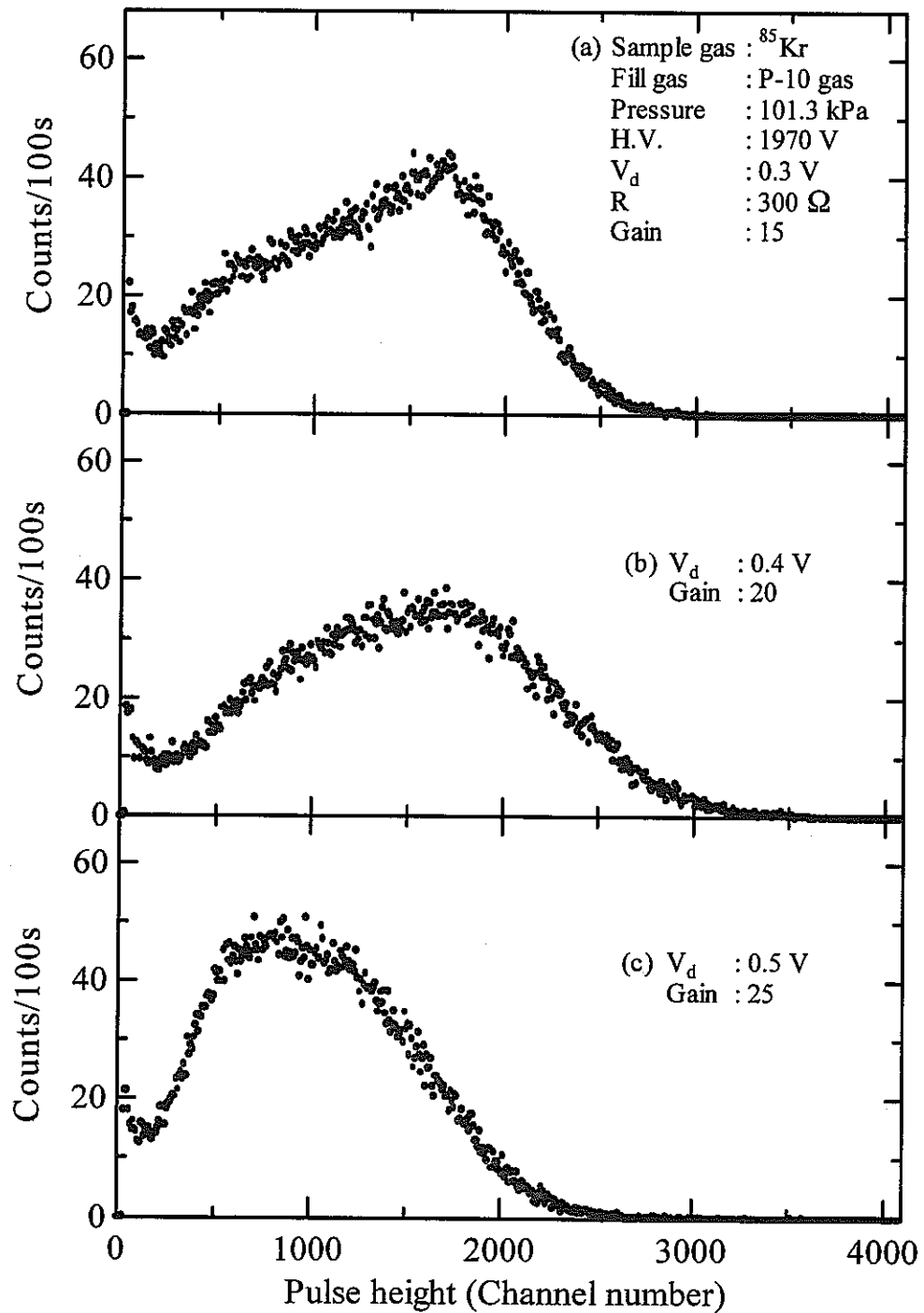
きいため、壁効果の影響が少ない。どの印加電圧においても、ディスクリミネーションレベルに設定するのが適当と思われる、計数の“谷”が存在する（ディスクリミネーションレベルをこの“谷”に設定することが正しいかどうかは3.2.2で議論する）。しかし、メタンガスではこの“谷”がある特定の印加電圧でしか存在しない。 $dE/dx$  が小さいため、壁効果による微小パルスが P-10 ガスの場合より圧倒的に多いと思われる。パルス波高が小さくなるにつれて指数関数的に計数が上昇するのは、ベータ粒子によって励起された気体分子が放出する光子に起因したアフターパルスによるものとも考えられるが、P-10 ガスよりも光子のクエンチング効果が大きいメタンガスにおいても同様に観測される。使用している印加電圧ではガス増倍度が  $10^5$  程度と非常に大きいため、メタンガスでもそのようなアフターパルスは観測される[15]が、それ以外にも原因がありそうである。詳細は次節で検討するとして、いずれにしてもメタンガスを比例計数ガスとして利用するのは不適當であると言える。したがって今後の全ての測定は P-10 ガスを比例計数ガスとして採用した。

次に、抵抗 R を 300  $\Omega$ 、500  $\Omega$ 、1 k $\Omega$  と変化させたときのパルス波高分布を Fig.3-7 に示す。微小パルス波高に対応する部分の形状はほぼ変わらず、大きいパルス波高に対応する部分が抑制されている。これは Fig.3-4 の特性から予想されることと一致する。3.2.1.1 で述べた条件を考慮して、今回は 300  $\Omega$  を採用した。

最後に、ダイオードに供給する直流電圧を 0.3 V、0.4 V、0.5 V と変化させたときのパルス波高分布を Fig. 3-8 に示す。これらもすべて Fig.3-4 の特性から予想できる。0.3 V の場合、パルス波高分布全体の抑制効果は他の二つより少ない。したがって比例増幅器の利得が  $\times 15$  と一番小さい。設定する直流電圧が小さいため、比較的大きな波高に対応するパルスが対数の特性の中にはいる。したがって、パルス波高分布は他の二つよりも波高の大きい方にシフトしている。0.4 V の場合は、パルス波高分布全体の抑制効果は、0.3 V のときよりも少々多いため、利得が少し大きくなっている。しかしパルス波高分布の形状は、Fig. 2-1(b) に示す対数増幅器の出力パルス波高分布に近い。 $^{85}\text{Kr}$  の P-10 ガス 101.3 kPa 中でのエネルギー付与分布が、設定した直流電圧における Fig.3-4 の対数特



**Fig. 3-7** Pulse height spectra for different resistance of R.  
 (a) : 300  $\Omega$ , (b) : 500  $\Omega$ , (c) : 1 k $\Omega$ .



**Fig. 3-8** Pulse height spectra for different bias voltages to the diode. (a) : 0.3 V, (b) 0.4 V, (c) 0.5 V.



性の中にフィットしたものと思われる。0.5 V の場合、Fig.3-4 の対数特性がかなり狭い電圧範囲に制限される。したがって、比例増幅器の利得も一番大きい。さらに、少々小さいパルス波高でも抑制されるため、パルス波高分布は他の二つよりも波高の小さい方にシフトしている。これら三つのパルス波高分布はそれぞれの利得の中で同じ程度の広がりを見せているため、どの供給電圧を選択するのがよいかは一概には言えない。電子回路のノイズの影響を考えれば利得は小さいほうがよいが、供給電圧が小さいとパルスのベースラインの変動を受けやすく、これによるノイズの増加も考えられる。したがって今回は中間の 0.4 V を採用することにした。

以上、パルス波高抑制型前置増幅器の対数型前置増幅器について述べてきたが、一応の測定条件は得ることができた。 $^{85}\text{Kr}$  のようなエネルギーの高いベータ粒子を放出する核種でも、比例増幅器のダイナミックレンジ内に波高の大きいパルスを取めることができる。しかし、シンクロスコープでパルスの波形を観測すると、比例増幅器の出力波形は通常のエミッタフォロワだけの前置増幅器を用いた場合と変わらないか、もしくは必然的な微分回路の導入により、やや歪む。したがって分解時間の向上はあまり望めない。また、回路そのものはシンプルではあるが、回路の抵抗やコンデンサの数値の設定がやや複雑であるし、供給電圧の微調整を行わなければならない。結果的には対数増幅器を利用するときの問題点はあまり解決されていないといえる。これは基本的にはエミッタフォロワの入力までの電荷量が、計数管で発生した電荷量に比例した量であるからである。

### 3.2.2 時定数変化型前置増幅器

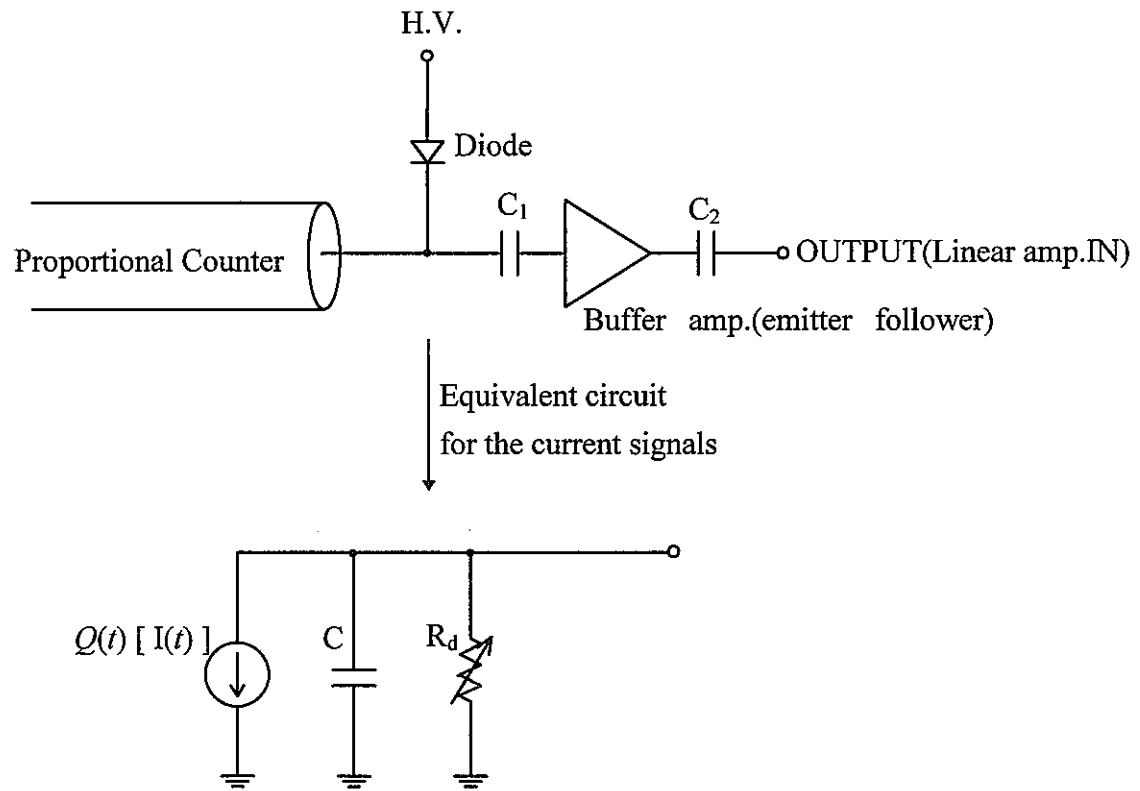
パルス波高抑制型前置増幅器の第一段の緩衝増幅器の出力パルスの最大波高は、シンクロスコープで観察すると数 V 程度であった。緩衝増幅器は入力したパルスを変形させることなく、インピーダンスの変換だけを行ってそのまま出力する。したがって、高電圧供給端子と陽極線の間にかかれる負荷抵抗  $R_L$  の両端にも数 V の電圧がかかっていることになる。これはダイオードを動作させるのに十分な電圧である。次に考案した対数型前置増幅器は、通常のエミッタフォロワ型前置増幅器の負荷抵抗をダイオードに置き換えたものである。

### 3.2.2.1 時定数変化型前置増幅器の原理

Fig. 3-9 に時定数変化型前置増幅器の構成図を示す。ここでは前置増幅器の中に高電圧電源からの信号取り出しのための素子も含めるものとする。この回路における検出器の電流信号に対する等価回路も示してある。 $R_d$  はダイオードの両端にかかる電圧によって変化する抵抗、 $C$  は比例計数管の幾何学的形状から計算できる静電容量  $7 \text{ pF}$  と、ダイオードの静電容量との和である。ダイオードの静電容量はバイアスが印加されていない状態で  $3 \text{ pF}$  以下[16]である。本研究で利用する核種から放出されるベータ粒子によって生成される電圧パルスの範囲( $0\sim 2, 3 \text{ V}$ )から考えると、この値は大きく変化しないと思われる。したがって、ここでは  $C$  を  $10 \text{ pF}$  とする。

比例計数管にベータ粒子の入射がなく電離電荷が全く存在しない場合、比例計数管には H.V. 端子に供給されている高電圧  $V$  が全てかかっている。この状態でエネルギー  $E$  がベータ粒子から計数ガスに与えられるとすると  $E/W$  個のイオン対が生成され ( $W$  は比例計数ガスの  $W$  値)、電場の影響で移動し始める。比例計数管の印加電圧  $V$  に対応したガス増倍度を  $M$  とすると、 $Q = E/W \times e \times M$  ( $e$  は素電荷量) の電荷が、計数管の電極に誘導電荷を発生させ、 $V$  をその平衡値から減少させる。このとき  $V$  の電圧降下量に等しい電圧がダイオードの両端に現れる。全電荷が電極に収集されたとき、この電圧は最大値  $Q/C$  に達する。比例計数管では、陽極から陰極に向けての電荷の移動によって発生するパルスの形状は陽イオンによるものが支配的で、イオンが陰極に収集される典型的な値は数百  $\mu\text{s}$  と非常に遅い[17]。したがってダイオードの両端に発生するパルスの特性としては、パルス波高は数百  $\mu\text{s}$  よりも小さい  $R_d \times C$  の時定数の大きさに依存して最大値  $Q/C$  よりもかなり小さくなり、パルス波形はこの時定数の大きさに依存してもとの平衡状態に回復する。

エネルギー分解能を向上させるためには、なるべく時定数を大きくして波高の欠損を防ぐ必要があるが、分解時間を小さくして高計数率測定を行うためには、時定数を小さくする必要がある。本研究ではエネルギー分解能を向上させる必要は全くなく、分解時間を小さくする必要がある。そのために負荷抵抗値を小さくしても波高の欠損の割合が多くなり、たとえば比例増幅器の利得を大き

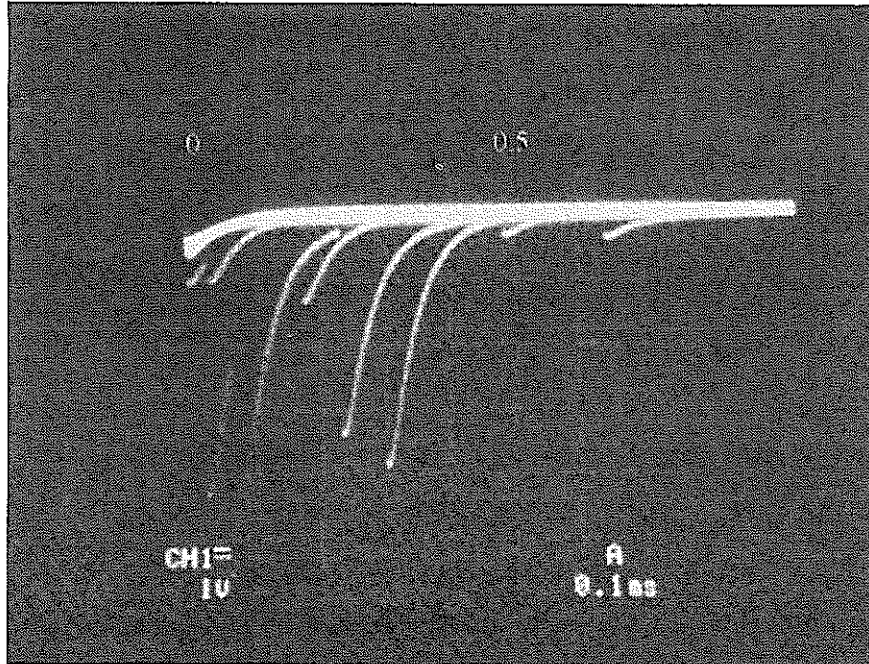


**Fig. 3-9** Configuration of the logarithmic preamplifier with the variational time constant and its equivalent circuit for the current signals.

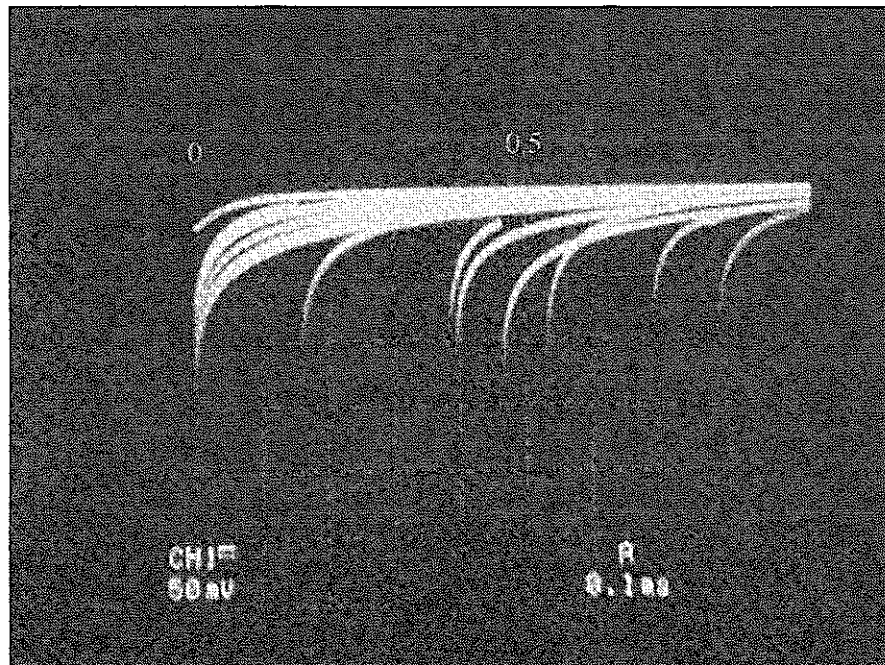
くしても、ノイズとの弁別のことも含めると微小パルスが計数されなくなってしまふ。近年、HIGH-RATE AMP. という高計数率測定においても波高欠損の割合が小さい増幅器が市販されているが、これは電荷収集時間が数百 ns という非常に速い立ち上がりを示す半導体ゲルマニウム検出器のような検出器に有効で、立ち上がりがこれより 1000 倍も遅い比例計数管では、かえって分解時間が大きくなってしまふ。

これらの矛盾を解決するため、まったく新しい考え方として負荷抵抗にダイオードを挿入する。ここでは Fig. 3-2 (b) の特性に注目する。ダイオードにかかるバイアス電圧が小さいとき、その抵抗値は  $M\Omega$  オーダーであるが、バイアス電圧が大きくなると抵抗値が  $10\ \Omega$  オーダーまで減少する。通例の整流特性から得られる非常に基本的な関係であるが、これは非常に注目すべき特性である。もし波高の小さいパルスがダイオードの両端に現れるとその抵抗値は大きくなるので、時定数も大きくなる。したがって、パルス波高はあまり欠損せず、また波高そのものが小さいため、大きなパルスが入ったときと比べるとかなり早くベースラインに戻る。おおよそ通常の前置増幅器に通常の高波高のパルスが入射したときと同じ応答を示すと言ってよい。波高の大きいパルスがダイオードの両端に現れるとその抵抗値は非常に小さくなる。仮にその抵抗値を  $100\ \Omega$  とすると、時定数は  $1\ \text{ns}$  と非常に小さくなる。したがってパルスの波高は低く抑えられる。また、時定数が小さいためベースラインへの回復も速い。したがってパルス波高分布で見ると、小さな波高のパルスはその波高をほぼそのまま維持し、波高が大きくなるにつれて、Fig. 3-2(b) に示す対数関係に基づいてその波高が抑制される。また分解時間で見ると、波高の小さなパルスでも大きなパルスでも比較的早くベースラインに回復する。

Fig. 3-10 に負荷抵抗に  $3.3\ M\Omega$  の抵抗を入れたときと、ダイオードを入れたときの前置増幅器の出力波形を示す。これら二つを比較すると、大きなパルスの波高は予想どおり抑制されているようである。すなわち (a) における数 V の波高のパルスは (b) においては  $200\ \text{mV}$  以下のパルスとなっている。また小さな波高のパルスは、抵抗を入れたときとほぼ同じ応答を示していることがわかる。大きな波高のパルスは、波高値が大きい時間ではその時定数が小さいことから回復が速く、回復していく過程でパルスの波高値が減少してくると、その



(a) 3.3 MΩ

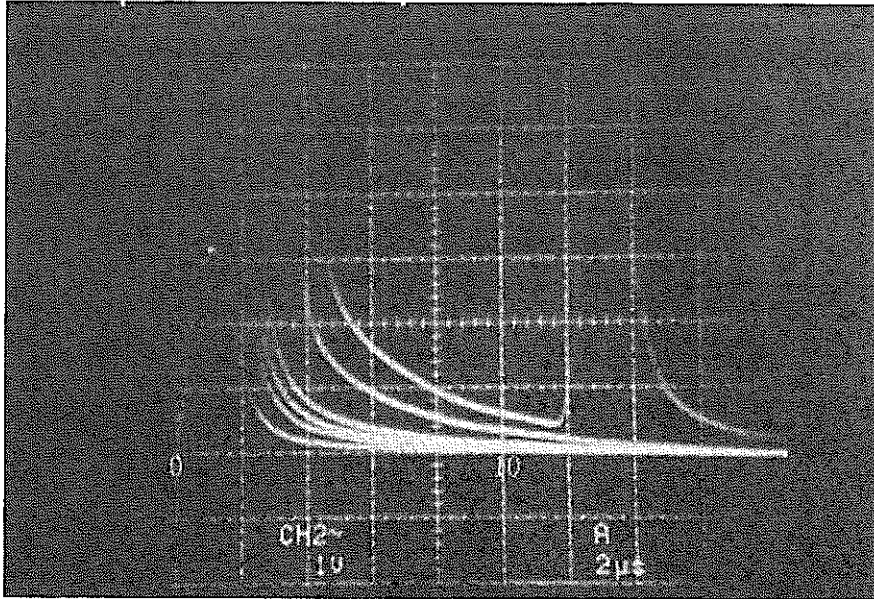


(b) Si diode 1s1588

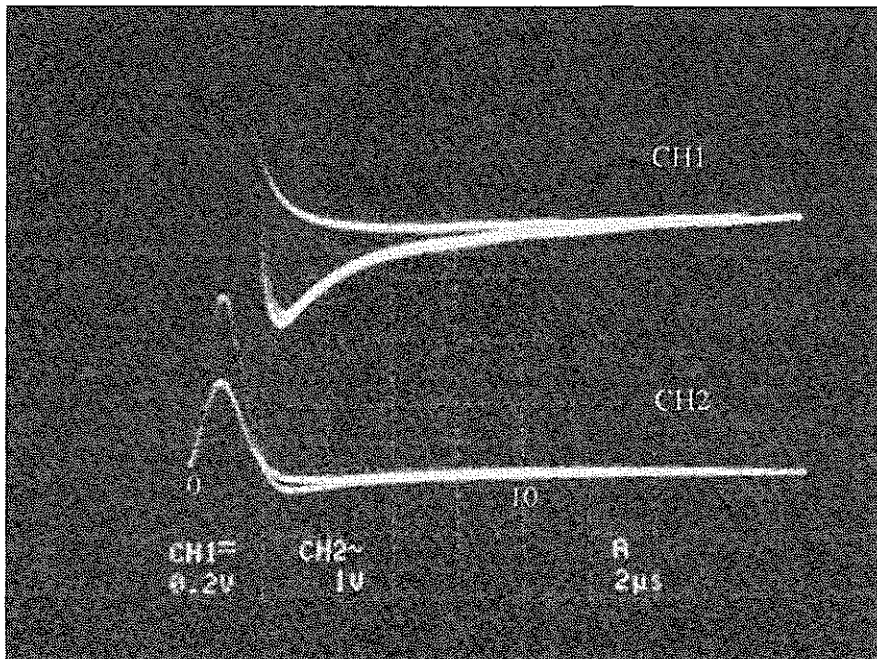
**Fig. 3-10** Pulses from the preamplifier for (a) 3.3 MΩ and (b) Si diode 1s1588 as a load resistor. Both time(abscissa) and voltage(ordinate) per graticule division are indicated in the figure.

時定数が徐々に大きくなって、最終的には抵抗を入れたときとよく似た回復特性を示すようである。波高値の高い部分での回復時間の違いは、後段の比例増幅器における  $(CR)-(RC)^4$  の波形処理後に出力されるパルスの波形に大きな変化を及ぼす。Fig. 3-11 に比例増幅器の出力波形の比較を示す。比例増幅器の利得は  $\times 20$  である。Fig. 3-11(a) の縦軸は 1 V/div. である。Fig. 3-11(b) の下側の波形は Fig. 3-11(a) と同じ 1 V/div. であるが、上側の波形の縦軸は 0.2 V/div. である。抵抗の場合、パルスの波高が大きくなるとベースラインへの回復が遅く長いテイルを引いている。これが大きな時定数と陽イオンのゆっくりとした移動に起因した分解時間の悪さの原因である。ところが、ダイオードではこのような長いテイルが全くない。パルスの波高が大きくても小さくてもほぼ同じ時間でベースラインに戻る。ここで指摘しておきたいのは、すべてのパルスが比例増幅器のダイナミックレンジの範囲内にある間は比例増幅器の波形整形時定数を小さくすれば Fig. 3-11(b) に示す特性が得られるということである。しかし今問題としているのはダイナミックレンジを越える大きなパルスの場合である。この場合には必ず Fig. 3-11(a) のようになる。また、比例増幅器の利得を小さくすれば小さな波高のパルスは数 mV 以下になってしまう。比例増幅器の出力パルス波形を見るだけでも、分解時間が小さくなっていることが予想できそうである。分解時間については 3.2.2.4 で述べるが、実際、分解時間  $8 \mu\text{s}$  と大幅に小さくなる。Fig. 3-11(b) の上側の波形において、パルス波高が大きい場合には、前置増幅器での速い回復と比例増幅器の波形処理に起因して、0.35 V 程度ベースラインを下回る。しかし、分解時間が  $8 \mu\text{s}$  のため、その時間においてはほぼ完全にベースラインに回復しているため問題にはならない。

波形処理の観点からは、分解時間の向上を図ることができたが、パルス波高分布も検討しなければならない。Fig. 3-12 に負荷抵抗に  $3.3 \text{ M}\Omega$  の抵抗を入れたときと、ダイオードを入れたときのパルス波高分布を示す。Fig. 3-12(a) の  $^3\text{H}$  の場合、ダイオードを入れなくても比例増幅器のダイナミックレンジにほぼ全てのパルスが入るが、ダイオードを入れた場合にはそれでもなお波高が抑制されている。パルスの波形からも予想したようにパルス波高の小さい成分は、ダイオードの場合と抵抗の場合の双方の抵抗値がほとんど変わらないため、同じ分布形状をしていることがわかる。また Fig. 3-12(b) の  $^{85}\text{Kr}$  では、比例計数管

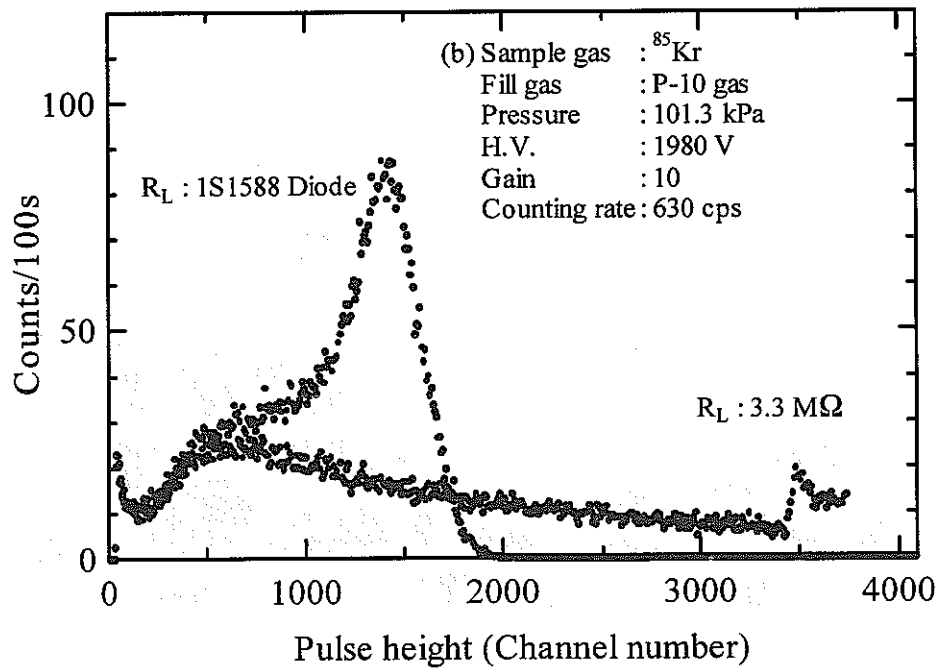
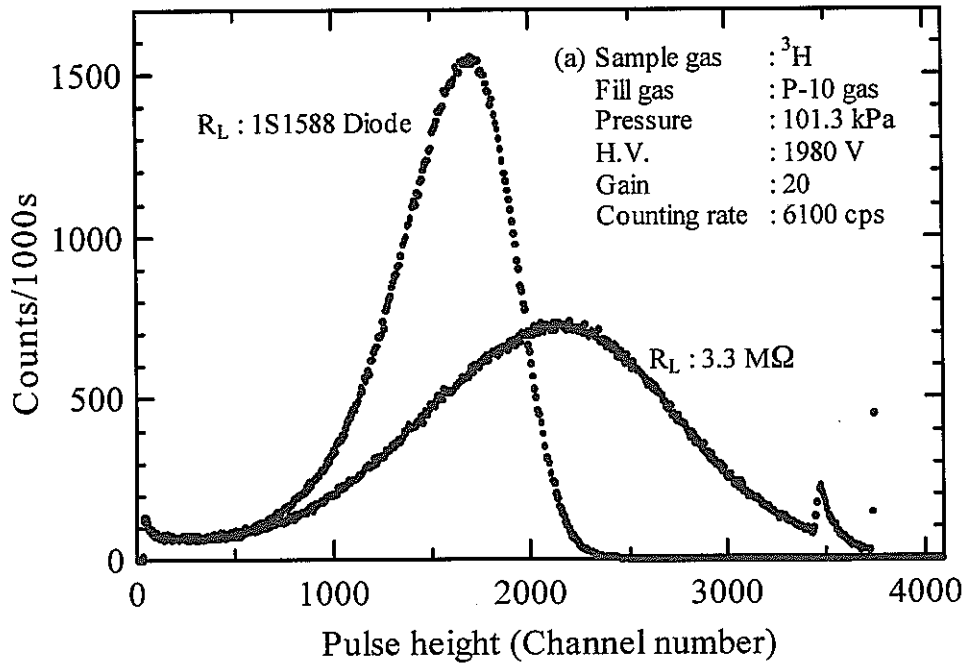


(a) 3.3 MΩ



(b) Si diode 1s1588

**Fig. 3-11** Pulses from the linear amplifier for (a) 3.3 MΩ and (b) Si diode 1s1588 as a load resistor of the preamplifier. Both time(abscissa) and voltage(ordinate) per graticule division are indicated in the figure.



**Fig. 3-12** Pulse height spectra with (a)  $^3\text{H}$  and (b)  $^{85}\text{Kr}$  for the diode and the resistor as the load resistor.

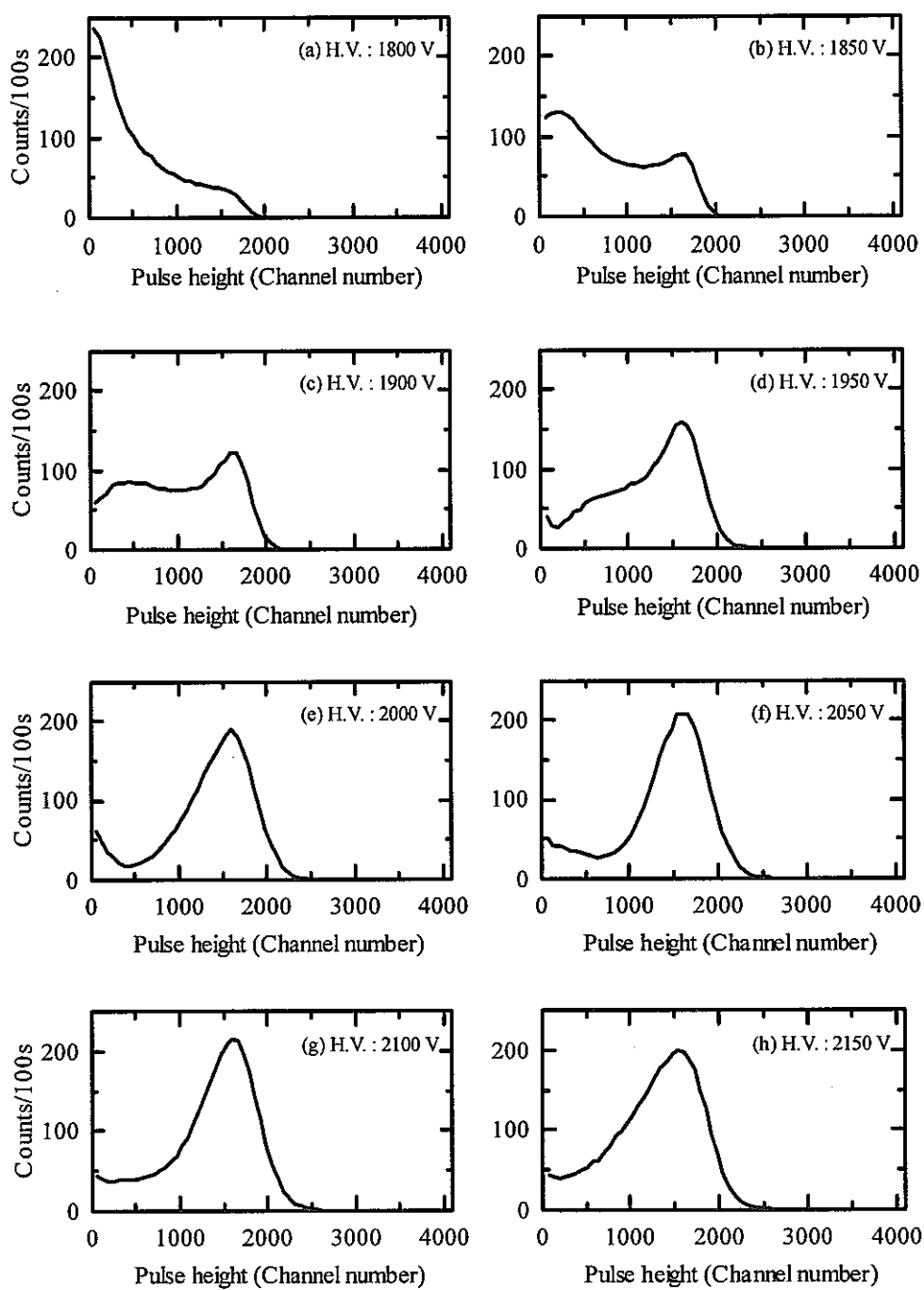


内でのエネルギー損失分布が広い範囲にわたっているため、抵抗の場合にはかなりのパルス波高は飽和している。しかしダイオードの場合にはまったく飽和していない。原理的には $^{85}\text{Kr}$ よりもっと大きなエネルギーのベータ粒子を放出する核種でも計数できそうである。Fig.3-12(a)、(b)のどちらの場合も、比例増幅器の利得が小さいためエレクトロニックノイズの影響は無視できるが、微小パルスのパルス波高分布の形状が $^3\text{H}$ と $^{85}\text{Kr}$ では違っている。これについては後に述べる。

これまでの考察から、時定数変化型前置増幅器は放射能強度の絶対測定における装置のひとつとして実用化できる可能性がでてきた。比例増幅器を飽和させることなく微小パルスを計数でき、分解時間も格段に向上した。回路は通常のエミッタフォロワの前置増幅器の負荷抵抗をダイオードに変えただけの極めてシンプルなものである。しかし、実用化するためにはまだ検討すべき問題が残っている。プラトー特性や、ディスクリミネーションレベルの設定による計数損失の補正などである。これらについては次節以降で詳しく検討していく。

### 3.2.2.2 プラトー特性と計数誤差の評価

Fig. 3-13 に比例計数管に印加する高電圧を変化させたとき P-10 ガス 101.3 kPa 中での $^{85}\text{Kr}$ のパルス波高分布を示す。印加電圧を上げるにつれて、低いエネルギーのベータ粒子によって生成されたパルスも計数されるようになる。そして 2000 V で比較的妥当だと思われるパルス波高分布が得られる。比較的妥当であるというのは“ノイズ、もしくはその他の原因によると思われる波高分布即ち、波高が小さくなるにつれて指数関数的に増加する微小パルスによる波高分布と、ベータ粒子の計数管内でのエネルギー損失分布に対応するパルスの波高分布とが計数の“谷”を形成し、その谷の形状がディスクリミネーションレベルに設定するのが妥当と思われるように対称であるような“という意味である。それ以上に印加電圧を上げると、微小パルスの波高は次第に大きくなっていくが、波高の大きい成分はダイオードの効果によってあまり波高は大きくなりたいため、計数の“谷”がなくなり、あたかもベータ粒子のエネルギー損失分布のような波高分布を示す。印加電圧を上げると微小パルス成分が徐々にパ



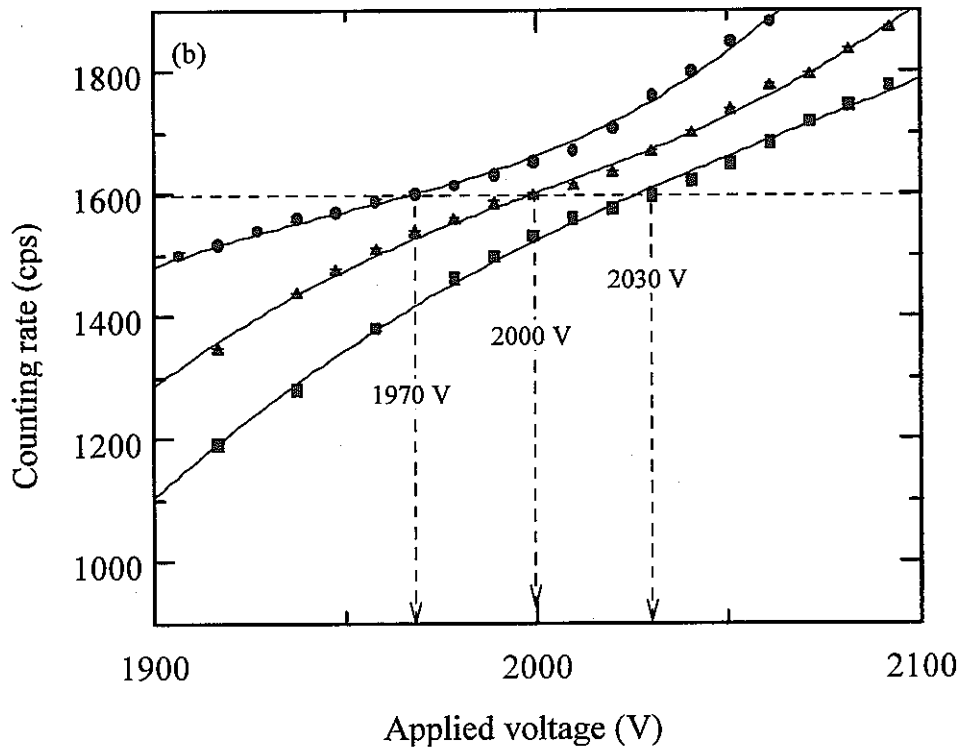
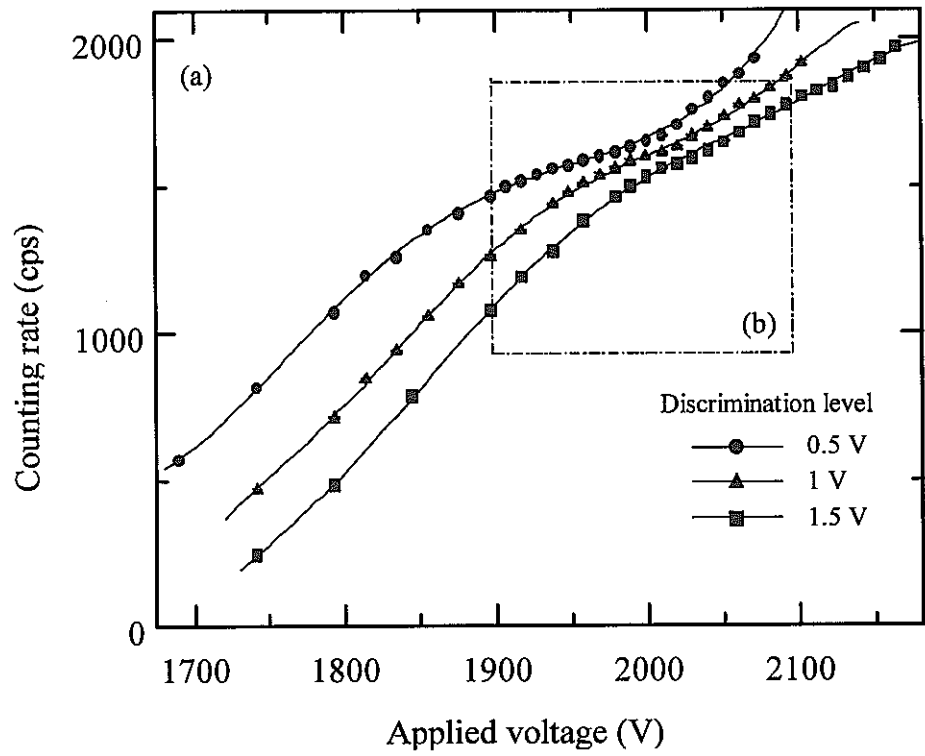
**Fig. 3-13** Pulse height spectra for different applied voltages in the plateau measurements.

ルス波高分布の高い方にシフトしてくるため、エレクトロニックノイズではないと判断できる。

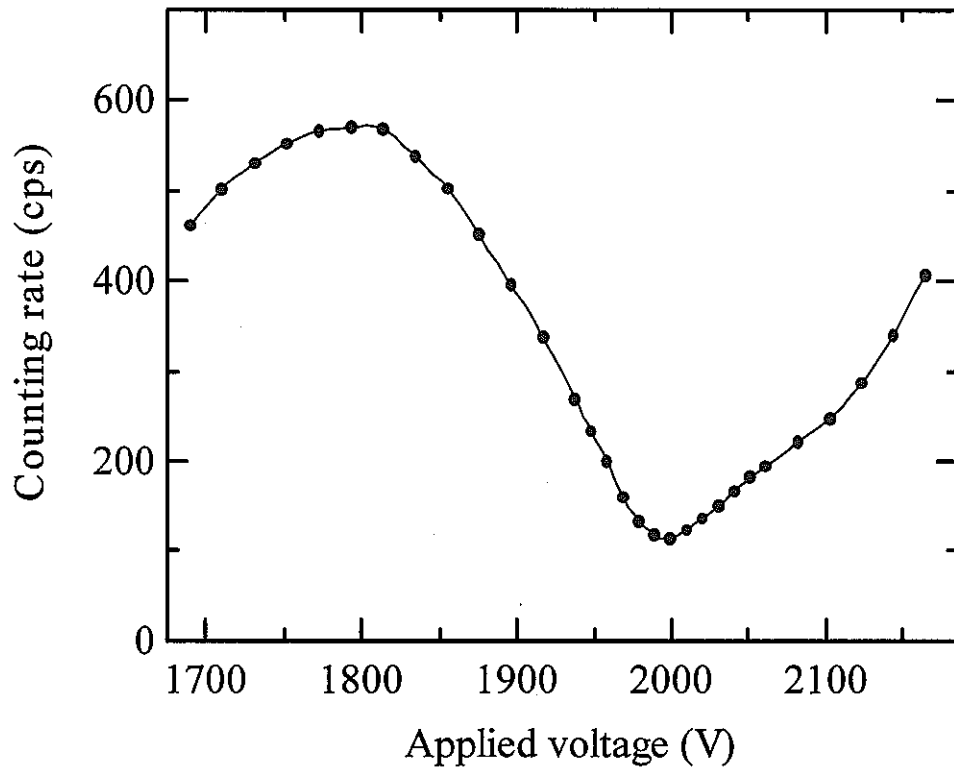
次にパルス波高分布とディスクリミネーションレベル、プラトー特性の関係について検討する。これから述べる議論においては、波高が小さくなるにつれて指数関数的に増加する微小パルスによる波高分布は、ベータ粒子の計数管内でのエネルギー損失分布に対応するパルスの波高分布とは全く関係がないと仮定する。すなわち壁効果による微小パルス波高分布ではないと仮定する。この仮定のもとで、ディスクリミネーションレベルを計数の“谷”に設定する。測定は以下のような手順で行う。

- (1) 印加電圧を 2000 V に設定し、計数の“谷”にディスクリミネーションレベルを設定する (これを  $D_2$  とする)。
- (2) SCA の LOWER LEVEL を  $D_2$  に設定する。この設定を行うため次のような操作を行う。
  - (2-1) 波高分布の  $D_2$  に来るようなパルスをパルスジェネレータから前置増幅器の TEST 端子 (1 pF の入力静電容量) に入力する。
  - (2-2) SCA の UPPER LEVEL は INTEGRAL にし、LOWER LEVEL を徐々に高い方から下げていき、ちょうどスケアラで数え始める位置を求める。これが  $D_2$  である。
- (3) 計数管の印加電圧をいったん落としてから徐々に上げていきプラトー特性を詳細にとる。同時にパルス波高分布を測定する。
- (4) SCA の LOWER LEVEL を  $D_1 (=0.5 \times D_2)$  に設定し、(3) と同様の測定を行う。
- (5) SCA の LOWER LEVEL を  $D_3 (=1.5 \times D_2)$  に設定し、(3) と同様の測定を行う。
- (6)  $D_2$  を中心にして SCA の LOWER LEVEL を  $D_2 - 0.5$  V、UPPER LEVEL を  $D_2 + 0.5$  V に設定して、微分プラトー特性をとる。

この一連の測定で得られたプラトー特性を Fig.3-14 に、微分プラトー特性を Fig. 3-15 にそれぞれ示す。 $D_1$ 、 $D_2$ 、 $D_3$  はそれぞれ 0.5 V、1.0 V、1.5 V である。Fig.3-14(a) の一部を拡大した Fig.3-14(b) において 2000 V でディスクリミネ



**Fig. 3-14** (a) Plateau measurement for different discrimination levels.  
 (b) The extended graph of (a).

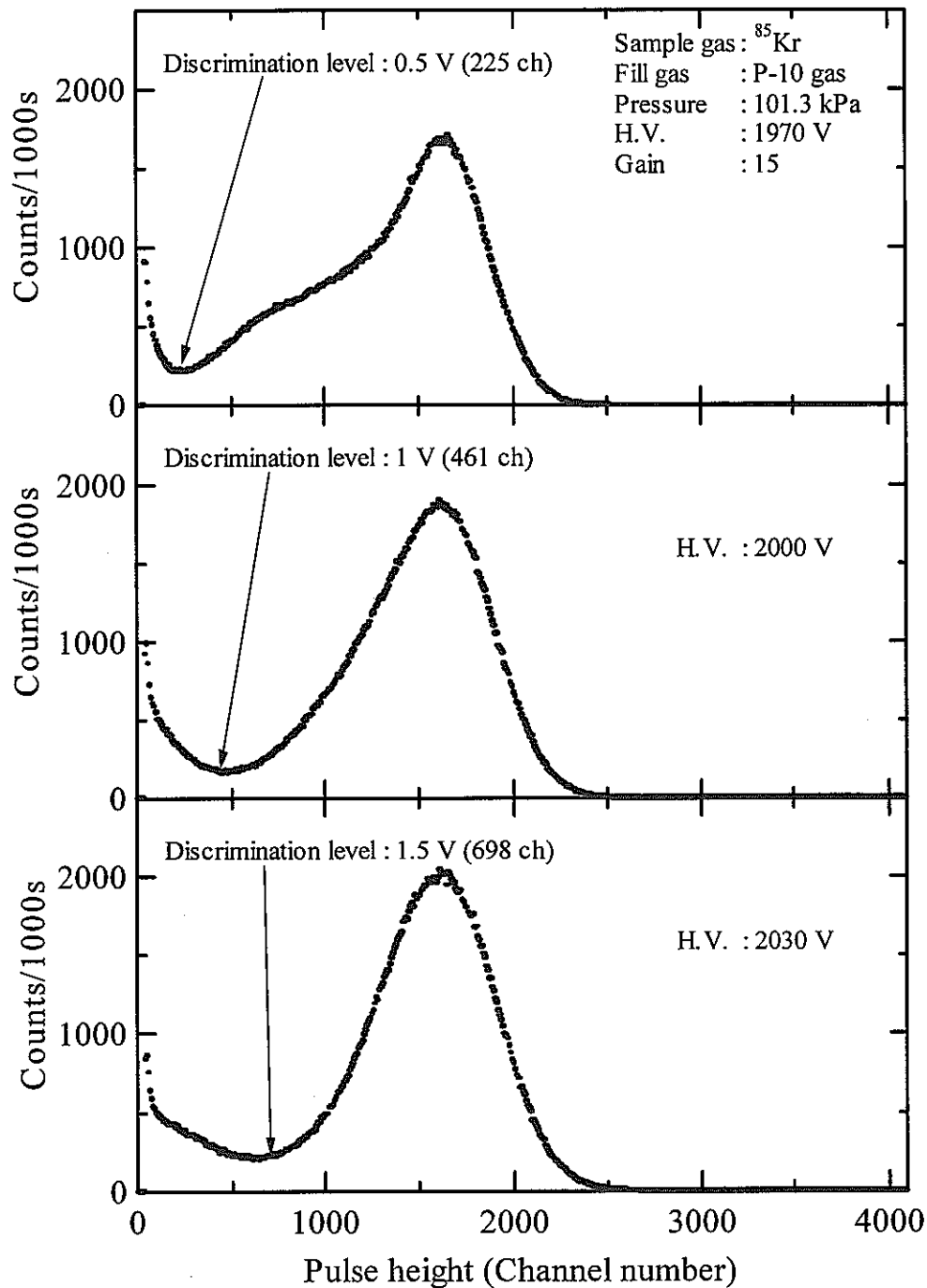


**Fig.3-15** Differential plateau measurement in order to determine the optimum applied voltage.

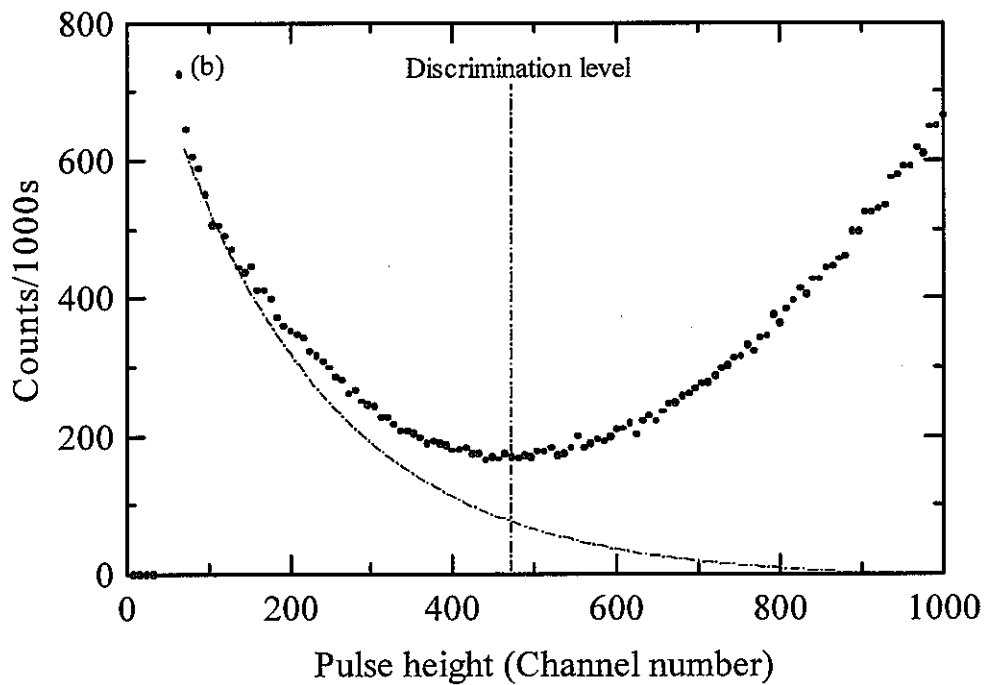
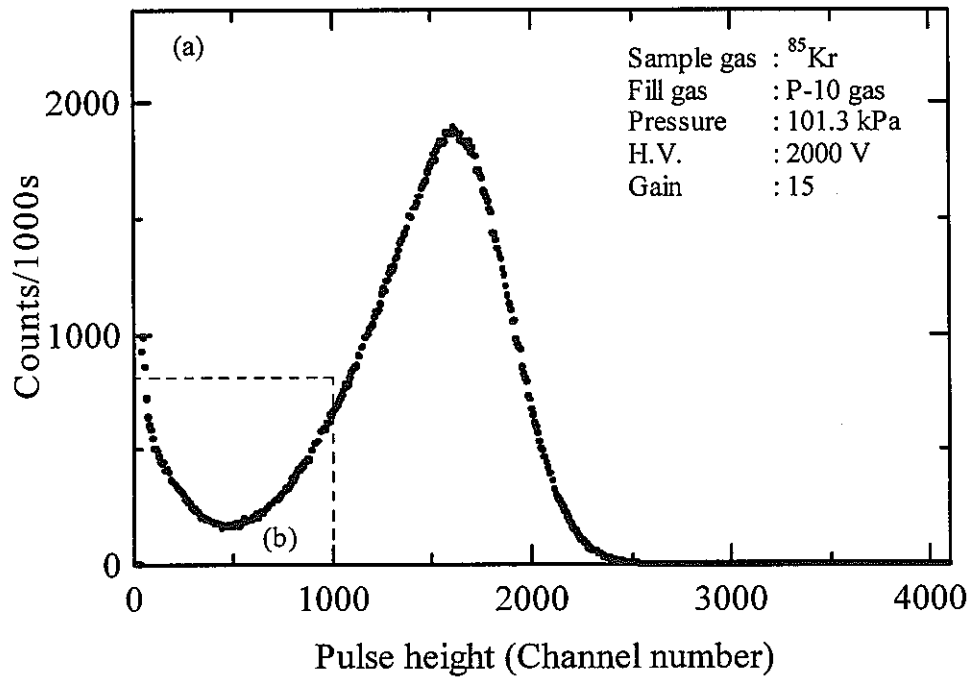
ーションレベルを 1 V に設定したときの計数率に等しいときの  $D_1$ 、 $D_3$  の印加電圧はそれぞれおよそ 1970 V、2030 V である。これら三つの印加電圧におけるパルス波高分布を Fig. 3-16 に示す。ADC に入力するパルスの電圧とチャンネル番号の関係を測定して得られた 0.5 V、1.0 V、1.5 V に対応するチャンネル番号はそれぞれ 225 ch、461 ch、698 ch であった。それぞれのチャンネル番号が計数の“谷”に合致するのがわかる。ただし、2030 V になると微小パルス成分の波高が高くなって計数の“谷”があいまいになってきている。この  $D_3$  にディスクリミネーションレベルを設定したときの、 $D_2$  と等しい計数率における印加電圧は、2030 V よりもむしろ 2025 V にあると思われる（使用している高電圧供給源は 5 V の微調整ができないため 2030 V を挙げた）。2000 V と 1970 V の印加電圧の差は 30 V、2025 V との差 25 V である。この -5 V は微小パルス成分の波高が高くなって計数の“谷”があいまいになることに起因している。すなわち、真の計数の中に波高が大きくなってきたよけいな微小パルス成分が入り込んで、多く計数され始めているということである。

このように使用する印加電圧によってディスクリミネーションレベルが変化するの本来当然のことである。したがってディスクリミネーションレベルを設定して、そのレベルを中心にある程度の幅の WINDOW を設定して微分プラトー特性をとって、Fig. 3-15 に示すような特性が得ることができるならば、正確にそのディスクリミネーションレベルでの使用電圧を決定できる。Fig. 3-15 では、測定方法の (6) からディスクリミネーションレベルは 1 V であるから、このときの使用電圧は 2000 V でなければならない。Fig. 3-15 は正確にそれを示している。すなわち計数の“谷”が WINDOW に入ったとき、計数率は最小になる。この微分プラトー曲線が得られるのは、このような計数の“谷”が明確に存在するためで、Fig. 3-13 からその使用電圧範囲（すなわちプラトー）を推測すると、1950 V から 2000 V となる。

さて、これまで 2000 V を基準としてきたのは、先に述べた“比較的妥当な”という条件と、設定した仮定のもとに成り立っている。Fig. 3-17 にそれを示す。Fig. 3-17(b) において、ディスクリミネーションレベルを計数の“谷”に設定する。ディスクリミネーションレベルの左側の微小パルスの分布は、谷の形状が対称であれば、ディスクリミネーションレベルの計数のちょうど半分の計数を



**Fig. 3-16** Pulse height spectra for different applied voltages. Arrows indicate optimum discrimination levels, which situate at the “valley” for each applied voltage except for the case of HV : 2030 V.



**Fig. 3-17** (a) Pulse height spectrum for the appropriate applied voltage and discrimination level.  
 (b) The extended graph of (a), in order to account for the correction of the count loss due to wall and threshold effects.



通って、図にあるような形状で減少していくものと思われる。この破線をディスクリミネーションレベルで対称に折り返すと、パルス波高が小さくなるにつれてその計数がゼロに向かうようなベータ粒子のエネルギー損失分布が想定できる。すなわち、壁効果や低エネルギー損失の様子がわかる。したがってこの対称性が保たれていれば、ディスクリミネーションレベルをこの“谷”に設定したときの計数率は、正確にベータ粒子の放射能強度と一致するはずである。2000 V を基準にしているのは、計数の“谷”の形状がもっとも対称に近いからで、その様子は Fig. 3-13 や Fig. 3-17 からよくわかる。

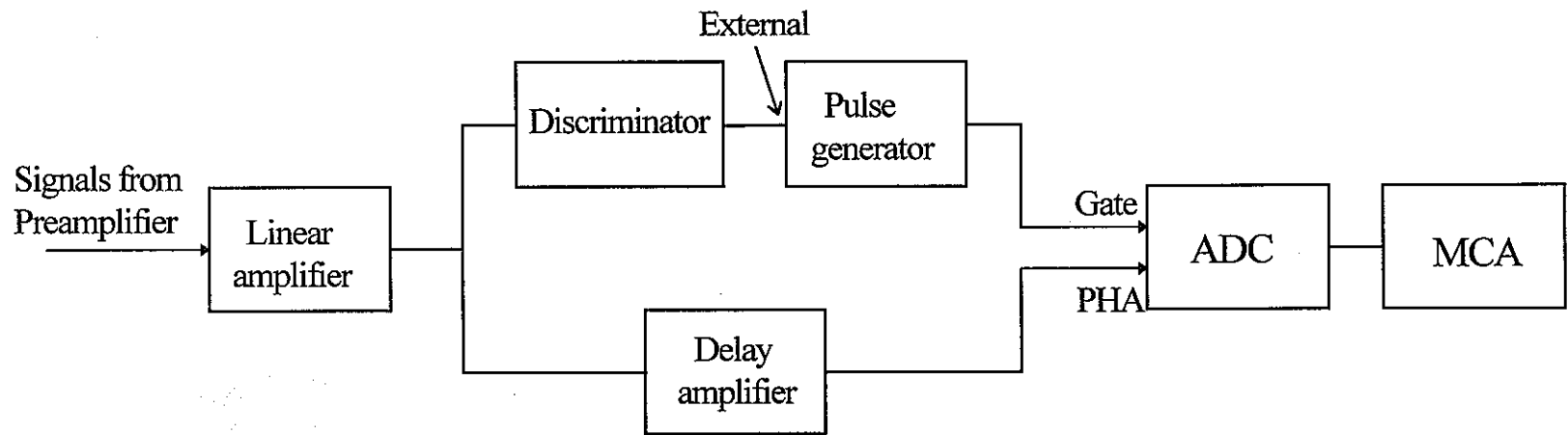
微小パルスの分布形状に適当な関数を設定し、最小二乗法を用いてフィッティングして、その関数をフィッティングが妥当なチャンネル番号 (ch) から計数がゼロになるまでの範囲で積分する。パルス波高分布における ch から上側の全ての計数の和から、計算した積分値を引くことによって、真の計数が導き出せる。この真の計数と、ディスクリミネーションレベルを計数の“谷”に設定したときの全計数を比較すると、その偏差は 0.12% であった。したがって、あるディスクリミネーションレベルを設定し、微分プラトー特性をとって使用電圧を決定し、測定した計数の真の計数からのずれを示す系統的な誤差は、統計的な誤差も考慮して大きめに見積もって 0.2% と決定した。

これまでは、波高が小さくなるにつれて指数関数的に増加する微小パルスによる波高分布は、ベータ粒子の計数管内でのエネルギー損失分布に対応するパルスの波高分布とは全く関係がないと仮定してきた。もしこの仮定が正しくなく壁効果による微小パルス波高分布であるとすれば、計数の“谷”にディスクリミネーションレベルを設定して得られる計数は、真の計数を示さないことになる。この微小パルスが何であるかを解明しなければならない。壁効果によるものでないとするならば、考えられる原因はアフターパルスによるものである。アフターパルスは、ベータ粒子によって励起原子が放出する紫外線光子から生じることが十分解明されている[15]。この光子はほぼ時間の遅れなく陰極に到達し光電効果によって陰極表面に電子を生成する。これが電場によって陽極に流動して、陰極から陽極への電子の移動に要する時間だけ一次パルスから遅れて、本来の計数に関係のないもうひとつのパルスを形成する。通常の寸法の比例計数管であればこの時間の遅れは数  $\mu\text{s}$  である[18]。その他にも完全に解明されて

いない機構によって、一次パルスから数百  $\mu\text{s}$  程度遅れたアフターパルスが発生する。その原因は陰極に収集される陽イオンの相互作用、陰極からの電子の電界放出、比例計数ガス原子の準安定状態などが関連する[18]。

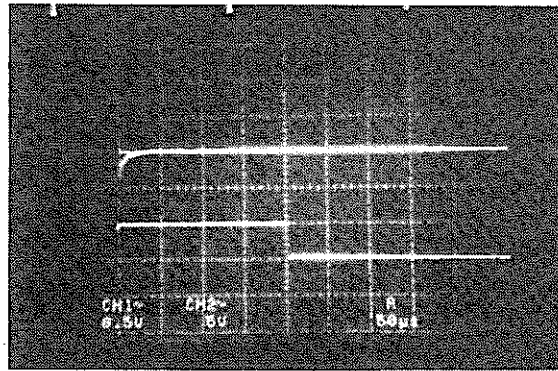
いずれにせよ、アフターパルスは一次パルスからある時間だけ遅れて発生するため、通常のランダムな放射線の時間情報とは違い、一次パルスに対応した遅れ時間情報を有する。そこで、Fig. 3-18 に示すような信号処理回路を用いて測定を行う。比例増幅器の出力のひとつを波形弁別器を通してパルスジェネレーターの External 端子に入力して論理 TTL ゲート信号を出し、ADC の Gate 端子に入力する。比例増幅器からのもうひとつの出力を、波形弁別器、パルスジェネレータによって一次パルスから少し遅れたゲート信号に、ディレイ増幅器を用いてタイミングを合わせ、その出力を ADC の通常の PHA 端子に入力する。このとき PHA をコインシデンスモードにしているので、ADC はゲート信号が開いているときにしかディレイ増幅器を通ってきた信号を AD 変換しない。波形弁別器のディスクリミネーションレベルは、アフターパルスを伴うであろう比較的高いパルス波高の情報だけでゲート信号を発生させるため、2 V に設定した。ゲート信号の幅は 3.2.1.2 で検討するような理由で、もしアフターパルスであれば比較的遅い成分であると予想したため 200  $\mu\text{s}$  に設定し、このゲート信号を一次パルスからゲート幅分だけディレイさせていったときのパルス波高分布を測定した。放射性試料ガスの計数率は、偶発同時計数を減らすために 100 cps 程度に調整した。

PHA と Gate に入るパルスの様子を Fig. 3-19 に示す。ディレイ時間を変化させたときのパルス波高分布の様子を Fig.3-20 に示す。もしベータ粒子によるランダムな事象だけであるならば（すなわち微小パルス波高分布が壁効果の影響であるならば）、ディレイ時間を変えても同じゲート幅に入ってくる偶発同時計数は同じはずであり、どの時間においても偶発同時計数によるパルス波高分布は同じ形状を示すはずである。しかし 400  $\mu\text{s}$  のディレイ時間では、微小パルス波高分布がかなりの計数があるのに対し、10 ms のディレイ時間では、ほとんどそれが観測されない。したがって問題となっている微小パルス波高分布は、壁効果によるものではなくアフターパルスによるものであると言える。

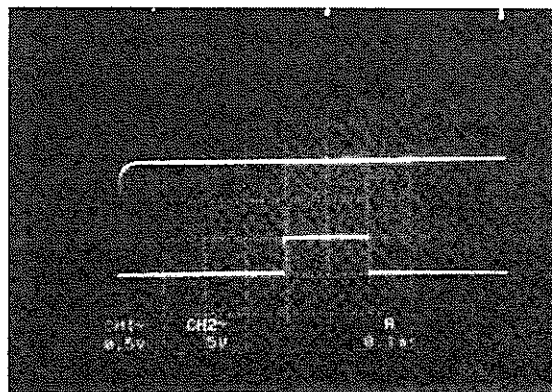


**Fig. 3-18** Block diagram for the measurement in order to investigate whether the pulses with very small pulse height are due to wall effect or after-pulses.

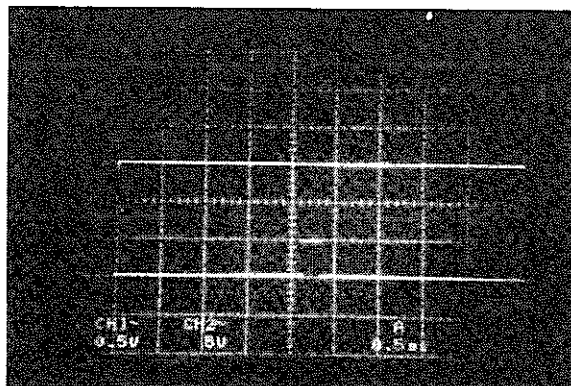
Delay time



(a) 0  $\mu$ s

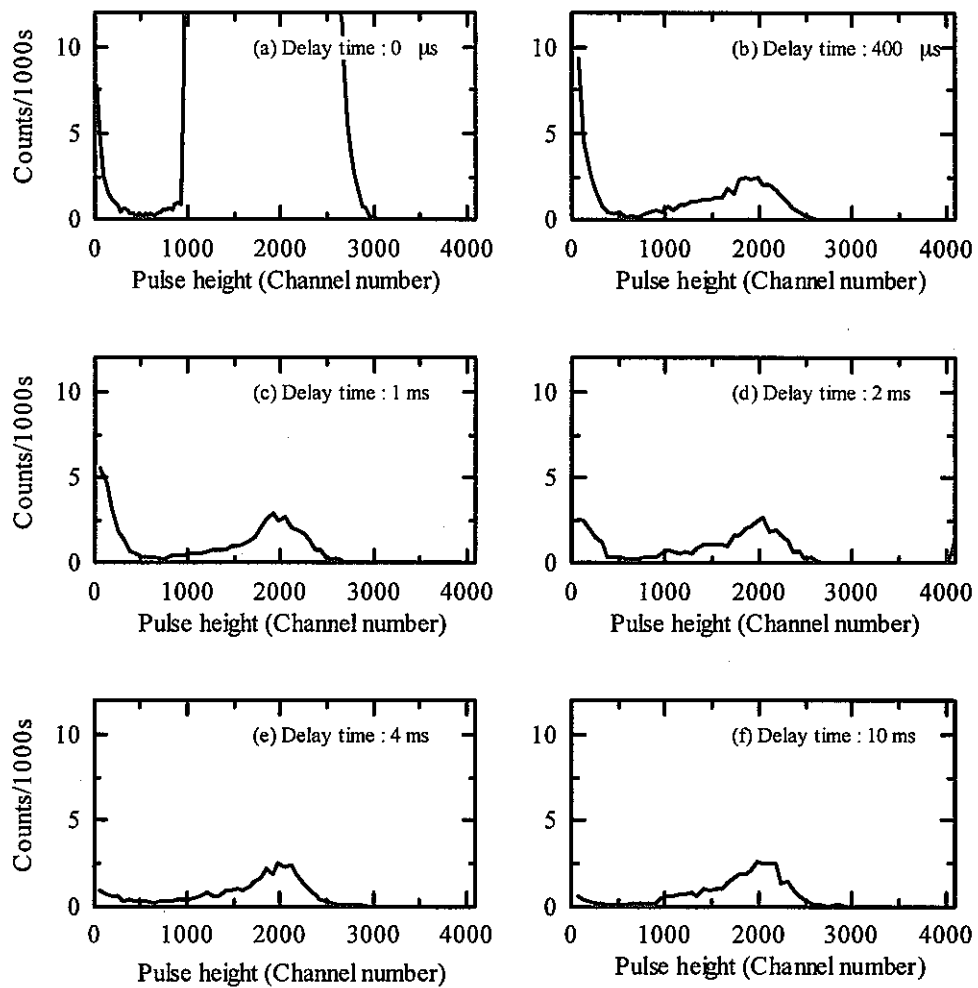


(b) 400  $\mu$ s



(c) 2 ms

**Fig. 3-19** Pulses from the delay amplifier (upper pulse shape in each figure (a), (b), (c) ) and from the pulse generator (lower pulse shape in each figure) for different delay times, 0  $\mu$ s, 400  $\mu$ s, 2 ms. Both time(abscissa) and voltage(ordinate) scales are indicated in the figures.



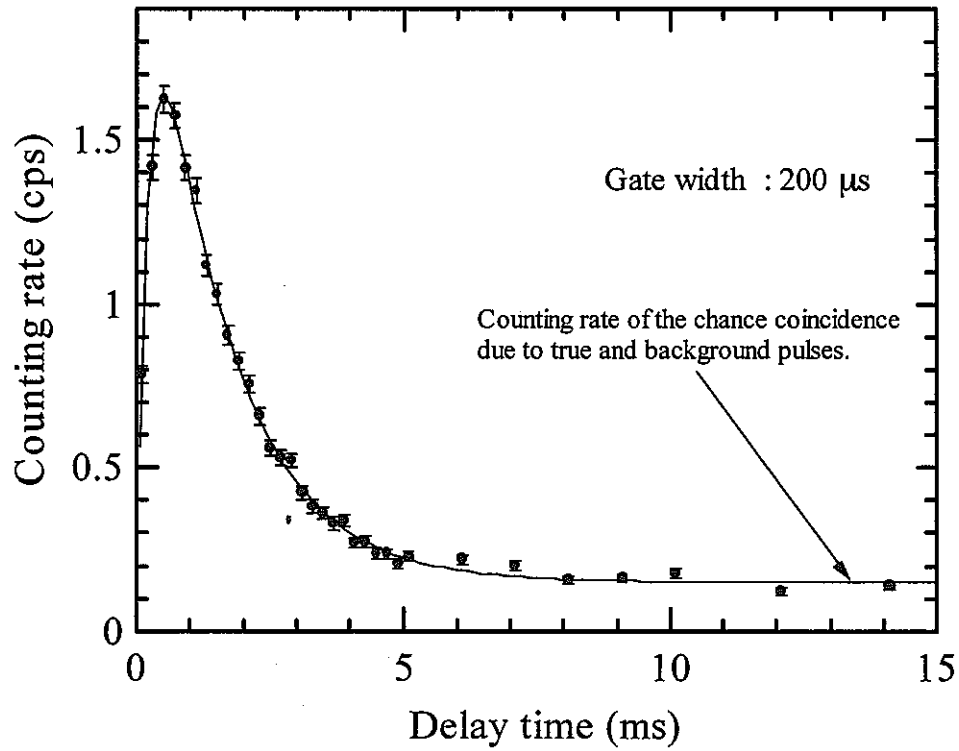
**Fig. 3-20** Pulse height spectra for different delay times of gate pulses. Components of the distribution are the chance coincidence counts due to true and background pulses and the counts due to after pulses.

それぞれのディレイ時間について微小パルス成分のみに対する計数をプロットした図を Fig. 3-21 に示す。このような時間分布をもっているアフターパルスは何に起因しているのかを考察する。まず、もっとも計数されるディレイ時間が  $400 \mu\text{s}$  のため、比較的一次パルスからの遅れが短い励起原子が放出する光子に起因するものではないと言える。しかしこの励起原子が準安定状態にあるとある程度遅れてから光子を放出する。しかしながらその確率は時間間隔がゼロのときが最も高い[19]ので、電子の移動速度を考慮して数  $\mu\text{s}$  の時間で一番高い計数を示し、そこから指数関数的に減少するはずである。Fig. 3-21 の時間分布はそれを示していない。したがってこのアフターパルスは励起原子の光子に起因するものではないと言える。この原因は、陽イオンが陰極と何らかの相互作用をしたか、もしくは陰極の真空電子準位を陽イオンが非常に低いところまで下げることによって非常に高い電場がかかり、電界放出によって陰極の伝導体から電子が放出されたかのどちらかが原因しそうである。これらを実験的に確かめることは困難であるので、ここではこれ以上は追及しない。

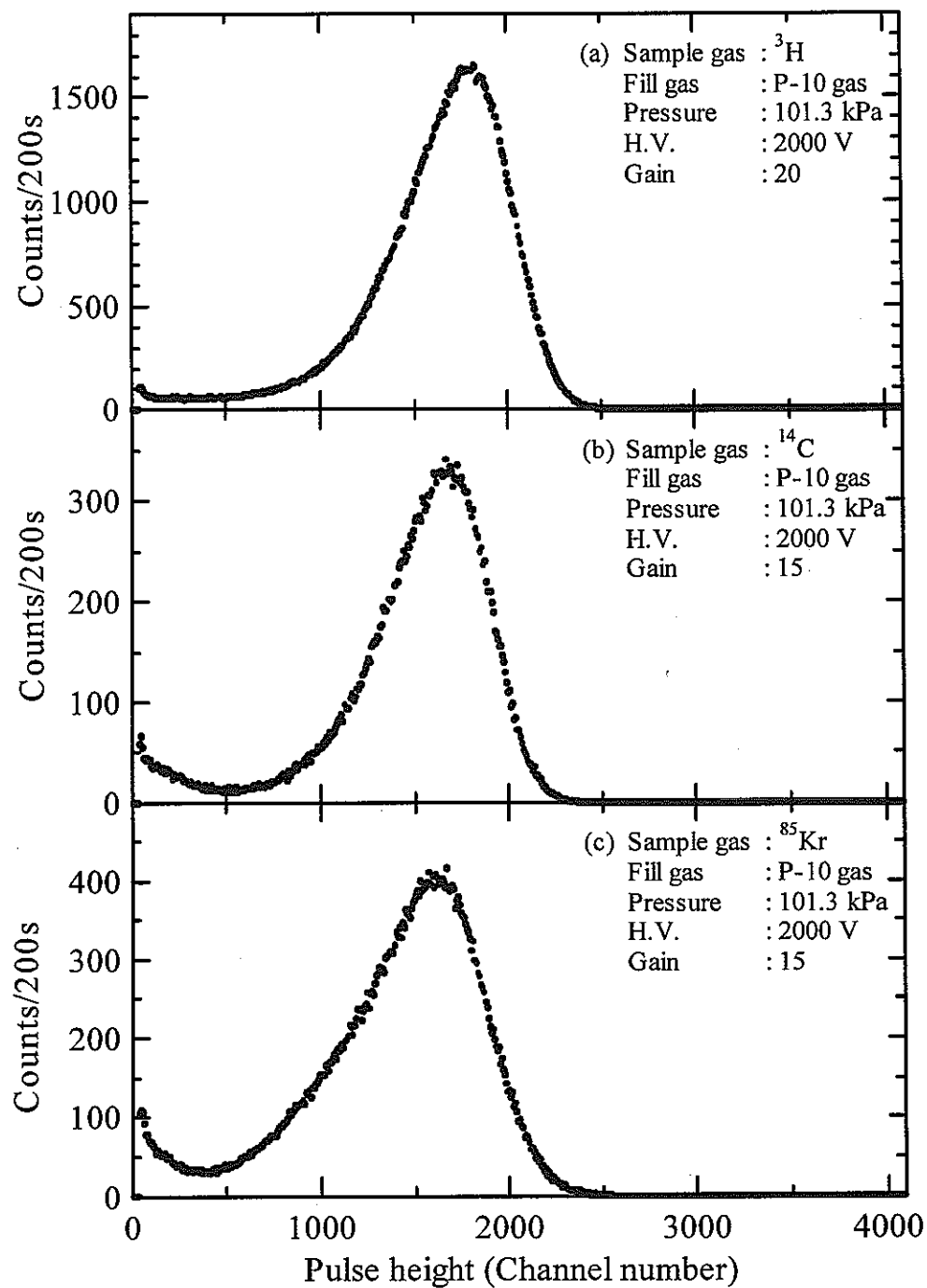
以上のことから、ディスクリミネーションレベルを設定し、それを中心にある程度の幅の WINDOW を設定して微分プラトー特性をとって使用電圧を決定したときに得られる計数率は、壁効果・低エネルギー損失の補正を必然的に施された計数率であり、したがって放射能強度を示す。その系統的な誤差は 0.2% である。

### 3.2.2.3 充填ガス圧力の影響

Fig. 3-22 に 101.3 kPa の P-10 ガス中で測定された  $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  のパルス波高分布をそれぞれ示す。 $^3\text{H}$  のようなエネルギーの低い核種は生成されるイオン対の数が少ないため、陽イオンに起因するアフターパルスの量が少なくなっていることがわかる。 $^{14}\text{C}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  とエネルギーが高くなっていくにつれて生成されるイオン対の数も増えるため陽イオンが増加し、アフターパルスの影響が顕著に現れてくる。これが 405.2 kPa の P-10 ガス中では Fig. 3-23 のようになる。101.3 kPa のときに比べて圧倒的にアフターパルスの量が減っている。この事を説明するのは現在のところやや困難ではあるが、次のことが考えられる。まず事実として判っているのは、圧力を高くすることによって (1) P-10 ガス中の消滅

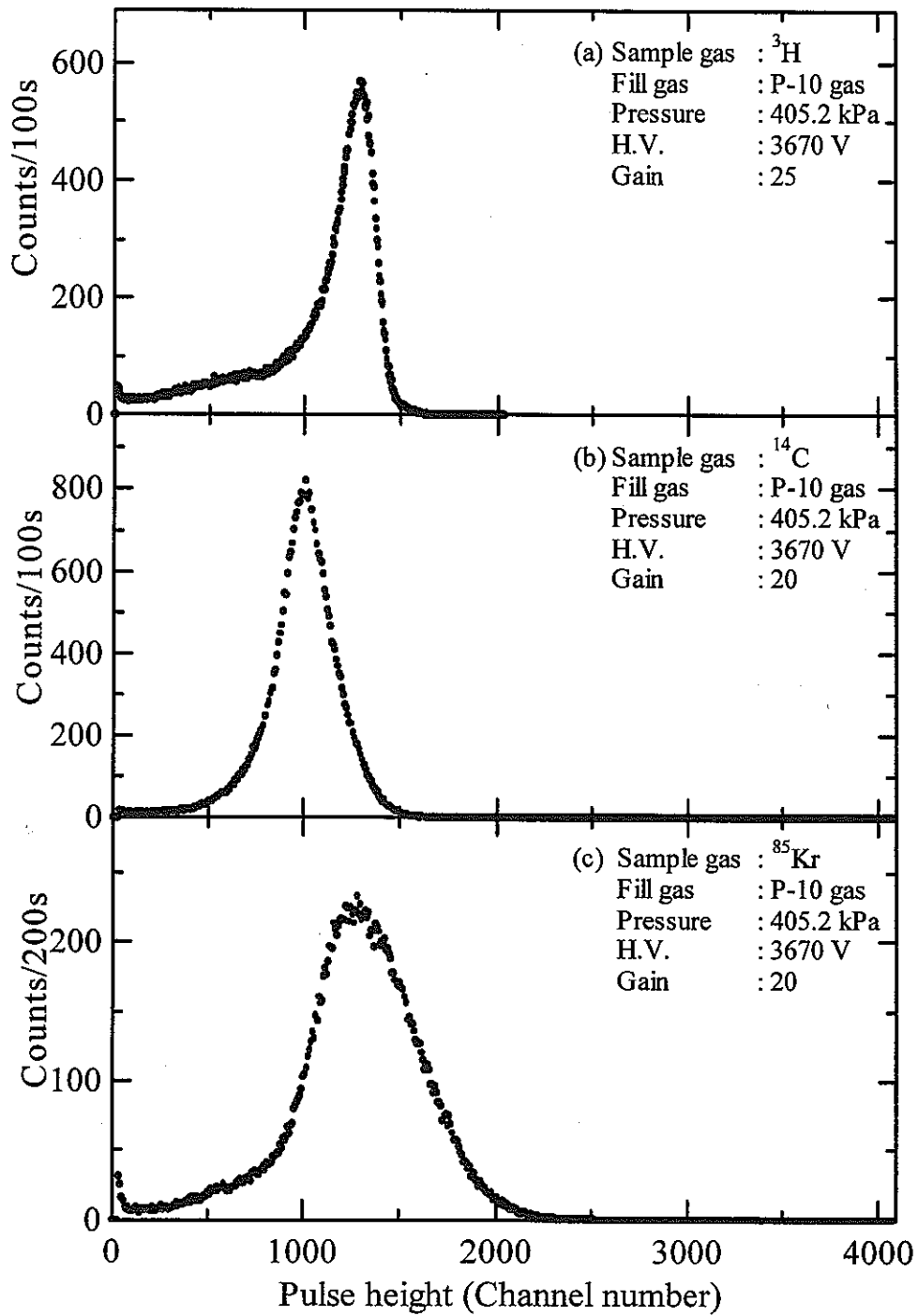


**Fig. 3-21** Time distribution of after-pulses.



**Fig. 3-22** Pulse height spectra with P-10 gas at 101.3 kPa for (a)  $^3\text{H}$ , (b)  $^{14}\text{C}$  and (c)  $^{85}\text{Kr}$ .





**Fig. 3-23** Pulse height spectra with P-10 gas at 405.2 kPa for (a)  $^3\text{H}$ , (b)  $^{14}\text{C}$  and (c)  $^{85}\text{Kr}$ .

ガスであるメタンの絶対量が多くなった、(2) 陽イオンの移動速度が遅くなった、の二点である。これらの事実から、アルゴンの陽イオンはより完全にメタンの陽イオンに電荷交換し、陰極においては電子を引き出す確率が低下する。すなわち、アルゴンの陽イオンが金属に触れると電子を引き出すが、メタンの場合には引き出さないからである。これらの関係を説明するためには、メタンガスの比率を変えたり、圧力を変えたりしてその全体の計数に対するアフターパルスの計数の変化を見ればよい。しかし、大変残念なことに今回作製した装置のどこかで微量の計数ガス漏れがあり、その個所を特定することに手間取っているため、高い圧力での安定した実験が行えず、またガス漏れがあると圧力の違いによる計数の変化を見ることができないので、これ以上の実験は行えなかった。しかしながら、圧力を高くすることは極めて有効であることを見出すことができた。

#### 3.2.2.4 分解時間

最後に、先にも述べた分解時間について簡単に議論する。分解時間はソースパルサー法を用いて決定した。パルサーの波高は、線源によるパルス波高分布の広がりちょうど中心あたりに来るように調整し、波形は真のパルス波形にほぼ等しくした。計数の測定はスケーラを用いて行った。比較のため、負荷抵抗を  $3.3 \text{ M}\Omega$  にしたときの分解時間も測定した。その結果を Table 3-1 に示す。これからわかるように分解時間が  $1/7$  になり、大きく改良されていることがわかる。同じ  $1000 \text{ cps}$  程度の測定でも計数の損失は、ダイオードの場合  $0.8\%$  であるが、 $3.3 \text{ M}\Omega$  の抵抗の場合  $5.9\%$  にもなってしまう。いかに性能の向上が計られているかわかるであろう。

なお、実際に作製した時定数変化型前置増幅器の回路図を Fig. 3-24 に示す。

**Table 3-1** Results of resolving time measurement with the Source-Pulser method.

Load resistor	3.3 M $\Omega$	1S1588 Si Diode
Resolving time determined	58.9 $\pm$ 0.2 $\mu$ sec.	8.06 $\pm$ 0.02 $\mu$ sec.
Measuring time	500 sec.	500 sec.
Pulser counts	372956	372956
Source counts	420515	419912
Source-Pulser counts	757456	787351

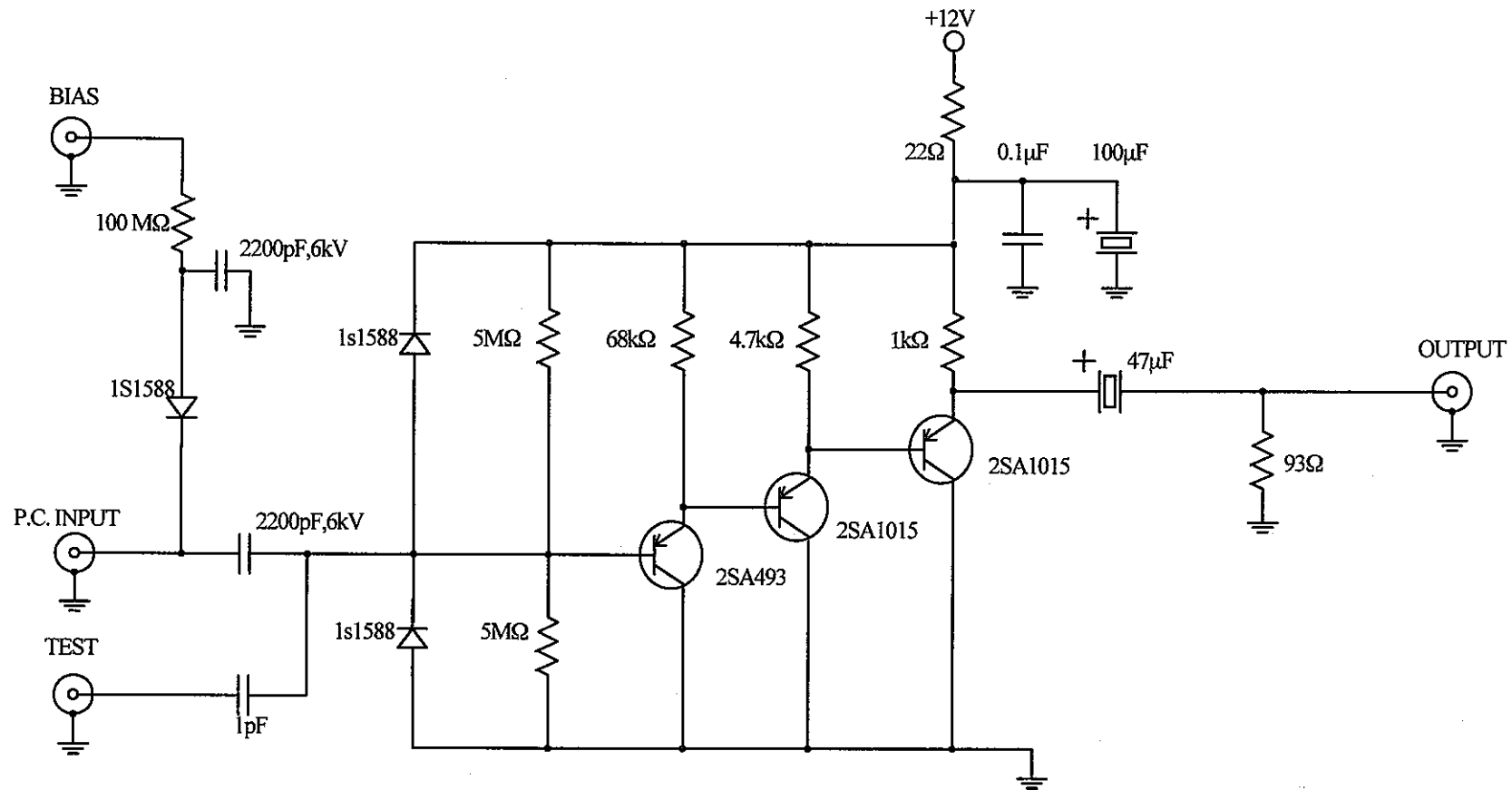


Fig. 3-24 Circuit of the logarithmic preamplifier with the variational time constant.

## 4. 長軸比例計数管内拡散法による放射能強度の絶対測定

### 4.1 最適計数時間

長軸比例計数管内拡散法では、2.2で述べたように計数の統計誤差と端効果による系統誤差の両方の誤差を含む全相対誤差が最小になる時間、すなわち最適計数時間を検討しその誤差を評価しておくことが望ましい。以下にその原理と方法を詳しく述べる。

しかし、実際には後述するように有効計数時間で測定すれば十分であることを付言する。

#### 4.1.1 測定原理と方法

注入した試料ガスの放射能強度  $A$  [Bq] に対する放射能強度測定の計数の統計的な相対誤差は (4-1) 式に示すように測定時間  $T$  [s] が長くなるにつれて小さくなる。

$$R_s = \frac{\sqrt{AT}}{AT} = \frac{1}{\sqrt{AT}} \quad (4-1)$$

しかし測定時間をあまり長くすると試料ガスが有感体積外へ拡散していき、端効果の影響を受けて計数されない。計数管の軸方向に対する注入した試料ガスの拡散分布は、

$$f(x,t) = \frac{A}{\sqrt{4\pi Dt}} \exp\left(-\frac{x^2}{4Dt}\right) \quad (4-2)$$

で表される。ここで  $D$  は拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{s}$ )、 $t$  は経過時間 (s)、 $x$  は試料注入場所からの計数管の軸方向の距離 (cm) である。拡散の様子はこの式によって表されることがわかっている [7,20] ため、試料ガスが有感体積を出てからどの程度計数されなくなったかを推定することができ、この計数損失は補正することが可能であ

る。しかしこの補正には当然のことながら補正誤差が伴い、結局この補正に伴う誤差と計数の統計誤差からなる全誤差が最小になるように計数時間を選ぶのが最も妥当であると考えることができる。計数損失の補正に伴う誤差を小さくしようとするれば、試料ガスが計数管の両端にほとんど拡散していないときに計数時間を止めなければならないため、(4-1)式より相対誤差は大きくなる。一方あまり計数時間を長くすると計数管の両端で端効果による計数損失が大きくなり、その補正に伴う誤差が大きくなってしまう。

計数管両端での端効果による計数損失  $\Delta N(T)$  は次の式で表される。

$$\Delta N(T) = AT - \int_{-L/2}^{L/2} \int_0^T f(x,t) dx dt \quad (4-3)$$

ここで  $L/2$  は試料を注入する計数管中央から端効果が現れ始めるまでの実質的な有感体積の長さである。計数損失の相対値は次のようになる。

$$R_{\Delta N} = \frac{\Delta N(T)}{AT} \quad (4-4)$$

原理的にはこれまでの議論で補正できるが、実際は少し様子が変わる。拡散していった試料の一部が計数管の端に到達し再び有効体積内に戻ってくるからである。そのため実験では(4-3)式で予想される計算値よりも計数損失が少なくなる[7,20]。したがって計数損失は実験によって補正しその誤差を評価する。

長軸比例計数管内拡散法によって測定される放射能強度  $A$  は次の式で表すことができる。

$$A = \frac{N(T)}{\int_0^T Y(t) dt} \quad (4-5)$$

ここで  $N(T)$  測定時間  $T$  の間に実験的に得られる計数率である。また時刻  $t$  における  $Y(t)$  は次の式で与えられる。

$$\begin{aligned} Y(t) &= (\text{実効計数時間} / \text{実際計数時間}) \\ &= (\text{実効計数率 (cps)} / \text{全放射能強度}) \quad (4-6) \\ &= y(t) = \int_{-L/2}^{L/2} f(x,t) dt / A \end{aligned}$$

$y(t)$  は実験の結果に合うように次の式によるパラメータ  $a_1$ 、 $a_2$ 、 $a_3$ 、 $t_0$  を導入する。

$$y(t) = \begin{cases} 1 & t \leq t_0 \\ -a_1 t^2 + a_3 & t > t_0 \end{cases} \quad (4-7)$$

$y(t)$  は相対計数率曲線から求める。すなわち、計数管の中央に試料ガスを注入した後の経過時間  $t$  の関数として、縦軸にある短い時間間隔  $\Delta t$  毎に測定した計数率  $n(t)$  の相対値 ( $t=0$  の計数率  $n(0)$  に規格化) をプロットした曲線のことである。 $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  に対する相対計数率曲線を Fig. 4-1 に示す。これらの実験値に合うように、(4-7) 式のパラメータを最小二乗法によって決定する。その結果も Fig. 4-1 中の破線で示されている。

測定時間  $T$  内で端効果の影響のために生じる計数損失量を(4-7) 式によって計数時間の損失に換算した値は次の式から計算できる。

$$\Delta T = \int_0^T [1 - y(t)] dt = T - \int_0^T y(t) dt \quad (4-8)$$

(4-8) 式から計算した換算計数時間損失  $\Delta T$  は、Fig. 4-1 に示すように系統的誤差であるからこれを補正することが可能となる。しかしこの補正そのものに誤差が伴う。この補正に伴う誤差の  $\Delta T$  に対する割合  $p$  は、Fig. 4-1 からある程度予想できる。ここでは大きめに見積もって  $p=0.3$  とした。

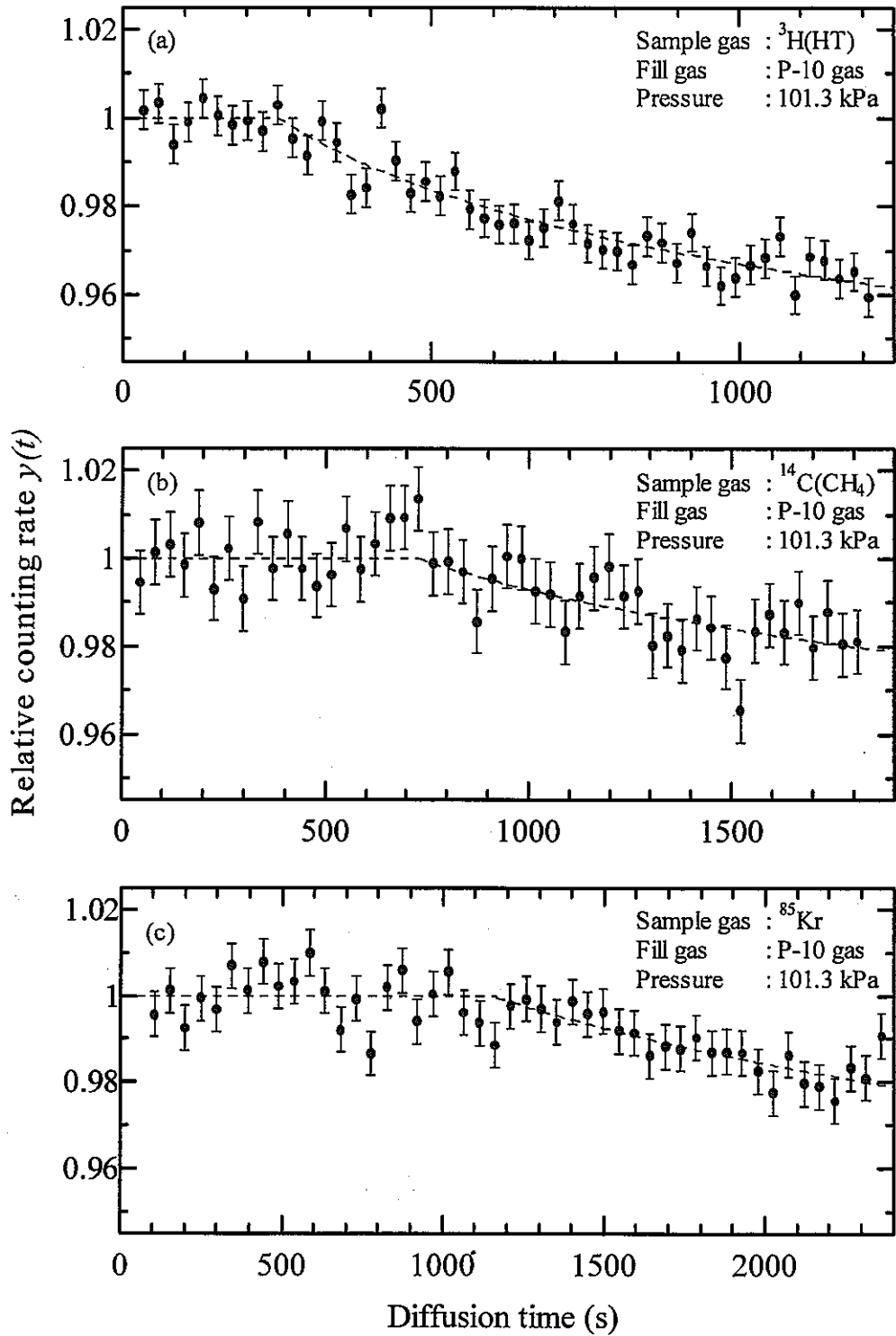
以上から実験的に求めることのできる放射能強度  $A$  は次の式で表される。

$$A = \frac{N(T) \pm \sqrt{N(T)}}{T - \Delta T \pm p\Delta T} \quad (4-9)$$

したがって測定された放射能強度  $A$  の相対誤差  $R$  は次の式で表される。

$$\begin{aligned} R &= \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N(T)}}{N(T)}\right)^2 + \left(\frac{p\Delta T}{T - \Delta T}\right)^2} \\ &= \sqrt{\frac{1}{N(T)} + p\left(T / \int_0^T y(t) dt - 1\right)^2} \end{aligned} \quad (4-10)$$

(4-10) 式を用いた  $R$  の計算は  $N(T)=AT$  で近似した。これに伴う  $R$  の誤差は無視しうる。



**Fig. 4-1** Relative counting rate as a function of diffusion time for (a)  $^3\text{H}$ , (b)  $^{14}\text{C}$  and (c)  $^{85}\text{Kr}$ .



#### 4.1.2 最適計数時間

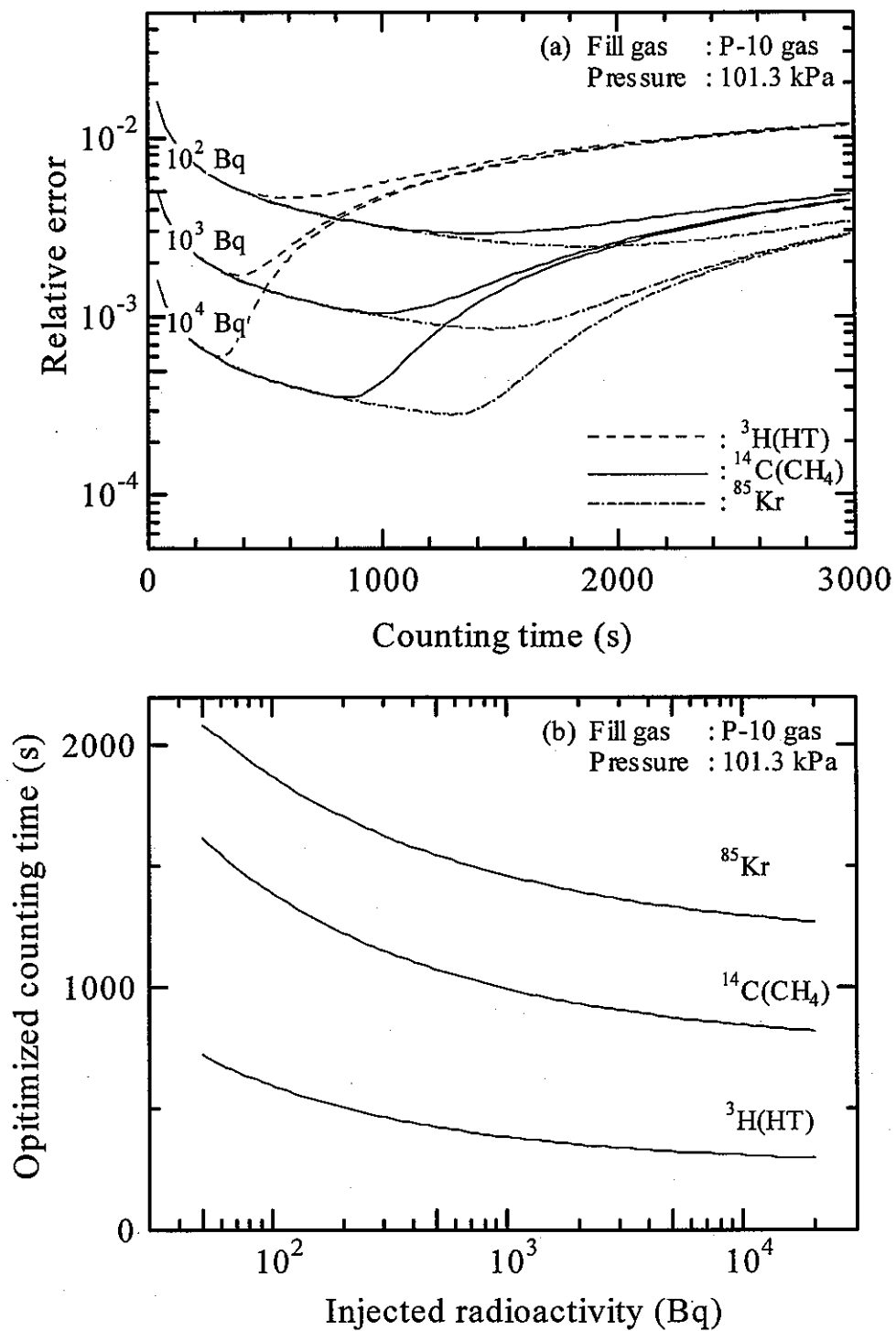
(4-10) 式を用いた相対誤差の計算結果を Fig. 4-2 (a) に示す。図中で相対誤差曲線の最小となる時間が最適計数時間  $T_0$  ということになる。放射能強度が大きい場合、計数率が高いので統計誤差が小さくなり、 $T_0$  は短くなる。逆に放射能強度が小さい場合、計数の統計誤差が大きいので、試料ガスが有感体積外へ少々出ても計数時間を長くして統計誤差を小さくするほうが有利であるため  $T_0$  は大きくなる。また Kr ガスのような拡散係数の小さいものは、同じ放射能強度でも他の二つに比べて計数時間を長くできるので相対誤差は小さくなる。

(4-10) 式と Fig. 4-2 (a) から、注入放射能強度  $A$  と最適計数時間  $T_0$  の関係を求めることができる。その結果を Fig. 4-2 (b) に示す。放射能強度を求める実験に際しては、Fig. 4-2 (a)、Fig. 4-2 (b)、またそれらの数表が手元があれば便利である。

#### 4.2 放射能強度の決定

前節で求めた相対誤差と最適計数時間を用いて放射能強度を決定する。実験はまずバックグラウンドを測定した後に、試料ガスを計数管の中央に注入して計数を開始する。試料ガスが計数管の有感体積外に出ない適当な時間内にまず一度計数率を測定し、バックグラウンドを差し引いて注入した放射能強度の概略値を求める。Fig. 4-2 (b) に示す関係から（もしくは別に作成した数表から）最適な計数時間を求める。この間はまだ計数を続けている。計数を止める時間は得られた最適な計数時間から決定する。計数管全体は鉛ブロックで囲まれているため、バックグラウンド計数率は 8 cps 以下である。

$^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  に対して、それぞれ放射能強度、最適計数時間で計数したときの相対誤差、有感体積を出るぎりぎりのやや短縮された時間（有効計数時間）で計数したときの相対誤差を測定した結果を Table 4-1 に示す。Table 4-1 を見てわかるように、実際は最適計数時間を考慮しなくても、十分な精度が得られる。当然、注入される試料の放射能強度が小さくなってくるとこれらの差は大きくなることは予想できるが、5.3 で述べる換算係数を求める際の繰り返し実験に



**Fig. 4-2** (a) Relative error of measured radioactivity as a function of counting time calculated with eq.(4-10) for different injected radioactivities.  
(b) Optimized counting time as a function of radioactivity determined from eq.(4-10) for different gaseous samples.

**Table 4-1** Results of radioactivity measurements with the DLPC method applying optimized counting time and curtailed one for  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  and  $^{85}\text{Kr}$ .

Nucilde	$^3\text{H}$	
Counting time	347 s (Optimized time)	251 s (Curtailed time)
Radioactivity determined	$2175.8 \pm 5.1$ Bq	$2175 \pm 5.2$ Bq
Total relative error	0.233%	0.241%
Statistical error	0.115%	0.135%
End effect error	0.034%	0%
Other errors	0.2%	0.2%

Nucilde	$^{14}\text{C}$	
Counting time	1077 s (Optimized time)	729 s (Curtailed time)
Radioactivity determined	$488.9 \pm 1.2$ Bq	$488.9 \pm 1.3$ Bq
Total relative error	0.245%	0.261%
Statistical error	0.138%	0.168%
End effect error	0.044%	0%
Other errors	0.2%	0.2%

Nucilde	$^{85}\text{Kr}$	
Counting time	1524 s (Optimized time)	1167 s (Curtailed time)
Radioactivity determined	$589.2 \pm 1.3$ Bq	$589.2 \pm 1.4$ Bq
Total relative error	0.228%	0.234%
Statistical error	0.106%	0.121%
End effect error	0.028%	0%
Other errors	0.2%	0.2%

おいては、常に 500 Bq ほどの試料を注入するため、有感体積を出る前までの有効計数時間で計数しても、十分な精度が得られる。そのため誤差は統計誤差だけ考えればよく、全相対誤差を、求めた放射能強度の値から計算しなければならないような最適な計数時間で計数する必要は全くない。ここで注意しておくことは、計数管の中央から注入された試料ガスが有感体積をちょうど出るまでの有効計数時間を、相対計数率曲線(Fig. 4-1) によって正確に把握しておくことである。

## 5. 放射性ガスモニタの校正

原子力関連施設の作業環境管理や放出される放射能の管理において、種々の放射性ガスモニタが使用されている。これらのガスモニタを用いて得られる測定値の信頼性を確保するためには、実際の放射性ガスを用いた校正を行わなければならない。この校正を行うためには、精度の高い基準ガスを与えることが重要である。

この基準ガスを与える方法として DLPC 法を採用し、高い精度で放射性ガスモニタの校正を行う方法がほぼ確立されている [12]。この方法は、まず比例計数管を含む系（基準系）において DLPC 法によって放射能強度と試料を基準系内に均一にした後の計数率の関係（換算係数）を校正しておき、次に放射性ガスが混合した空気を放射性ガスモニタを含む系（校正系）に均一に満たして出力電流値を読み取った後、その一部を基準系内に分取し、基準系内に均一にしたあと測定した計数率と換算係数、標準体積容器とサンプリング容器の体積から、校正系内にあった放射能濃度がわかる。

ここで若干問題となるのは、比例計数ガスに分取の際に少量ではあるが空気が混入するため、電子付着性を示す酸素によって計数率が低下することである。この補正は導入する核種ごとに評価をする必要があり、その補正には誤差が伴う。また、標準体積容器とサンプリング容器の二つによって完全に二つの系を遮断しており、これら二つの体積を測定する必要があること、それに伴って分取精度を評価しなければならず、それを行うためには校正系全体の体積も知る必要がある。したがって本研究では（1）基準系内に空気が混入しないような方法と、（2）校正系から基準系へのガス移行方法、を検討し、さらに精度の高い放射性ガスモニタの校正とシンプルな校正方法を考案した。またエレクトロニクス系にも改良を加えた。

## 5.1 校正装置

### 5.1.1 校正装置の構成

校正装置は、Fig. 5-1 に示すように放射性ガスを直接測定するための長軸比例計数管と試料ガスの循環ポンプを含むガスループと、被校正ガスモニタと循環ポンプを含むガスループとを、1個のサンプリング容器で介してある。

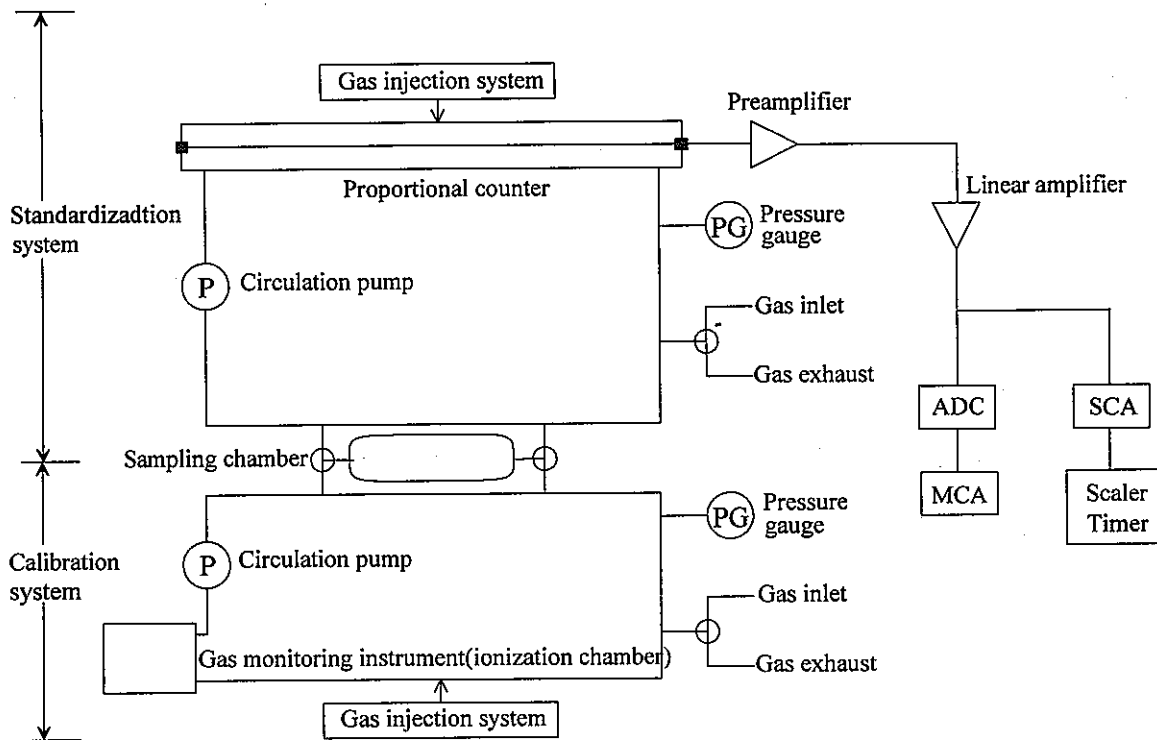
長軸比例計数管は、内径 40 mm、長さ 1000 mm のステンレス製円筒形陰極と直径 25  $\mu\text{m}$  の金メッキタングステン陽極線からなる。P-10 ガスを比例計数ガスとして用い、印加電圧を 101.3 kPa の内圧で 2000 V に設定した。計数管への試料の注入は、これまでのマイクロシリンジを用いた方法とは異なり、後で述べる注入装置を用いて行った。計数管全体は、バックグラウンド計数率を低減させるため、厚さ 50 mm の鉛で遮蔽されている。このため、バックグラウンド計数率は 8 cps 以下に低減できる。

ガスループは長軸比例計数管を含む基準系ガスループと被校正ガスモニタを含む校正系ガスループの二つからなる。それぞれ銅管ないしステンレス鋼管で配管されている。また試料を循環させるためのポンプが含まれる。

長軸比例計数管からの信号は、3.2.2 で述べた時定数変化型前置増幅器と比例増幅器、波形弁別器を通して計数される。本来はデットタイムセッタを用いるべきであるが、時間的ゆとりがなく今回は用いなかった。パルス波高分布がマルチチャンネル波高分析器によって記録できる。

### 5.1.2 耐高圧力循環ポンプ

DLPC 法では、比例計数ガスの圧力を高くし、試料ガスの拡散速度を遅くして計数時間を長くすれば、計数の統計誤差を小さくできる。また圧力を高くすると、ディスクリミネーションレベルの設定による壁効果と低エネルギー損失の影響を大幅に軽減することができる（今回は装置の都合上、一部の実験を除いてほとんど 103.1 kPa の圧力で測定した）。ガスモニタの校正では、試料ガスを系内に均一にさせる操作が多く、迅速な実験を行うためには高い圧力でも早く試料を均一にできる、しかもポンプ自身の発熱によって、試料ガスに濃度勾



**Fig. 5-1** Setup of gas loops for calibration of radioactive gas monitoring instruments.

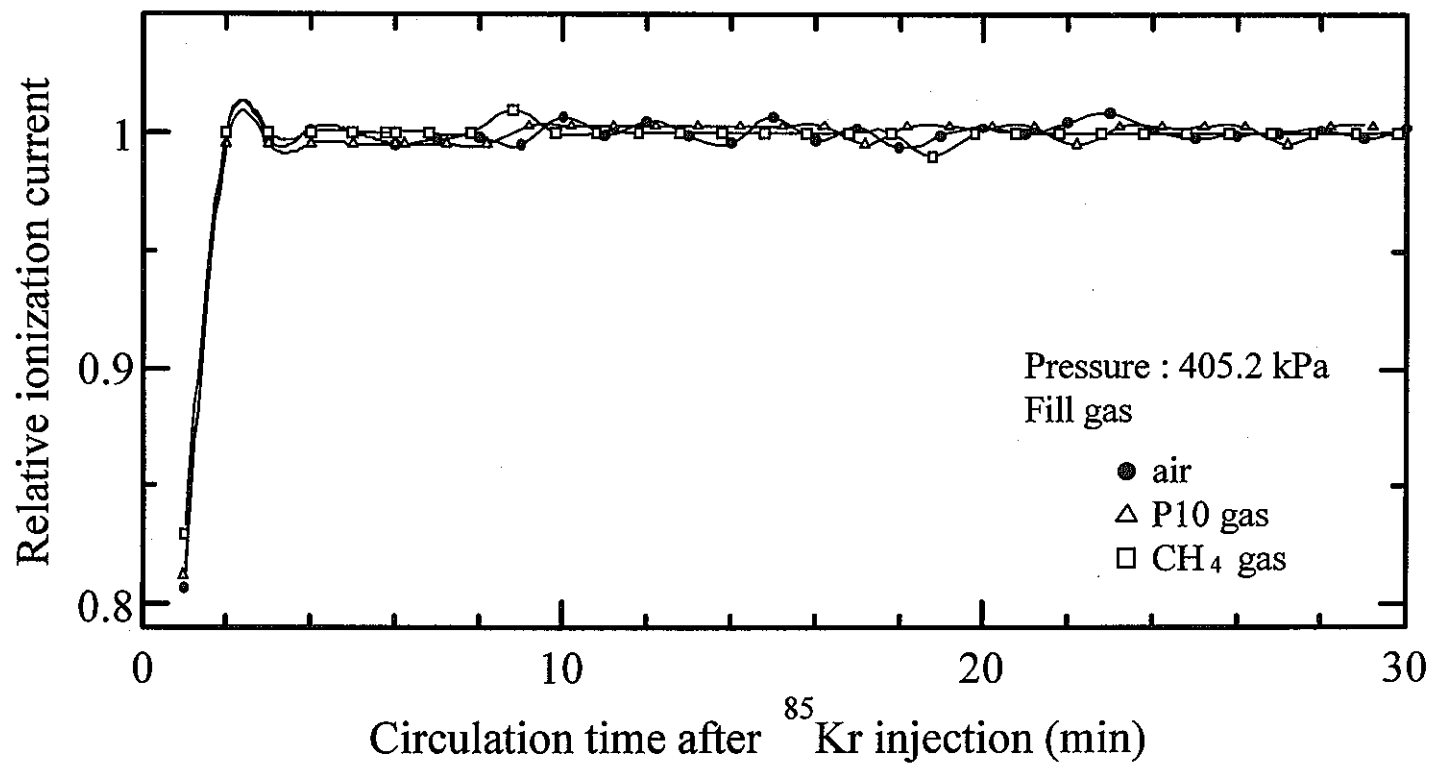
配が生じないような試料ガス循環用のポンプが必要である。市販でこれらの条件を満たすポンプがないため自作した[21]。

注入された試料ガスを、循環ポンプによって系内に均一に分布させるのに必要な時間を知る必要がある。これは計数管やガスモニタの幾何学的形状や、それぞれの感度によっても変化することが考えられるので、基準系、校正系の両方の系において、その均一化の効果を測定した。

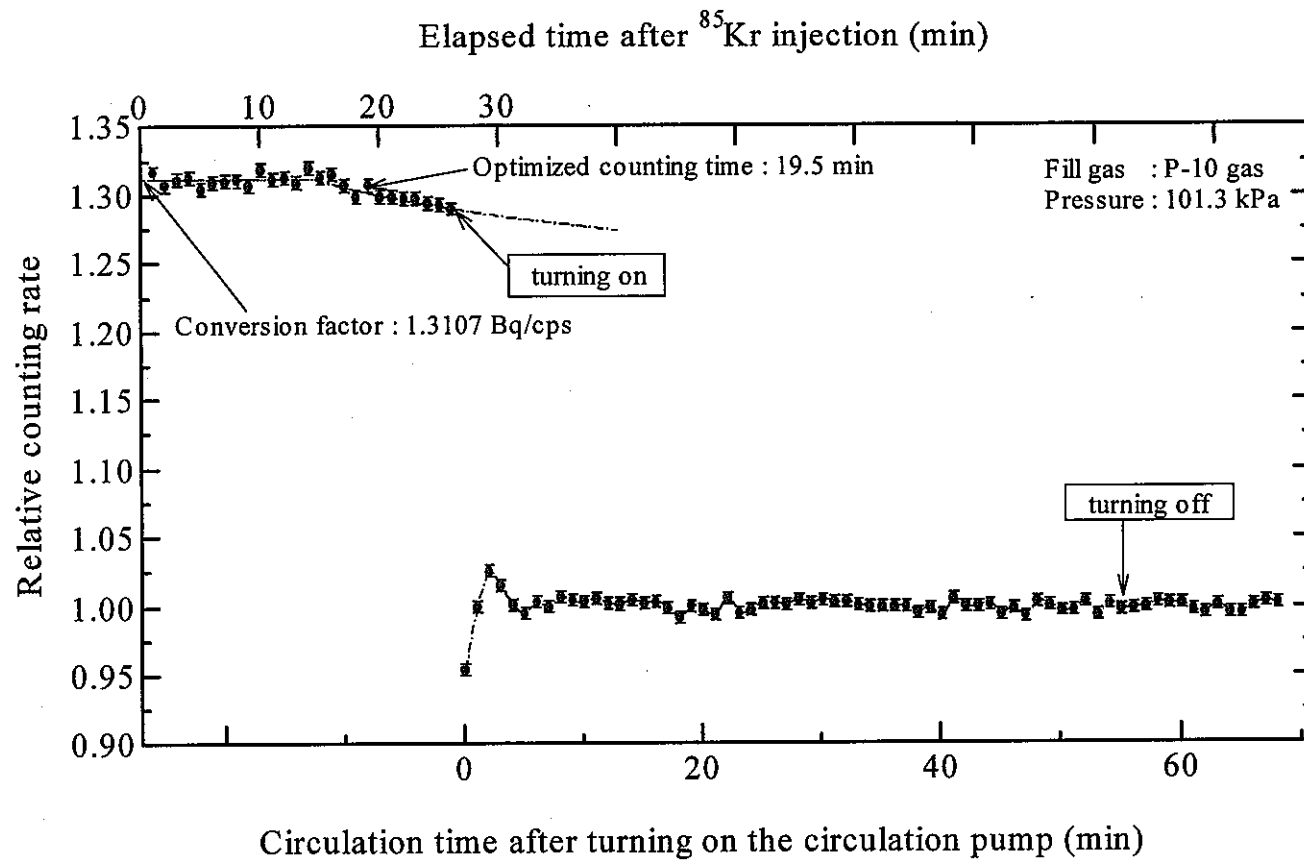
サンプリング容器を含む校正系内に、空気、P-10 ガス、メタンガスを 405.2 kPa で充填したときの試料の均一化の効果を Fig. 5-2 に示す。試料ガスには  $^{85}\text{Kr}$  を用いた。Kr ガスは他のガスに比べて拡散が遅いため、同じ濃度の試料ガスを注入しても最も試料を均一にするのに時間がかかるためである。実験は試料を注入してからすぐにポンプを動作させたときの、一分間の電離電流の平均値を読み取った。図の縦軸は、試料が均一になっていると思われる時間以後の電離電流の平均値で規格化している。Fig. 5-2 から、注入された試料はおよそ 2 分で系を一周し、二循環以降はほぼ均一に分布していることがわかる。充填ガスの種類による相違はない。したがって、校正系内に試料を均一に分布させるには、余裕を持って 10 分程度で十分である。

次にサンプリング容器を含む基準系内に 101.3 kPa の P-10 ガスを充填した場合において、注入した  $^{85}\text{Kr}$  試料ガスの均一化の効果を Fig. 5-3 に示す。実験は校正系の場合とは少し異なる。試料を計数管中央に注入してから、まず 4.1.1 で述べた相対計数率曲線を得るときと同じ測定をする（時間間隔は 60 s とした）。拡散した試料が有感体積外に出ると端効果によって計数の損失が始まる。その損失がおよそ 1% ほどになったときにポンプを動作させる。その瞬間、計数管内にあった試料が計数管外に引き出され急激に計数率が下がる。その後およそ 7 分で系を一周し、およそ 20 分程度で系内に均一に分布したと判断できる。この校正系との時間の違いは、系の幾何学的形状や、系内でのポンプの配置、配置に関連した個々の場所における圧力差などが考えられる。比例計数管の場合、圧力が少々変化した場合でもガス増倍度が変化し、それによって測定される計数率に影響を与えるかもしれないと思われたが、Fig. 5-3 においてポンプを停止 (turning off) 後も計数率に変化がないことから、この影響はないものと思われる。





**Fig. 5-2** Relative ionization current in (a) air, (b) P-10 and (c) CH<sub>4</sub> at 405.2 kPa as a function of circulation time.



**Fig.5-3** Relative counting rate as a function of elapsed time and circulation time. This plot has two parts: (1) Radioactivity measurement by DLPC method and (2) Uniformity effect of the injected radioactive gas by the circulation pump. The conversion factor can be determined by this two parts.

また基準系での一連のこの測定は、5.3で述べる換算係数の測定と同等である。Fig. 5-3の残りの部分についてはそこで述べることにする。

### 5.1.3 気体状試料のサンプリング容器

基準系と校正系とを介しているサンプリング容器は、市販の40 cm<sup>3</sup>のステンレス製サンプリングチャンパーと、システムに取り付けるためのバルブと銅管とを全て合わせてサンプリング容器となる。試料のサンプリング方法の詳細については5.2.2で述べる。いずれにせよ校正系内の放射能濃度を知るためには、サンプリング容器の容積を正確に測定する必要がある。

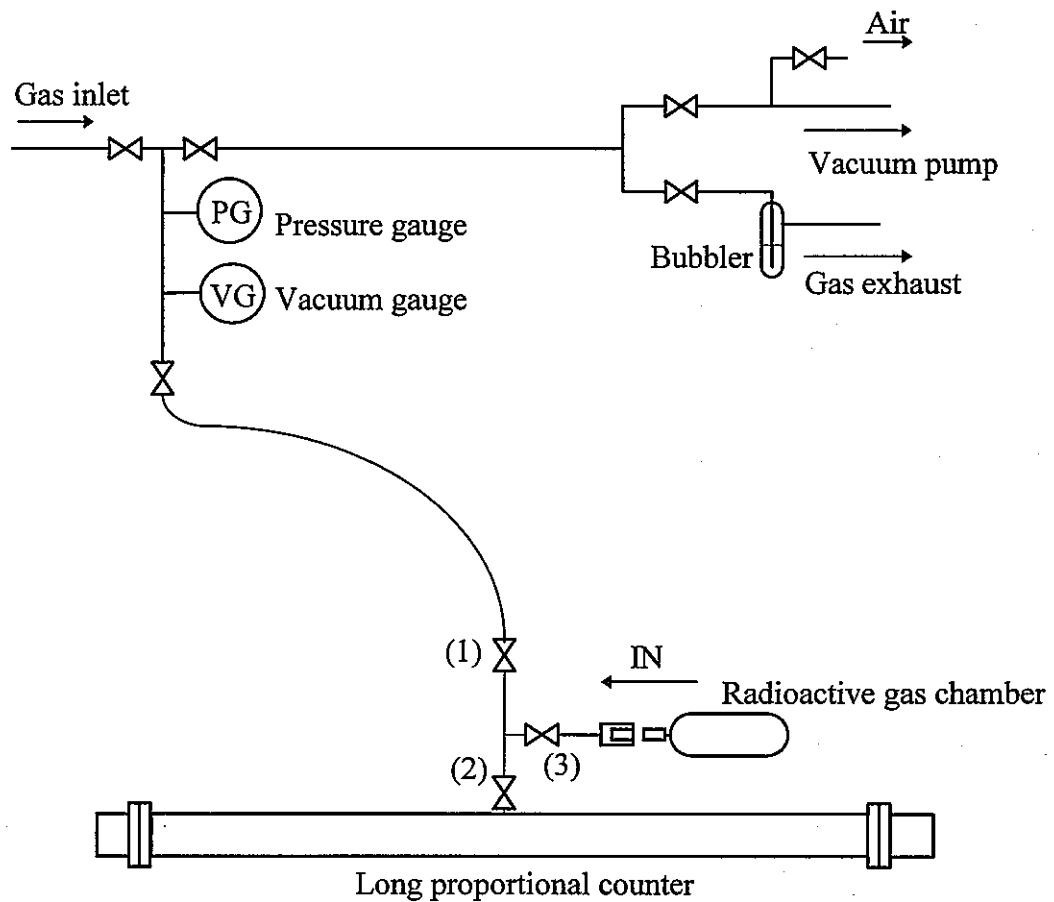
容積の測定は、容器内に満たした純水の重量を測定する方法で行った。測定時の純水の温度は17℃でそのときの密度は0.998776 g/cm<sup>3</sup>である。この条件下での測定結果は44.30±0.14 cm<sup>3</sup>であった。幾何学的形状から予想される容積はおよそ44 cm<sup>3</sup>のため妥当な結果であると思われる。

### 5.1.4 放射性ガス試料の注入装置

放射性ガス試料の注入はこれまでマイクロシリンジによって行ってきた。しかしこの方法では、注入する個人によって注入量を経験的にコントロールする必要があり、また針の挿入が浅くなったりすると、DLPC法における相対計数率曲線が実験者によって変化して正確なデータが得られない。また注入が深すぎたりすると、針の先端で放電が起こる可能性もある。そのため実験者によらない簡便な試料の注入方法を考案した。

Fig. 5-4に放射性ガス試料の注入装置を示す。図中の弁(1)(2)(3)で区切られている部分の管の内径は、試料の注入量を考えて1/16 inch (1.6mm)にしてある。特に注意するところは、弁(1)と計数管の間の管の内径である。もし試料注入後にこの部分に試料が残っていると、後から計数管内に浸みだし計数率が増加する可能性がある。したがってこの影響を最小限にするためこの部分の体積をできる限り小さくする必要がある。しかし後ろの管の内径と急激な変化があると、試料がうまく注入されないかもしれないので、この部分の管の内径は1mmとした。試料の注入方法は以下のとおりである。

- 1) 弁(2)を閉じた状態で真空引きする。



**Fig. 5-4** Block diagram of the radioactive gas injection system.

- 2) 比例計数ガスと同じガスを 101.3 kPa 導入して弁(3) を閉じサンプルチャンバーをセットする
- 3) 弁(3) を閉じた状態で真空引きし、弁(1) を閉じ弁(3) を開け、すぐに閉じる。
- 4) 弁(1) の後ろに 125 kPa の比例計数ガスを導入し、弁(1) を開け、すぐに閉じる。
- 5) 弁(4) を閉じ、(1) を開けた後に弁(2) を開け、圧力計が 101.3 kPa まで落ちたら弁(2) を閉じる。

この方法によって得られた相対計数率曲線とマイクロシリンジによって得られた相対計数率曲線との比較を Fig. 5-5 に示す。これによると試料が有感体積を出るまでの時間が異なる。これは、圧力をかけて注入したため (4-2) 式において、 $t=0$  でも試料がある程度計数管の軸方向に押し出されてしまい  $x=0$  ではないためである。これは妥当な結果である。この程度の計数時間であれば、換算係数の測定において十分な精度を得ることができる。また、注入直後に相対計数率のデータ点が上昇せず、統計的なばらつきを示していることから、弁(1) と計数管との間の管には試料が残らない。

この注入方法は簡便で、かつ個人による測定値の変化も起こさない。また放電の心配も全くないため、非常に有効な方法であると言える。

## 5.2 校正方法

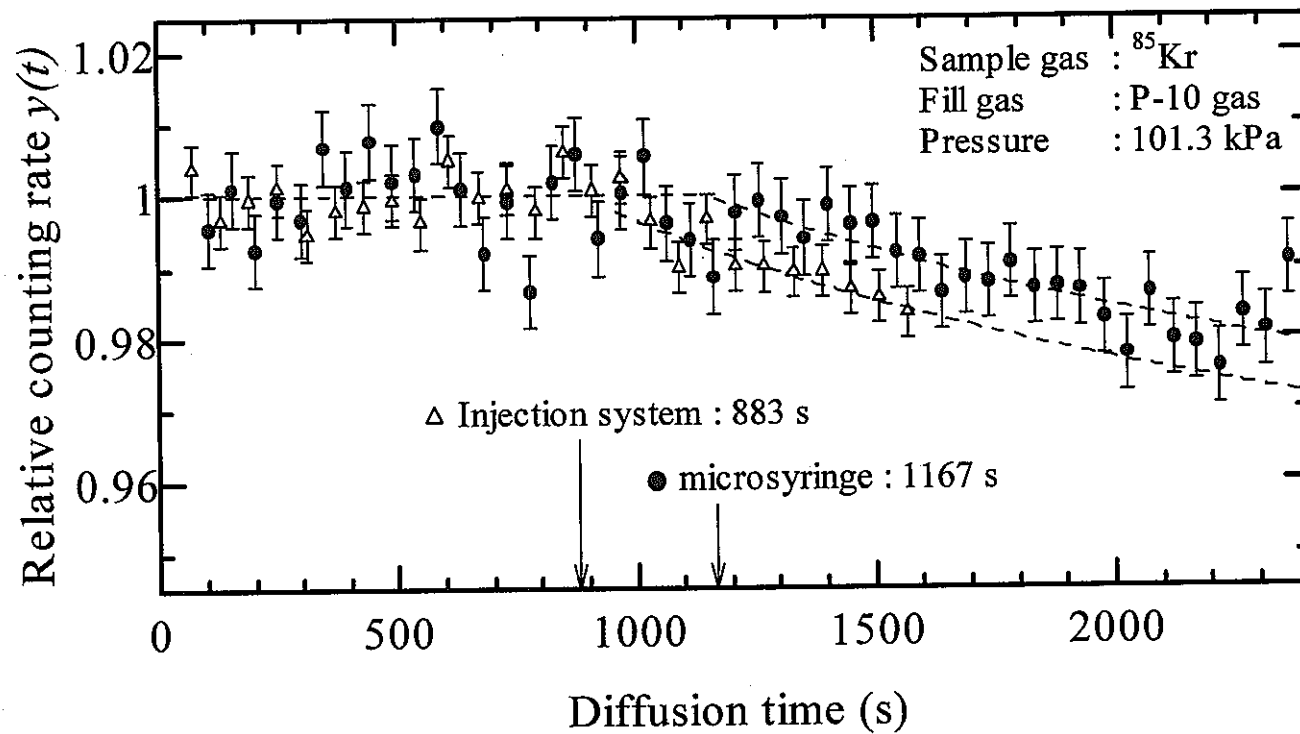
### 5.2.1 校正原理と方法

サンプリング容器を含む校正系内に均一に分布した放射性ガス試料を、サンプリング容器をそのまま基準系に移行して、放射能濃度を決定する。この場合、校正系の放射能濃度  $C$  は次の式で与えられる。

$$C = \frac{k \cdot r}{v} \quad (5-1)$$

ここで、

$r$ : 基準系の比例計数管における計数率 (cps)



**Fig.5-5** Relative counting rate as a function of diffusion time of the radioactive gas injected with a microsyringe(closed circles) and with the radioactive gas injection system(open triangles) .

$v$ : サンプリング容器の体積 ( $\text{cm}^3$ )

$k$ : 基準系の比例計数管における計数率と基準系内に均一に分布した全放射能強度との換算係数 ( $\text{Bq/cps}$ )

一方、比例計数管内の放射性ガスの放射能強度  $A$  ( $\text{Bq}$ ) は、一般に次の式で与えられる[12]。

$$A = \frac{R_0}{(1-F_{th}) \cdot (1-F_w) \cdot (1-F_e)} \quad (5-2)$$

ここで、

$R_0$ : 比例計数管における計数率 ( $\text{cps}$ )

$F_{th}$ :  $\beta$ 崩壊に基づくエネルギー分布と波形弁別レベルで決まる計数損失の割合

$F_w$ : 壁効果による計数損失の割合

$F_e$ : 端効果による計数損失の割合

長軸比例計数管内拡散法に基づいて放射能強度を決定する場合、(5-2) 式の  $(1-F_e)$  の項は 1 と置くことができる。また、時定数変化型前置増幅器を用いた場合、 $(1-F_{th}) \cdot (1-F_w)$  の項も 1 と置くことができる。

また、試料ガスを基準系内に均一に混合した後の計数率を  $r_0(\text{cps})$  とすると(5-1) 式の  $k$  は次式で与えられる。

$$k = \frac{A}{r_0} = \frac{R_0}{r_0} \quad (5-3)$$

以上から、 $k$  をあらかじめ実験的に求めておくことにより、校正系の放射能濃度を決定することができる。

実際の通気型電離箱を用いた校正は、次のような手順で行う。

- (1) 校正系に  $\text{N}_2$  ガスを約 10.13 kPa (約 1/10 atm) 導入する (サンプリング容器は校正系側)。導入する  $\text{N}_2$  ガスの量はおおよそでよいが導入した量は記録する。
- (2) 校正系に試料ガス導入したあと、系内に均一に混合する。
- (3) サンプリング容器を基準系側に移行し、基準系内に 101.3 kPa の P-10 ガスを導入する。同時に校正系内に (1) で導入した  $\text{N}_2$  ガスの 1/4 の  $\text{O}_2$  ガスを導入した後、乾燥空気を 101.3 kPa まで導入する。

- (4) 両系内の試料ガスを均一に混合する。
- (5) 基準系において計数率  $r_0$  を測定し放射能濃度を(5-1) 式により決定する。同時に通気型電離箱の出力電流を測定し、単位放射能濃度あたりの電離電流値を求める。

### 5.2.2 気体状試料のサンプリング方法

吉田らによる校正系内に均一に混合した試料を基準系に移行する方法は、校正系内に標準体積容器（容積： $V_{std}$ ）を、基準系内にガス分取容器（容積： $V_{s.c.}$ ）をそれぞれ置いて、それらを介して行われる。したがってサンプリング容器は基準系だけで独立したものであり、実際に校正系にあった放射能の濃度は(5-1) 式とは違ってくる。この方法における校正系にあった実際の放射能濃度  $C_0$  は、

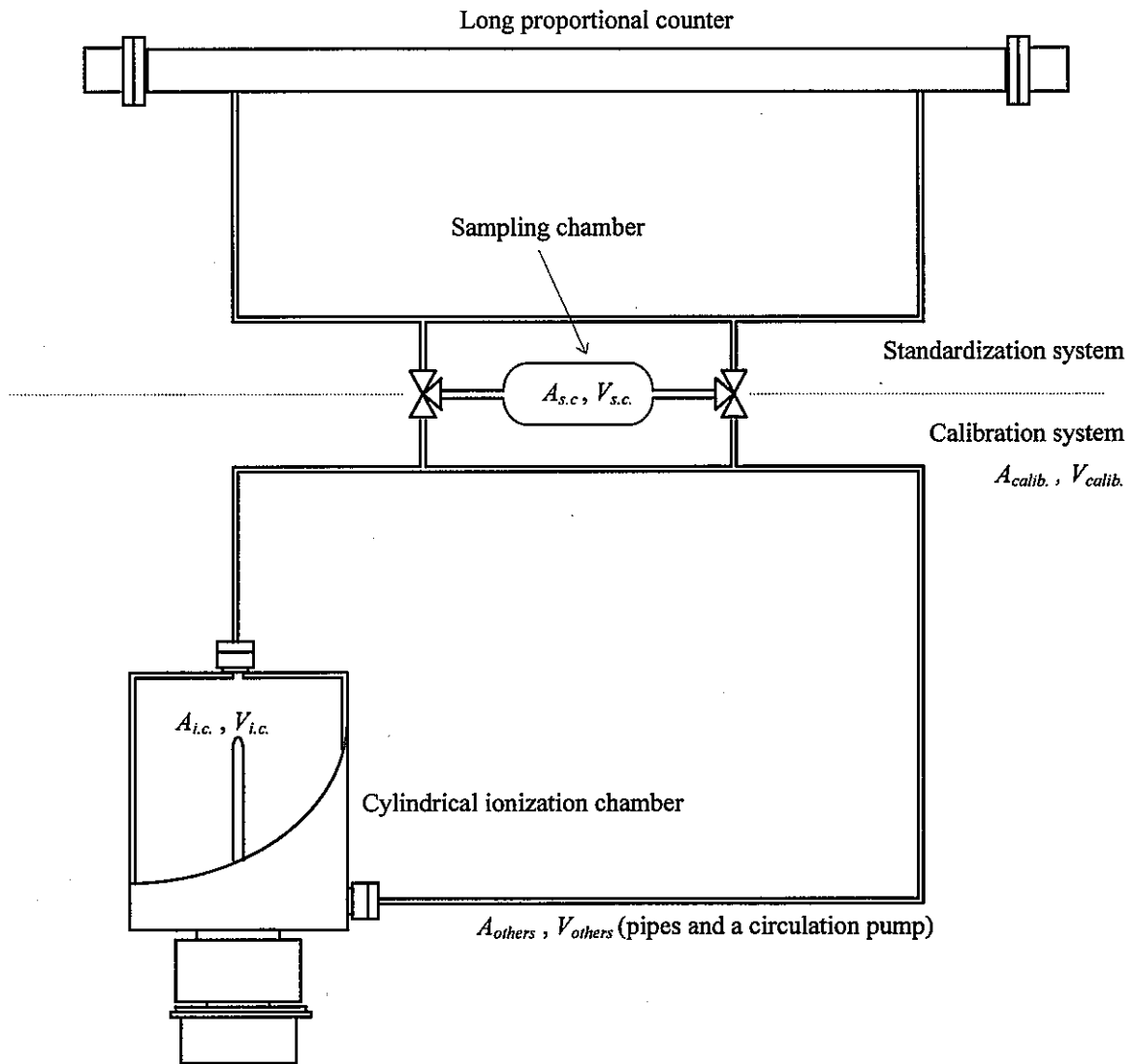
$$C_0 = \frac{V_{std} + V_{s.c.}}{V_{std}} C \quad (5-4)$$

で与えられる。標準体積容器の容積は  $1062 \text{ cm}^3$ 、サンプリング容器の容積は  $42 \text{ cm}^3$  [12]であるから、およそ 4% ほど (5-1) 式で予想される放射能濃度とは違ってくる。それぞれの容積は精度よく決定されているため補正は十分に行えるが、標準体積容器からサンプリング容器に分取する際の精度を評価しなければならない。この評価には校正系のガスループの容積も測定する必要がある。これら一連の測定を行うことは少々厄介である。

そこで、Fig. 5-6 に示すような分取方法を考えた。これは、基準系と校正系を一つのサンプリング容器で介したものである。まず校正系に試料を注入した後ポンプで均一に循環するときは、サンプリング容器の両側の三方弁を校正系側にしておく。基準系への分取は三方弁を基準系側に切り替えればよい。したがって校正系にあったそのままの放射能濃度を基準系に移行でき、分取後も校正系の放射能濃度は分取前のものと同じである。以下にそれを示す。

容積が  $V_{calb}$  の校正系に放射能強度  $A$  の試料を注入し、系内に均一に混合したあとサンプリング容器を基準系側に移行したとする。比例計数管で測定されるサンプリングされた試料の放射能強度は次式で与えられる。





**Fig. 5-6** Simplified gas loops in order to account for the new sampling method.

$$A_{s.c.} = \frac{V_{s.c.}}{V_{calib} + V_{s.c.}} A \quad (5-6)$$

移行後に校正系に残る放射能強度は、

$$A - A_{s.c.} = \frac{V_{calib}}{V_{calib} + V_{s.c.}} A \quad (5-7)$$

である。校正系内にある容積  $V_{i.c.}$  の電離箱内にある放射能強度  $A$  は、

$$\frac{V_{calib}}{V_{calib} + V_{s.c.}} A \times \frac{V_{i.c.}}{V_{calib}} = \frac{V_{i.c.}}{V_{calib} + V_{s.c.}} = \frac{V_{s.c.}}{V_{calib} + V_{s.c.}} A \times \frac{V_{i.c.}}{V_{s.c.}} \equiv A_{i.c.} \quad (5-8)$$

(5-6) 式と (5-8) 式から、次の関係が導ける。

$$A_{s.c.} \times \frac{V_{i.c.}}{V_{s.c.}} = A_{i.c.} \quad \therefore \frac{A_{s.c.}}{V_{s.c.}} = \frac{A_{i.c.}}{V_{i.c.}} \quad (5-9)$$

これは、比例計数管で測定された放射能濃度は、分取後の校正系にある電離箱内の放射能濃度に等しいことを意味する。したがってサンプリング容器の容積だけを精度よく測定しておけば、そのほかの容積を測定する必要もなく、また物理的にそのままの容積を基準系に移行できるため、分取によるむらが消去される。しかし、循環ポンプによって系内に試料を均一に混合するという条件のもとである。これについては5.1.2で十分検討した。したがってこの方法による試料ガスの校正系から基準系への移行は、ほとんど誤差なく行えると言える。

### 5.3 換算係数の評価

換算係数は以下のような手順で決定した。

- (1) P-10 ガスを 101.3 kPa で充填した比例計数管内に試料を注入して、試料が有感体積外に出ない時間内で計数を測定する。
- (2) 放射能を決定した試料を基準系内に均一に混合してから、再び比例計数管で計数を測定する。

(1) (2) で得られた計数の比が、(5-3) 式の換算係数  $k$  である。換算係数は  $^3\text{H}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  についてそれぞれ五回の測定を行い換算係数を決定した。その結果を

Table 5-1 に示す。換算係数は繰り返し測定において再現性がよい。したがって校正系から基準系に取り込まれた試料の放射能強度に精度よく移行できる。

5.1.2 で挙げた Fig.5-3 はこの換算係数をも示している。相対計数率曲線は放射能強度を示し、ポンプの試料の均一化の効果は系内に均一に混合した後に測定する計数率を示す。この図は均一になったときの計数で全て規格化してあるため、相対計数率曲線において試料がまだ有感体積内にあるときの値が、換算係数となっている。

#### 5.4 通気型電離箱の校正

校正方法については 5.2.1 で述べたとおりである。Table 5-2 に 1.5 l 通気型電離箱について測定した内圧 101.3 kPa の乾燥空気中における電離電流と、放射能濃度との濃度換算係数を示す。本測定における濃度換算係数の不確かさは、系統誤差も含めて 99.7% の信頼率で  $\pm 2\%$  以内に収まった。比較のため、同一形式の電離箱について得られた他の校正結果を示す[12,22]。吉田らの方法の不確かさは 99.7% の信頼率で  $\pm 4\%$ 、長さ補償比例計数管法を用いて基準ガスを与える NSRA(Nuclear Safety Research Association)の方法の不確かさは 99.7% の信頼率で  $\pm 10\%$  でそれぞれ校正されている。また光子・電子輸送モンテカルロシミュレーションコード EGS4/PRESTA[23] を用いた計算による校正結果も示す[24]。それぞれの校正方法において、不確かさの範囲で極めてよい一致を示していることがわかる。したがって、これまで述べてきたいくつかの新しい方法の導入は妥当なものであり、その結果さらに高い精度でガスモニタの校正が行えるようになったと結論づけることができるであろう。

**Table 5-1** Results of  $k$  measurements for  $^3\text{H}$  and  $^{85}\text{Kr}$ .

Nucilde	Maximum $\beta$ - ray energy [keV]	Average $\beta$ - ray energy [keV]	$k$ [Bq/cps]
$^3\text{H}$	18.6	5.69	$1.3235 \pm 0.0020$
$^{85}\text{Kr}$	687	251	$1.3107 \pm 0.0016$

**Table 5-2** Conversion factors in air at 101.3 kPa for 1.5l ionization chamber.

Nucilde	Conversion factor [ Bqcm <sup>-3</sup> /pA ]			
	Present work	Yoshida et al. <sup>[12]</sup>	NSRA <sup>[22]</sup>	Torii <sup>[24]</sup> (EGS4/PRESTA)
$^3\text{H}$	$3.96 \times 10^{-2}$	$3.98 \times 10^{-2}$	—	$4.02 \times 10^{-2}$
$^{85}\text{Kr}$	$2.22 \times 10^{-1}$	$2.23 \times 10^{-1}$	$2.26 \times 10^{-1}$	$2.18 \times 10^{-1}$

## 6. まとめ

気体状放射性試料の放射能強度絶対測定法として開発されている長軸比例計数管内拡散法を実用化するために、(1) 微小パルスも計数できること、もしくはディスクリミネーションレベル以下の壁効果と低エネルギー損失の影響をうまく補正できること、(2) 波高の高いパルスを比例増幅器のダイナミックレンジに収めること、(3) 分解時間が短いこと、(4) 装置がシンプルであり汎用性があることに着目して、これらを解決できるよう前置増幅器に二種類の改良を施した。その中で時定数変化型前置増幅器は、上記の問題点をカバーできることを見い出した。この前置増幅器の改良を通して得られた成果を要約すると以下のようになる。

(1) 前置増幅器の負荷抵抗をダイオードに置き換える。バイアス電圧が大きくなるとその抵抗値が小さくなる特性を利用して時定数を変化させ、比例計数管で発生する大きなパルスに対しては、その波高を抑制して、かつ迅速にベースラインに回復させることに成功した。これによって、分解時間は通常の場合よりも 1/7 にまで低減できた。

(2) 高い印加電圧で動作させるためガス増倍度が大きく、そのため微小なパルスも計数でき、かつ高い波高のパルスも比例増幅器を飽和させることなく計数できるようになった。またそのような高い印加電圧ではアフターパルスが混在することを明らかにし、それらを弁別する際、同時に壁効果や低エネルギー損失の影響を補正できるようなディスクリミネーションレベルの設定法も確立した。この設定によって放射能強度の絶対測定に与える系統的な誤差は約 0.2% になった。

(3) 高い気圧では、アフターパルスが少なくなるために補正の少ない非常に理想的なパルス波高分布が得られることを見い出した。

(4) 通常の前置増幅器の負荷抵抗をダイオードに置き換えただけの非常にシンプルな回路であり、シンチレーション計数管への適用など、その汎用性が期待できる。

しかし、これに関連して次の検討が必要である。

(イ) 種々の割合でメタンを含むPRガスを用いて、種々の圧力での詳しいデータの取得が必要である。

(ロ) ダイオードが温度に敏感なため、温度変化によるパルス波高分布への影響を調べる必要がある。

(ハ) その汎用性を特徴にするならば、液体シンチレーション計数管での利用を試みることを望ましい。

このようにあともう少し検討しなければならない点も残った。

次に、長軸比例計数管内拡散法を用いた放射性ガスモニタの校正に関するまとめは次の通りである。基本的には吉田らによってその方法がほぼ確立されているが、さらに高い精度を得るために、

(1) 基準系に空気が入り込まない方法

(2) 校正系から基準系への試料ガスの移行に伴う誤差を消去する方法について検討し、どちらの方法もほぼ確立した。また同時に、

(3) 簡便な放射性試料ガスの注入装置

を開発し、マイクロシリンジを用いた場合に起こる種々の問題点を解決した。

本研究において新しく確立した方法を用いて通気型電離箱の校正を行った結果、得られる濃度換算係数の不確かさは、系統誤差も含めて 99.7 % の信頼率で  $\pm 1.5\%$  以内に収まった。またその値は他の測定結果と極めてよい一致を示した。これによって、十分に小さい測定誤差で、しかも簡便に放射性ガスモニタの校正が行えるようになった。

## 引用文献

- [1] NCRP Report No.58 "A Handbook of Radioactivity Measurements Procedures" (NCRP, 1985) 21-23.
- [2] C. A. Colmenares, Nucl. Instrum. Meth. **114** (1974) 269.
- [3] R. A. Jalbert and R. D. Hiebert, Nucl. Instrum. Meth. **96** (1971) 61.
- [4] A. Spagnol and B. Denecke, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **15** (1963) 195.
- [5] S. B. Garfinkel, W. B. Mann, F. J. Schima and M. P. Unterweger, Nucl. Instrum. Meth. **112** (1973) 59.
- [6] J. Kits, L. Kokta and I. Bucina, "Standardization of Radionuclides" (IAEA, Vienna, 1976) 267-275.
- [7] M. Yoshida, T. Yamamoto, Y. Wu, T. Aratani, A. Uritani and C. Mori, Nucl. Instrum. Meth. **A330** (1993) 158.
- [8] C. Mori, Y. Fujii, and T. Watanabe, Appl. Radiat. Isot., Int. J. Radiat. Instrum. **A38** (1987) 371 and 379.
- [9] C. Mori, T. Aratani, T. Watanabe and M. Yoshida, Appl. Radiat. Isot., Int. J. Radiat. Instrum. **A38** (1987) 851.
- [10] 鈴木龍晴, 名古屋大学工学部原子核工学科卒業論文 (1989).
- [11] C. Mori, T. Suzuki, A. Uritani, T. Yamamoto, K. Yanagida, T. Watanabe and M. Yoshida, Nucl. Instrum. Meth. **A299** (1990) 128.
- [12] M. Yoshida, Y. Wu, Y. Ohi and T. Chida, Radioisotopes **42** (1993) 452.
- [13] Y. Wu, C. Mori, A. Uritani, K. Yanagida, H. Miyahara, T. Aoyama and M. Yoshida, Nucl. Instrum. Meth. **A343** (1994) 539.
- [14] 山本敏生, 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻課程修士論文 (1992).
- [15] P. J. Campion, Nucl. Instrum. Meth. **112** (1973) 75.
- [16] 時田元昭, 1972年版 最新ダイオード規格表, (CQ出版社, 1972) 100.

- [17] G. F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", (John Wiley & Sons, 1989) 180-183.
- [18] G. F. Knoll, *ibid.* 185-186.
- [19] G. F. Knoll, *ibid.* 96-97.
- [20] 吳 幼陽, 名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻課程博士論文 (1994).
- [21] Y. Wu, C. Mori, T. Yamamoto, K. Yanagida, A. Uritani, H. Miyahara, T. Aoyama and M. Yoshida, *Radioisotopes* **42** (1993) 209.
- [22] Nuclear Safety Research Association (NSRA), "Study on the Measurement of Environmental Radiation and Radioactivity", (1980) 125.
- [23] W. R. Nelson, H. Hirayama. and D. W. O. Rogers, SLAC Report-256 (1985).
- [24] T. Torii, *Nucl. Instrum. Meth.* **A356** (1995) 255.