

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。

2001. 6. -6

[技術情報室]

核燃料物質使用施設等における 空気汚染測定法に係る基礎試験

Basic test for the quick measurement of the
contaminants in air at nuclear fuel facilities

1980年4月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

この資料は、社内における検討、周知を目的

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)
2001



TN841-80-28

1980年4月24日

核燃料物質使用施設等における空気汚 染測定法に係る基礎試験

平 山 昭 生 *
江 花 稔 *
石 田 順 一 郎 *
黒 澤 龍 平 **

期 間 1979年6月～1979年3月

緒 言 核燃料物質取扱施設で有意の空気汚染が発生した場合にその濃度評価を迅速に行う必要がある。この際、天然に存在するラドン、トロン及びその娘核種が迅速な測定を妨げるためこれら天然の放射性物質を除去をして捕集できるサンプリング系が必要である。迅速測定が可能なサンプリング系を開発し、その性能評価試験を早稲田大学工学研究所に委託した。

要 旨 上記目的を遂行するために、核燃料物質とラドン等娘核種の慣性パラメータの差を利用した分離捕集器を試作し、試験、検討した。試作器を用い70～90%のラドン等娘核種を除去できることを明らかにするとともに、管理区域内のラドン等娘核種の濃度ならびに粒度分布を測定した結果を報告する。

* 安全管理部放射線管理第一課

** 早稲田大学工学研究所

目 次

1. 目 的	1
2. 空気汚染の評価	3
2.1 通常の評価法	3
2.2 妨害となる核種とその性質	5
2.3 妨害核種の除去	8
3. サンプリング系の検討	9
3.1 サンプリング方式の選択	9
3.2 ラドン・トロン娘核種の粒径分布	10
3.3 汚染物質の粒径分布	10
4. サンプリングシステムの設計	11
4.1 システムのレイアウト	11
4.2 分離粒径の決定	12
4.3 予備試験	13
4.4 多孔型粒径分離装置の設計	14
4.5 1次粒子除去装置	15
5. サンプリングシステムの性能	17
5.1 性能試験	18
5.2 捕集試料の α スペクトル	18
5.3 弁別能力の改善	18
6. 結 論	20
Table I. ~ Table III.	21 ~ 24
Fig. 1 ~ Fig. 20	25 ~ 44

1. 目 的

大気中には地殻や建築物の構造体などから供給されたラドンやトロンおよびその娘核種が相当量存在する。これ等のうち娘核種はいったんは汚材で汚過できるが親元素であるラドンやトロンが不活性な気体で全く除去できず壊変によって再び娘核種が生成されるため、それ等の完全な除去は困難である。従って、すぐれた換気系を有する施設でも施設中の空気中には相当量のラドンやトロンの娘核種が見られる。これ等の娘核種は、空気汚染を監視するため設置されたダスト・モニターに捕えられ α 線もしくは β 線、 γ 線などを放出し、モニターが対象としている放射性核種である汚染物質の測定に著しい妨害を与えている。このような妨害を除くため、放射線的にはエネルギーの差や半減期の違いが利用されている。ダストモニターは流量をできるだけ大きくとり感度を上げる必要から、空気抵抗の少ないガラスセイ系の汚紙を使用することが多く、その結果、捕集された放射性物質は汚紙の内部深くまで分布する。このような核種の放出する α 線を測定しようとする、汚紙内でエネルギー吸収を受けるため、エネルギー分解能が著しく低下し、目的核種とラドンやトロン娘核種をエネルギー的に完全に分別することが困難となる。一方、妨害核種と目的核種とを半減期の差を利用して分別する手法も広く知られているが、妨害核種であるラドン娘核種の実効的な半減期は30分前後であり、目的核種の半減期よりも著しく短いと云え、有効に分別するには($\frac{1}{10}$ にする)少くとも1時間半以上の時間を要し、緊急の濃度評価に不向きである。このようなことから妨害核種を除去するには放射線的な特徴と異なった他の性質を適用しなければならない。しかもこの方法は空気中の目的核種の濃度評価の感度を落さず、且つ又、できれば目的核種を採取する時点で妨害核種と有効に分離し得ることが望ましい。濃度評価上許容し得る感度低下量を理論的に導いた訳ではないが10%以下ならば常識的に一応許容し得るし、また妨害核種の除去量を90%以上にすることができれば一応の効果があると考えることができよう。勿論これ等の数値は必ずしも確定的なものでなく、測定環境の実状によって適当な値が選択されねばならない。

ラドンの娘核種と汚染物質である目的核種の粒子は生成過程を異にするため、物理的性状が異なる。前者は環境大気中に浮遊する微粒子に付着することにより成長し、後者は例えば気体からの凝結、固体の破砕等によって生成する。これ等粒子の粒径は前者の場合、環境中の微粒子の粒径分布に依存するが、後者の場合は生成のメカニズムに依存する。一方、もう一つ見逃すことのできぬ性質がある。若し、汚染物質が環境大気中に長時間放置され、一般のエアロゾルとしての性質を有するようになれば、後者の粒子の放射能と質量とは比例的関係にあることが予想され、従って放射能は粒径の3乗に比

例する筈である。^(脚注1)しかし前者の場合、娘核種の粒子に対する付着速度は粒子の表面積と比例するため、放射能は粒径の2乗に比例することが予想される。このため粒径分布にも依存するものの、適当な粒径で分離すると粒径の大きい方に目的核種(汚染物)が、小さい方に妨害核種(娘核種)が集まる可能性が考えられる。

ラドンの娘核種が付着した粒子は電荷を持つ場合もあるが、すべての粒子が電荷を持っているのではなく、また荷電量も少いため、電荷で分離することは難しい。

以上のような背景のもとに、従来の方法より応答性の良い空気汚染測定法開発の可能性について論じ、且つ実証するため以下の試験を行った。

(脚注1) エアゾルは何等かの機構で発生し、重力沈降、慣性衝突、拡散付着、凝集などの過程を経て、その時の条件に合致した粒度分布になるものと考えられる。汚染物質も同様に長時間前記の過程を経れば全く同様な粒度分布となる。又、逆に、その環境に投入された汚染物質の濃度が高ければ娘核種の粒径分布は新しい投入物質のそれに対応するようになる。従って、一般論としては或程度時間が経過すれば、ラドンの娘核種と汚染物を含めたエアロゾルの両者の粒度分布は、一定の関係をもつようになると考えてもよく、その場合には本文の議論は成り立つ。しかし、汚染物質を迅速に検出する立場から考えれば両者は全く独立した粒度分布を持つと云わねばならない。その場合は汚染物の発生機構によって異なり、破碎とか溶液からの離脱などの場合は、エアロゾルの粒径よりは大きく、また気体からの凝結などによれば小さくなる。前者の場合ならば同一結論となるが、後者の場合は必ずしも同じ結論にはならない。

2. 空気汚染の評価

2.1 通常の評価法

空気汚染は通常適当な濾紙によって捕集し、捕集後もしくは捕集しながら汚染物質の放射能強度を測定し採取した空気量と共に汚染物質濃度を求めている。濃度評価の感度は採取流量と放射能検出器の検出効率に依存する。高流量を得るためにはガラスせんいフィルターのような濾紙が使用される。この濾紙は小さい粒子に対しては拡散沈着によって、また大きな粒子に対しては衝突付着によって粒子を捕集する。濾材を構成する素子が比較的粗いため、何れのプロセスによっても粒子は濾紙の深部にまで侵入する。従って透過力の弱い α 線やエネルギーの低い β 線は濾材を通過する間にエネルギー吸収を受け、エネルギー測定においてはエネルギー分解能を劣化させ、またエネルギー依存性のない検出器に対しては検出効率を低下させる。このような濾紙も多量の浮遊粒子を捕集した後は、捕集した粒子が粗である濾材の間を充填し、濾紙の表面に近い部分で粒子捕集が行われるようになるため、エネルギー分解能や検出効率はいくらか良好になる。

何れにしても、捕集された汚染物質から出た放射線は、捕集された位置が表面から深ければ深い程エネルギー分解能や検出効率が低下し、汚染物質の同定や汚染物質濃度の評価を困難にしている。新しい HE-40 濾紙および多少使用し目づまりを起しかけた同濾紙によってラドンの娘核種を捕集したときの α スペクトラムを Fig. 1, Fig. 2 に示す。Fig. 1 は真空中で Fig. 2 は大気圧中で測定した α スペクトラムで、このときの検出器は 2.0 cm ϕ のシリコン半導体検出器（以下 SSD）、捕集有効面は 4.0 cm ϕ 、検出部—濾紙表面の距離は 0.6 cm である。真空中ではピークのエネルギー 7.68 MeV より 0.58 MeV 離ればピークの高さは $\frac{1}{10}$ となるが、空気中では 6.92 MeV までは比較的急激に下るがピークの $\frac{1}{3}$ にまで下るだけで、それより低エネルギー側では殆んど低下しない。この平坦部上に着目核種のピークがある場合に両者を識別するためには、平坦部の計数値の $\frac{1}{3}$ 程度の差違があれば可能であると考えられ、結局、その限界となる放射能強度はラドンの娘核種の放射能強度の $\frac{1}{3} \times \frac{1}{3} = \frac{1}{9}$ 程度と言える。^(脚注2)（例えば RaA : RaB : RaC = 1.0 : 0.6 : 0.4 で RaA 濃度が $3 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 、流量が 50 ℓ/min 、検出効率が 15% ならば RaC' の計数率は 19.5 cpm となる。）従って、^(脚注3) 約 14.5 dpm 程度まで検出できることとなる。

（脚注2） 比較すべき2つのピークはエネルギーは異なるもののピークの形状は類似していると仮定する。その場合はピーク面積ではなくて類似した形

状の部分でまず比較する。従って、妨害ピークの平坦部と測定ピークの高さが同じならば、測定ピークの全面積と妨害ピークの全面積との比は $\frac{1}{3}$ となる。ところで、平坦ピークの上に測定されるべきピークが重畳するのだから、そこにピークがあると認識するには合成ピークから平坦ピークを差し引いたときの相対誤差を考えればよい。妨害ピークに比して測定ピークは小さいので、妨害ピークの計数を N とすれば差し引きをしたときの誤差は $\sqrt{2N}$ となる。 N を20程度とすれば $\sqrt{20N}$ は6.3、相対誤差は0.32となる。従って、 $\frac{1}{3} \times \frac{1}{3} = \frac{1}{9}$ 程度であれば検出できると考えられる。

(脚注3) 長時間のサンプリングでは別添IIの(2), (3), (4)式は次のようになる。

$$I'_{AC} = C_A \lambda_B \lambda_C \left[\frac{1 - \exp(-\lambda_A \tau m)}{\lambda_A^2 (\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} + \frac{1 - \exp(-\lambda_B \tau m)}{\lambda_B^2 (\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{1 - \exp(-\lambda_C \tau m)}{\lambda_C^2 (\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \right]$$

$$I'_{BC} = C_B \lambda_C \left[\frac{1 - \exp(-\lambda_B \tau m)}{\lambda_B^2 (\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{1 - \exp(-\lambda_C \tau m)}{\lambda_C^2 (\lambda_B - \lambda_C)} \right]$$

$$I'_{CC} = C_C \frac{1 - \exp(-\lambda_C \tau m)}{\lambda_C^2}$$

従って、 RaC' の放射能強度 A_C は $A_C = N(I'_{AC} + I'_{BC} + I'_{CC})$ となり、 RaA 濃度 $3 \times 10^{-11} \mu Ci/cm^3$ 、 $RaA : RaB : RaC = 1.0 : 0.6 : 0.4$ 、流量率 50 l/min を代入して、 $A_C = 50 \times 10^3 \times (1.32 \times 10^{-10} + 6.97 \times 10^{-10} + 3.35 \times 10^{-10}) = 5.82 \times 10^{-5} (\mu Ci)$ が求まる。認知できる放射能強度をラドンの娘核種の放射能強度の $\frac{1}{9}$ とすれば $(5.82 \times 10^{-5} \times 2.22 \times 10^6) / 9 = 144 (\text{dpm})$ となる。

2.2 妨害となる核種とその性質

妨害となる核種はラドンの娘核種およびトロン（トロン）の娘核種 Table I である。一般環境中に見られるラドンやトロン（トロン）の娘核種は建物の構造材や地殻から放出されたラドンやトロン（トロン）から生成する。しかし、一般には地殻から放出される量が多いと考えられている。これ等のラドンやトロン（トロン）から生成した娘核種は、放出後の時間経過に従って増加し放射平衡に到達する。例えば、地表から放出された場合は、地表からの高度が増すに従って、地表付近の渦流拡散によって混合され平衡に近づく。平衡に達する高度は渦流拡散係数 D ($\sim 5 \times 10^4$) によって異なるが Jacobi 等の計算した $\frac{RaC}{RaA}$ の値は A が $0.01g/cm \cdot sec$ ($A = \rho \times D$, ρ : 空気の密度) の時は、高度 $1m$ で 0.37 , 約 $1.5m$ で 0.5 , $10m$ で 1.0 になるが A が 0.1 ならば、 $1m$ で 0.19 , 約 $5m$ で 0.5 , $30m$ で 1.0 になると云う。さらに A が 10 ならば、 $1m$ で 0.1 , 約 $12m$ で 0.5 , $100m$ で 1.0 となる。一方、平衡比は、測定されるべき環境の空気の浄化法によって異なる。入気中の娘核種の一部は入気側に設けられたフィルターによって除去されるので、測定環境の換気の平均的滞留時間によって平衡比がきまる。もし、入気側フィルターによってラドン娘核種が完全に除去されれば、平衡比は換気率のみに依存する。経過後の時間経過に対するラドンの娘核種の存在比の変化を Fig. 3 に示す。RaA にしても ThA にしてもこれ等が形成された時は原子であって殆んどが正の電荷を持っている（小イオン状態）と考えられている。これ等の電荷は他の小イオン（負電荷）と結合して失われてしまう。このような RaA や ThA の小イオンは、水や酸素などと分子のクラスターを作っていると考えられている。このような粒子を一次粒子と呼ぶが、一次粒子は、空気中のエアロゾル粒子と結合して二次粒子と呼ばれる大型の粒子を形成する。一次粒子の拡散係数は初め Chamberlain 等によって求められ $0.054 cm^2/sec$ とされた。しかし、これより多少大きいのではないかと云う説もある。この拡散係数は直径 10 \AA の粒子、即ち、空気分子の 2 倍の大きさの粒子のそれに相当する。このことは、これ等が単一の原子ではなく分子のクラスターであることを示している。

エアロゾル粒子表面に対する一次粒子の沈着過程をエアロゾルのガス吸着と類似の現象として扱えると仮定すれば、一次粒子のエアロゾル表面への拡散方程式は次式で表わせる。

$$\frac{\partial n}{\partial t} = (\text{grad}n, v) + d \nabla^2 n \dots\dots\dots (1)$$

n : 粒子数濃度

v : エアロゾルの速度

d : 粒子の拡散係数

上式右辺は速度輸送項，拡散輸送項を示す。これを円柱座標 ($x = \rho \cos \theta$, $y = \rho \sin \theta$, $z = z$) で表わすと，

$$\frac{\partial n}{\partial t} = d \left[\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial n}{\partial \rho} \right) + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 n}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial z^2} \right] \dots\dots\dots (2)$$

ここで，濃度勾配が等方的であるとすれば，

$$\frac{\partial n}{\partial t} = d \left[\frac{1}{\rho} \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} (\rho n) \right] = d \left[\frac{1}{\rho^2} \left\{ \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho^2 \frac{\partial n}{\partial \rho} \right) \right\} \right] \dots\dots\dots (3)$$

一次粒子の輸送，吸着が定常状態で， $\rho > r + \Delta$ とすれば，

$$\frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho^2 \frac{\partial n}{\partial \rho} \right) = 0 \dots\dots\dots (4)$$

- n : 一次粒子の濃度
- r : エアロゾル粒子の半径
- Δ : 微小厚さ

n_∞ を ρ が充分大きいとした場合の濃度， n_ρ を $\rho = r + \Delta$ の位置での濃度とすれば，(4)式の解は，

$$n = n_\infty - (n_\infty - n_\rho) \frac{r + \Delta}{\rho} \dots\dots\dots (5)$$

したがって， $\rho = r + \Delta$ の仮想の球表面に単位時間あたりに入る一次粒子の量 $\Phi_{r+\Delta}$ は，

$$\begin{aligned} \Phi_{r+\Delta} &= 4\pi (r + \Delta)^2 d \left(\frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_{\rho=r+\Delta} \\ &= 4\pi (r + \Delta) d (n_\infty - n_\rho) \dots\dots\dots (6) \end{aligned}$$

一方，エアロゾル表面付近の微小厚層については，エアロゾル表面へのガス分子の単位時間あたりの衝突数は分子運動論から，

$$\Phi_r = 4\pi r^2 \frac{\bar{v}}{4} n_\rho \dots\dots\dots (7)$$

\bar{v} : ガス分子の平均熱運動速度

ここで連続の条件から、 $\phi_{r+\Delta} = \phi_r$ とおけば、

$$n_r = \frac{n_\infty}{1 + \frac{r^2 \bar{v}}{4(r+\Delta)d}} \dots\dots\dots (8)$$

したがって、一次粒子のエアロゾル表面への単位時間あたりの衝突数 ϕ は次式で表わせる。

$$\phi = \pi r^2 \bar{v} n_\infty \frac{1}{1 + \frac{r^2 \bar{v}}{4(r+\Delta)d}} = \pi r^2 \bar{v} n \frac{r+\ell}{r+\ell + \frac{r^2 \bar{v}}{4d}} \dots\dots\dots (9)$$

ただし、ここで、 $n_\infty = n$ 、 $\Delta = \ell$ とおいている。 ℓ は気体の平均自由行程である。半径 r と $r + dr$ との間にある一次粒子数濃度は $n dr$ とすれば単位体積単位時間ごとの衝突数 $(\frac{dn}{dt})_r$ は、

$$(\frac{dn}{dt})_r = \phi n_r dr \dots\dots\dots (10)$$

とあらわせる。

今もし、娘核種 1 原子が 10 ヶの空気分子とクラスターを作ると考えると $\bar{v} = 1.1 \times 10^4 \text{cm/sec}$ 、 $\ell \approx 1.5 \times 10^{-6} \text{cm}$ となる。この場合 $r > 1.8 \mu$ の時は、(9)、(10)式は(6)式のような形で、また $r < 0.028 \mu$ の時は、

$$(\frac{dn}{dt})_r = \pi r^2 \bar{v} n_r dr \dots\dots\dots (11)$$

となり、気体運動の衝突から推定される式となる。また $r > 0.1 \mu$ ($r \gg \ell$) に対し

(3)式から $(\frac{dn}{dt})_r$ は $r^2 / (1 + r\bar{v}/4d)$ に比例する。

以上から、これ等娘核種の粒径分布は、エアロゾル粒子の粒径分布より大きな方にずれ傾斜も大粒径側にゆるく、粒径の 2 乗の分布に近くなることが予想される。

また、一次粒子の存在比は、エアロゾル粒子の濃度に依存するが、通常的环境ならば平衡値の10%(RaAの場合)前後で、もし十分にエアロゾルが除去されているような環境ならば30%以上に達することが有することが実験的に求められている。

2.3 妨害核種の除去

前項からもわかるように、娘核種の粒径は2つのグループに分かれ、その一つは一次粒子と呼ばれる10A位の極微粒子であり、もう一つはエアロゾル粒子と比較し得る程の大きさで人工的にコントロールされている環境ならば0.1~0.2 μm 程度の粒径をもつグループである。

これに対し、測定対象になる汚染物質、例えば六フッ化ウランのエアロゾルの場合、放射能又は質量基準で(1977-12-8石田)50%径が1.2~1.5 μm σ が1.5~1.7と云う測定値からわかるように、かなり大型の粒子である。従って、この二種類の粒子を粒径によって分離することができれば、相当鋭く分け得ることになる。分離する粒径をどこにとるかは実験的に求めなければならないが、測定対象のみに着目すれば、少くとも90%以上の捕集率、できれば95%以上が望ましい。それで、先のデータ(1977-12-8石田)より、90%の点を求めると0.68~0.75 μm 、95%で0.58~0.65 μm となり、およそ0.6 μm 以上の粒子が捕集できれば一応空気汚染測定装置としての能力をそれ程低下させぬことが期待される。

測定対象のみを選択的に捕集して測定するか妨害物を除去してから通常の方法で測定対象を捕集して測定するかの二つの方法が考えられる。何れも全く同じ効果を有するが、従来の検出方法をそのまま踏襲できる点から云えば後者の方が望ましい。しかしながら、後述のように濾紙法が必ずしもすぐれているとは限らないので、粒径による分離法や測定法などを総合的に判断して除去方式を決めることにする。

3. サンプリング系の検討

3.1 サンプリング方式の選択

粒径分離が可能である粒子捕集法として、慣性力を利用した方法が最も一般的である。その他、種々の濾紙を利用したり、熱析力を利用したり、強制的に荷電し電的に捕集する方法がある。濾紙の場合は、その濾紙の捕集能力が粒径によって異なるような濾紙を使用するが、分離は不完全であるし、一般粉塵による目づまりの影響もあって不適當である。熱析力による方法は大流量がとれず、また粒径にそれ程鋭敏ではない。強制荷電させた粒子を mobility analyzer で分離する方法は同一粒径でも荷電される電荷量が異なるため、粒径分布は求められても、粒径によって分離することは困難のように思われる。

これ等の他に、拡散沈着や重力沈降を利用する分離法がある。前者としては、diffusion batteryが、後者としては多層型の分離器が使用されている。例えば矩形型（巾： $2h$ ，高さ： $2b$ ，長さ： ℓ ， $2h \ll 2b \ll \ell$ ）の断面を有する多層型の diffusion battery に入った粒子 N_0 と沈着しないで通過する数 N_ℓ との比は、

$$\frac{N_\ell}{N_0} = 0.9149e^{-7.541\mu} + 0.0592e^{-89.3\mu} + 0.0258e^{-607\mu} + \dots \quad (12)$$

となる。ここで $\mu = bD\ell/hQ$ ， Q は容積で表した流量， D は拡散係数である。一方、粒子半径 rcm と拡散係数 Dcm^2/sec との関係は、

$$D = \frac{RT}{N} \frac{1}{6\pi r \eta} \left[1 + \{ 1.25 + 0.44 \exp(-109r/\ell) \} \frac{\ell}{r} \right] \quad (13)$$

となる。ここで R は気体定数， T は絶対温度， N はアボガドロ数， η は流体（空気）の粘性係数， ℓ は空気分子の平均自由行程である。diffusion battery は極めて小さい粒子を除去するには有効であるが、上式からもわかる通り $0.01\mu m$ 以上の粒径の粒子を除去するには、分離曲線が鈍く余り良い方法ではない。重力沈降法も分離手段として使われている。終末重力沈降速度 V_S は次式で表わされる。すなわち層液領域で、

$$V_S = \frac{2}{9} \frac{(\rho_p - \rho)}{\eta} r^2 g \left(1 + A \frac{\ell}{r} \right) \quad (14)$$

ここで、 ρ_p 、 ρ はそれぞれ粒子、空気の密度， g ：重力の加速度， A ：カニンガム補正の定数で 1.6 である。従って、層状に一定間隔で板を重ね、その間に粒子を含んだ

空気を流し、層状板の入口から出口までの間に粒子が板の間隔以上落下すれば、その粒子は板に捕えられると考えれば、大型の粒子を分離し得ることになる。この方式は、環境測定時の $7\ \mu\text{m}$ cut に用いられているが、粒径が小さくなると非常に大型になることと、捕集した粒子を再びかき集めねばならぬので今回の目的には不適當である。

慣性力を利用する方法には、インパクター方式以外に遠心式のコニフュージやゲッツのエアゾルスpektロメーターがあるが、必要な遠心力を得る装置が大型になるので、インパクター方式を採用することとした。

3.2 ラドン・トロン娘核種の粒径分布

前項にも述べたようにラドン・トロン娘核種の粒径は、環境中のエアロゾルの粒径に依存する。従って、異なった環境のデータは大して参考にはならない。しかし、およその分布を知るため人形峠鉱山（中津河）の坑内で測定した例を Fig. 4 に示す。これより対数正規分布をしていることがわかる。この図の中の RaA は過渡的な分布型なので RaC' の分布型が一応参考になるであろう。これによると $0.6\ \mu\text{m}$ 以上の粒子は殆んど存在しない（2%）ように思われる。

3.3 汚染物質の粒径分布

動燃東海で測定した六フッ化ウランのエアロゾル粒径の一例を Fig. 5（1977-12-8 石田）に示す。これも対数正規分布を示している。Fig. 4 と Fig. 5 を重ねると $0.6\ \mu\text{m}$ 前後で cut すれば一応満足すべき分離結果が得られそうであることがわかる。

4. サンプリングシステムの設計

4.1 システムのレイアウト

ラドンの娘核種には、一次粒子と二次粒子があること、汚染物質は対数正規分布でかなり大きい粒子であることがわかった。一次粒子は極めて小さい粒子なので慣性衝突のおそれはないが、拡散係数が大きいので、サンプリングシステムの内側の露出面に付着し易い。そのため見かけ上インパクターの衝突板の上に捕集されたような形になるおそれがある。一次粒子の相対濃度はエアロゾル濃度に依存するので一定ではないが、エアロゾル濃度が低い時は逆に付着する一次粒子の量が多くなるため、あらかじめ除去した方が安全である。一次粒子の除去には2.3項の diffusion battery を使うが diffusion battery は多層型の重力沈降法による分粒器と類似の形状なので、大型粒子の通過を妨げないように配置しなければならない。一方、労働衛生上は粒径が7 μ 以上の粒子は測定対象からはずしているが、放射性物質の濃度評価にこの概念を持ち込むことは避けるべきであるが、もっと大きく全く人体に入らないと考えられる例えば20~30 μ mの粒子についてはサンプリング地点の選択のみで十分取り除けるので考慮する必要がないと考えた。

慣性衝突によって汚染物質を捕集するのであるが、非放射性的の粒子も多く、サンプリング期間に多量の粒子を捕集しなければならない。慣性衝突による捕集の代表的な装置であるカスケードインパクターは捕集部が点であり或程度の重量の粒子が捕集されるとそれ以上はジェット流で再飛散を起して、以前捕集された分を飛ばしてしまうので別の形式が望ましい。カスケードインパクターには捕集部が点でなく線状のものもあり、この方が捕集し得る量は多少多くなる。しかし、分離曲線はゆるやかになってしまう。始め線状のインパクターの捕集部分を捕集線と直角の方向に動かし面状の捕集面を得るような方式を考えたい。この方法は、i. 捕集された粒子が広い範囲に拡散するので粒子自身による自己吸収が少なく、良好なエネルギー分解能が得られる。ii. 捕集位置と時間が対応するため汚染物質が捕集された時刻がわかる。などの利点をもっているが工作が困難であるとのことで多孔式のインパクターを採用することにした。

多孔式のインパクターはアンダーセンサンプラー型の分粒捕集装置に使用されている。面状に拡がっている訳ではないので粒子自身の自己吸収があるが、i. 多量の空気や粒子を処理できること。ii. 捕集面の大きさを適当に拡げられること。iii. 可動部分がなく、製作が比較的容易なこと。などの利点を持っている。

インパクター部分で大部分の汚染物質が捕集されるとは云うものの捕集されないような小粒子や再飛散のおそれがない訳ではないので、インパクターの後に通常の沓紙

による捕集装置を取り付けバック・アップ機能を果すようにした。この濾紙に捕集される放射性粒子の大部分はラドン・トロンの娘核種で汚染物質はインパクターの方に捕えられるが、濃度評価に万全を期すため必要である。

吸引はスニファを使うことを考え、さらに濾紙の目づまりで多少流量が落ちることを配慮して50 ℓ/分とした。勿論60 ℓ/分でも良いが、流量変化に対し分粒効果の変化はそれ程大きくないので少し余裕を見た。

以上のシステムとしての考えをまとめた後、アンダーセンサンプラーをモデルとしてシステムの設計を始めた。

4.2 分離粒径の決定

前項に述べた如く、0.6 μm 前後が分離粒径と想定されたが主として娘核種に対する効果を実証するため、アンダーセンサンプラーを利用して実験を行った。実験の方法は一組のフィルター捕集装置と二組のアンダーセンサンプラーを同時に使用し測定環境のラドン娘核種を採取した。そのうちの一組のアンダーセンサンプラーには diffusion battery を用い、他は用いず、採取板は、diffusion battery を使用した装置について1.1 μ, 0.6 μ, 0.43 μm (標準流量)の三種の孔径について使用し、さらにバックアップ用のフィルターを使用した。diffusion battery を接続していない装置では0.6 μ用の捕集板とバックアップフィルターを使用した。この方法は次のような仮定、即ち、i. フィルターのみ捕集装置には全ラドントロンの娘核種が捕集される。ii. 前記フィルターならびにバックアップ用フィルターに捕集された各娘核種に対する検出効率はインパクターの有無にかかわらず同一で採取流速と捕集面積の補正のみで直接比較が可能である。iii. 捕集後のラドン・トロン娘核種の減衰曲線は濾紙で捕集した場合もインパクターの捕集板で捕集した場合も同様である。が無理なくたてられるので、実験値の解析が容易となる。

この実験は、2日間動力炉・核燃料開発事業団東海事業所 F棟で行われた。3種の採取装置を使用し、合計7種類の試料を3台のα線検出器で幾つかの経過時間のもとで測定するため、上記の仮定のもとに実験計画を立てた。3台のα線検出器の検出効率はそれぞれ異なっているので同一のウラン標準線源で比較測定し仮りの検出効率を求めた。この実験では絶対効率の必要性はなく、相対的効率のみ明らかならば十分なので多少α線のエネルギーが異なっても問題にはならない。この結果、counter No. 1, 2, 3の相対効率はそれぞれ31.28, 27.94, 33.35%となった。効率の差の原因は線源と検出面 (ZnS シンチレーター表面) との距離の差と計数装置の波高選別レベルの差にある。何れもα線のエネルギーによって変化するが変化の割合は少い。

採取流速 V_0 は流量計 (面積型ローターメーター) V_s と流量計挿入位置に入れた

圧力計 P_s mm Hg の指示値より $V_0 = V_s \sqrt{\frac{P_s}{760}}$ より計算した。

試料採取時間は多くの場合 30 分間であるが必ずしも一定はしていない。採取時間によって捕集された試料中のラドン娘核種とトロン娘核種の比ならびに娘核種同志の比は実験ごとに異なるため decay curve は多少異なるが、前述の通り測定ごとに filter のみによって捕集した decay curve を求め、それをそれぞれの測定時の基準の decay curve とした。9 月 18 日午後 (14:25~15:55) に行った第 1 回の実験の結果を Fig. 6 に、同 18 日 17:28 より翌 19 日 8:34 まで捕集した結果を Fig. 7, 19 日 9:41 より 11:11 まで捕集した結果を Fig. 8 に示す。何れのグラフも横軸は採取終了時から測定開始時までの経過時間、縦軸は 9 分間の計数に相対的補正 (検出効率, 線源面積, 流量) を加えた計数を示す。Fig. 6 の decay curve は採取時間が短いので RaA の影響が多少あり、採取終了より 20 分間程度の減衰は急であるが、それ以外は各グラフ共大体同じような decay curve を示す。図中 A は filter のみで sampling した試料、B は diffusion battery を使用せず、また $0.43 \mu\text{m}$ の孔明き板と捕集板、 $1.1 \mu\text{m}$ 用の捕集板 (孔明き板のみ使用) をはずしている。C は diffusion battery を付け、さらに 1.1 , 0.6 , $0.43 \mu\text{m}$ 用の孔明き板と捕集板を使用した。 α 検出器によって A 試料は 3 回、B, C 試料の filter と C 試料の 0.6μ 粒子について 2 回、他は 1 回測定した。Fig. 6 の C-1.1 試料は検出器の back ground が高く、同図の曲線が正当か否かは不明である。Fig. 7 はトロン娘核種を含んだ数値であるが Fig. 7 で示した例では、その大部分はラドン娘核種である。また、Fig. 6 と 8 は通常の換気が行われている時の、Fig. 7 は換気が停止した時のラドン娘核種の粒径を意味している。本実験の結果を Table II にまとめる。これより、 0.6μ 以上の粒子は全粒子の 4% 程度で、十分娘核種の捕集率を抑制できることがわかった。diffusion battery の効果は、僅かながら認められること、換気中の粒径は換気を停止した時よりいくらか小さくなるらしいが、その差はこの実験からでは不明であることなどが認められた。

4.3 予備試験

前項の実験時 (P1-3) に electric aerosol size analyser で一般粒子の粒径分布を測定したところ Fig. 9 の結果を得た。粒子の表面積基準の粒径分布を求め $0.6 \mu\text{m}$ 以上の粒子の割合を求めると 8.5% となる。これと前項の実験値 4% とは誤差範囲内で良い一致を示している。なお、この時の中央径は $0.13 \mu\text{m}$ で $\log_{10} \sigma_g$ は約 0.5 となった。

同時にラドン娘核種濃度を測定したが、濃度が極端に低かったことと、測定中何

等かの原因で計数率が不連続に低下したため、求められなかった。

4.4 多孔型粒径分離装置の設計

分離装置は多孔型のインパクターであるが、流量および捕集部分の大きさなどアンダーサンプラーと全く異なるため、次の条件のもとに設計した。即ち、流量を 50 l/min とした。これは sniffer で良く使われている 60 l/min より少ないが、backup用のフィルターで多少の圧力損失があり、実質的な流量は 60 l/min にセットされたとしてもそれより少くなるため設計上 50 l/min を採用した。捕集部分の大きさは検出器の検出可能部面積に相当する。これは 50 mm ϕ である。しかし、実際には付着した試料板の外周が 50 mm ϕ の中に入らなければならぬため、試料を捕集し得る部分の大きさは 50 mm ϕ よりかなり小さくとらねばならない。付着部分の大きさが 5 mm ϕ を超えるとは考えられないが捕集後、捕集板をはずしたり、検出器にセットしたりする時にも問題にならぬよう 50 mm ϕ の外周から 2.5 mm 内側を一番外側の捕集線の位置とした。設計上、前記条件で密度 1 の $0.6 \mu\text{m}$ の粒子の 50% が慣性によって衝突するようにジェット孔径とジェット孔数を選んだ。孔は捕集板の中央を中心とした同心円上に展開し、さらにジェット孔同志の間隔がほぼ同じになるよう同心円上の孔数を決定した。ここで密度を 1 と仮定したが密度 ρ_p の粒子の場合は $0.6 \mu\text{m}$ ではなくその $\frac{1}{\sqrt{\rho_p}}$ 倍の粒径となる。その 50% が慣性によって衝突する粒径 D_{50} は、

$$D_{50}^2 + \frac{492 \mu \sqrt{\pi}}{\sqrt{8 g c \pi} \rho} D_{50} - (\sqrt{\psi})^2 \frac{18}{\rho_p} \cdot \frac{\mu D_c^3 \pi P_i}{4 Q_o P_o} = 0 \dots\dots\dots (15)$$

より、さらに実用に便利のように変形して

$$D_{50} = \sqrt{\frac{18 \mu \psi N \pi \times 60 D_c^3}{4 C Q}} = \sqrt{2.19 \times 10^{-2} \times \frac{N D_c^3}{C Q}} \dots\dots\dots (16)$$

で表わされる。ここで、 D_c : ノズル口径 (cm)

P_i : ノズル出口での圧力 (gf/cm²)

P_o : 入口での圧力 (gf/cm²)

Q_o : 入口ガス流量 (cm³/sec)

ρ : 空気密度 (g/cm³) = 1.205×10^{-3}

μ : 空気の粘度 (g/cm \cdot sec) = 1.84×10^{-4}

g_c : 重力換算係数 (980 g cm / gf sec²)

ψ : 慣性パラメーター = 0.14

Q : 吸引総流量 (cm³ / min)

C : カニンガムのスリップ補正係数 = $1.00 + 0.16 \times 10^{-4} / D_{50}$

N : ジェット孔の数

である。C は $0.6 \mu\text{m}$ ($6 \times 10^{-5} \text{cm}$) に対して 1.27 となるが、 D_{50} は $\frac{1}{1.125}$ になるに過ぎない。N の数は前述の条件からは決まり 204 個となる。即ち、中心より半径 1.7, 4.7, 7.6, 10.6, 13.5, 16.5, 19.5, 22.4 mm の同心円上にそれぞれ 3, 10, 16, 22, 29, 35, 41, 48 個のジェット孔をあける。その場合の孔径は約 0.37mm となる。(0.37mm に対する D_{50} は $0.59 \mu\text{m}$), 一方、この時のレイノルズ数を計算すると 937 となる。この程度ならば (100 ~ 2000) (0) 式を使うことができ、また cut off 特性を悪化 (50 以下) させないで済む。一方、 D_{50} はジェット孔出口と捕集板の距離 S とジェット孔の径 W に依存するが S/W が 0.9 以上ならばあまり変化しないことが確かめられているので $S/W \sim 3$ として S を 1mm に設定した。ジェット孔の長さ (T) は孔をあけた板の厚さに同じと考えられるが T/W が極端に小さく (1 以下) ない限り cut off 粒径に与える影響は少い。この場合は、機械的強度の点から 2mm としたので T/W は 5 以上となっている。圧力損失については、極端に小さな孔径であり計算し得なかったが、およそ 49mmAq の圧損を示すものと推定された。この程度の圧損ならば (0) 式を補正する必要はない。

労働衛生上 respirable dust と呼ばれている粒子の粒径は $7 \mu\text{m}$ である。これを除去して濃度評価を行うこともあり得るので $7 \mu\text{m}$ cut の分粒装置も取り付け得るようにした。この装置のジェット孔は中央を中心とした半径 4.6, 12.5, 20.5 mm の同心円上にそれぞれ 3, 10, 16 ケあけてある。孔径は 3.4mm でジェット孔出口と捕集板距離は 3.0mm 、ジェット孔の長さは 2mm である。 S/W は 0.9, T/W は 0.7 で何れも小さいが 0.5 以上であるので問題にはならない。レイノルズ数は 715 である。(50 l/min に対し逆に計算すると $6.9 \mu\text{m}$ となる。)

ジェット孔をあけた板、捕集板等については市販のアンダーセンサンプラーを参考にした。断面図を Fig. 10 に示す。

4.5 1次粒子除去装置

一次粒子は diffusion battery (以下 D.F.) で取り除くことにしたが D.F. には 2 つの形式があって、1 つは円筒管状のもの、他は矩形筒状のものである。工作上矩形筒状のものの方が製作し易いので (6) 式により設計した。長さ 70mm 有効巾 (通過空気に触れている部分) 40mm で、厚さ 0.8mm の金属板 (ステンレス・スチール) を 1mm の間隔で 26 枚 (矩形の溝が 25 チャンネル) 並べ垂直に (開口部を上にして) 前項のアンダーセンサンプラーの上に設置した。1 次粒子の拡散係数を $0.054 \text{cm}^2/\text{sec}$ とする

と(6)式から1次粒子の98.7%が除去できることになる。

垂直に設置した理由は、重力沈降により大形粒子が沈着しないように配慮したためである。断面図を Fig. 10 に示す。

5. サンプリングシステムの性能

5.1 性能試験

予備試験と同様にフィルターのみ(: A), $7\ \mu\text{m}$ と $0.6\ \mu\text{m}$ 用の捕集装置は使用するが diffusion battery は使用しない(: B), $7\ \mu\text{m}$ と $0.6\ \mu\text{m}$ 用の捕集装置ならびに diffusion battery を使用する(: C)の3種について試験した。試験に入る前 $0.6\ \mu\text{m}$ 用のジェット孔を顕微鏡で調べたところ、いわゆるバリが残っていて孔の一端が($\frac{1}{8}$ ~ $\frac{1}{4}$)程ふさがれた形となっていた。このため実効的な孔径は小さくなり cut off 粒径は下ることが予想されたが修正できぬためそのまま実験を始めた。若し、ジェット孔径が($\frac{1}{8}$ ~ $\frac{3}{4}$)になると cut off 粒径は $0.6\ \mu\text{m}$ より($0.43 \sim 0.39\ \mu$)に変化するが、つまった部分のジェット孔の長さが短く、また不規則な形なので計算することは難しい。

夜間の換気のない場合 Fig. 11, 午前の換気はあるが夜の影響が多少残っている場合 Fig. 12, 換気があり比較的安定した状態 Fig. 13, 翌日の夜間の換気なしの状態 Fig. 14 をそれぞれ図で示す。

この結果を Table III にまとめる。またほぼ同じ時刻(夕刻より朝までの時は朝)に半導体検出器によって測定したラドン娘核種の濃度も同表に示す。娘核種の時間的変化がよくわかる。

同表によると $0.6\ \mu$ 以上の粒子の相対数が Table II に比して大きいことがわかる。これは、前述したようにジェット孔の径が指定値より小さくなっているためと思われる。また、 $7\ \mu$ のステージに付着している例(Ex. -1, 4 の D. F. なし) は比較的娘核種の濃度が高く信頼できるので恐らく一次粒子が付着しているものと推定され、従って $0.6\ \mu$ のステージも高くなったと考えられる。一方、無換気の時の粒径は大きな方へシフトする。これは、凝結核粒子数が多くなることならびに凝結等により粒子が成長するためと思われる。

この実験時の一般粒子の粒径分布を Fig. 15, 16, 17, 18 に示す。Table III に対応する図の番号を示している。試作分粒装置の $0.6\ \mu$ の捕集率に相当する一般粒子の粒径を求めると、それぞれ $0.35, 0.32, 0.32, 0.36\ \mu\text{m}$ となり、試作装置が $0.6\ \mu$ より小さい粒子まで捕集しているのではないかと考えられる。その原因は、前項に述べたようにジェット孔にはり出したバリにより孔径が小さくなっているためと推定される。工作技術上の問題なので対策は考え難いが、ジェット孔長に余裕があるので工作上、孔の片側をコーン状にするか、薬品で孔あき板を処理するかすれば良いように思われる。

以上の実験から、工作上の問題はあるにしても、ラドン娘核種の捕集率を現在の8~18%にまで下げることができた。また、工作上の問題が解決すれば恐らく、同捕集率5%以下まで下げることが可能であると推定できる。

5.2 捕集試料の α スペクトル

慣性衝突によって捕集した場合は filter で捕集した場合と異なって filter の構造材などによる α 線のエネルギー吸収がないため α 線スペクトルのエネルギー分解能は向上するものと考えられる。ただ捕集された放射性物質の上に非放射性物質の粉塵が重なって捕集された場合は分解能は著しく阻害される。これ等は計算でも求められるが実測した方が正確である。アンダーセンサンプラーによってラドン娘核種を捕集しそのまま、空気中および減圧（真空）中で半導体検出器により測定した例を Fig. 19 に示す。また、捕集された娘核種の上に非放射性的の粉塵が1スポットあたり $9.6 \mu g$ 堆積した状態で、空気中および減圧（真空）中で測定した例を Fig. 20 に示す。 $9.6 \mu g/\text{spot}$ は 204 spots では 1.95 mg に相当する。しかし、実際にはラドン娘核種の半減期は比較的短いので堆積物の上部に付着した分のみが検出され、下部の分は減衰し去っているため Fig. 20 のような例は少ないと思われる。HE-40T フィルターでラドン娘核種を捕集し、やはりシリコン半導体検出器により空気中および真空中で測定した例、Fig. 1 と 2 と比較すると、新しい filter で捕集するより多少粉塵を捕集した filter で捕集した時の方が半値巾はいくらかせまい。しかし、Fig. 19, 20 の方が遥かにピークの半値巾が少く、従って核種の識別が高いエネルギー分解能の下で可能になることがわかる。Fig. 19 のピーク部分の総計数（4258 カウント）は全計数（41098 カウント）の $\frac{1}{10}$ であり、従ってエネルギーによって識別可能な計数は全計数の僅か $\frac{1}{10}$ に過ぎない。勿論ピークの裾の方の平坦な部分まで考えれば別であるが、視覚的な識別に使われる計数は全計数の $\frac{1}{10}$ である。これに反し Fig. 19 では、それぞれ 90, 100%（空気中・真空中）が視覚的な識別に利用できることになる。従って、これだけを取り上げてもラドン娘核種による妨害の低減の程度が著るしく改善されることが期待される。

5.3 弁別能力の改善

前2項で述べた如く、本採取法によれば、i. 汚染物質に対する捕集効率は殆んど減少しない。（95%）、ii. ラドン・トロン娘核種に対する捕集効率は著るしく低減できる。（ジェット孔が指定通りならば9%以下（ $\approx 6\%$ ）、現在のままで20%以下（ $\approx 12\%$ ）、iii. エネルギー分解能が向上する。（ピークを視覚的に認識し得る能力が約9倍になる。）ことがわかった。エネルギー弁別性のない検出器で測定する場合に

は、現在のままでラドン・トロン娘核種の影響を $\frac{1}{4.8}$ に下げ得ることになる。昼間のラドン娘核種による飽和 α 計数率 (Table III. Ex-3 の娘核種濃度より求める。) は、 $155 \times \eta$ カウント/分 (η は検出効率で 20% とすれば 31 cpm) 位になる。(脚注 4)

今、3 分間計数すると考えれば $48.2 \times \eta$ カウント/分 3σ に相当する。従って、天然ウランについて云えば、天然ウラン 1.09×10^{-11} Ci が捕集されれば検出し得ることになり、天然ウランに対する 168 h/W の (MPC) $2 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の汚染空気を $50 \text{ l}/\text{分}$ で捕集するものと考えると、汚染が始まってから 10 分間たたねば検出できない。これに反し本方法で採取すれば、ラドン娘核種による飽和 α 計数率は $32.3 \times \eta$ カウント/分となるので、もし同じ条件で測定するのならば $22.0 \times \eta$ カウント/分が 3σ になり天然ウラン 5×10^{-12} Ci が採取されれば検出でき、従って 5 分間の sampling で汚染が判明することになる。また、もしジェット孔が設計値通りならば、ラドン娘核種は $\frac{1}{10}$ 以下になるので約 3 分間で汚染が明らかになるものと推定される。

エネルギー弁別性のある検出器を使った場合は 88.6% に近い計数がピークとして、さらに 79.5% がピークに相当するエネルギー (7.68 MeV) とそれより 0.6 MeV (空気中) 低いエネルギーの範囲に集中的に分布しているため、その間に妨害となるピークがなければ娘核種の影響は殆んど無視できる程低減できる。低減率はエネルギーにもよるが $\frac{1}{100} \sim \frac{1}{30}$ 程度と推定されるので 10^{-13} Ci 程度の採取量でも計数さえ得られれば、汚染を確認できるものと考えられる。

以上から本採取法は、単に汚染物質の捕集率を下げずラドンやトロンの娘核種の捕集率のみを下げると云う効果ばかりでなく、 α 線に対する検出系のエネルギー分解能を向上させる効果が期待できる。

(脚注 4) 長時間のサンプリングでは別添 II の (I) 式は次のようになる。

$$I'_{AA} = C_A \frac{1 - \exp(-\lambda_A t m)}{\lambda_A^2}$$

従って、ラドン娘核種の飽和 α 計数率 A_0 は $A_0 = V (I'_{AA} + I'_{AC} + I'_{BC} + I'_{CC})$ となる。 I'_{AC} , I'_{BC} , I'_{CC} は脚注 3 で定義したもの。以下、 $C_A = 2.66 \times 10^{-11}$, $C_B = 1.15 \times 10^{-11}$, $C_C = 2.52 \times 10^{-11}$, $N = 50 \times 10^3$ として、脚注 3 と同様にして、 $A_0 = 6.9 \times 10^{-5} (\mu\text{Ci}) \approx 155 \text{ (dpm)}$ が求まる。

6. 結 論

本試験の結果、幾つかの問題が残った。即ち、i. 実効的なジェット孔径が計算値より小さくなったため（その理由は前項にも述べたように工作上的原因で孔径が小さくなったことと共に孔内面の粗さなどのため縮流のような現象が起き、孔径よりジェット流径が小さくなったのではないかと考えられるが実験的に確かめられてはいない。）余分な娘核種まで捕集してしまうこと。（別添 I） ii. 捕集板上に集められた妨害となる娘核種の上に非放射性もしくは比放射能の低い粉塵が重ねて捕集された場合、娘核種のエネルギー分解能を著しく阻害すること。などである。ジェット孔径が適切ならば ii のような妨害は少ないが、ジェット孔径が小さくなると急激に増加する。例えば、捕集粒子径が $0.6 \mu\text{m}$ から $0.4 \mu\text{m}$ に変化すると、相対的捕集粉塵量は 12% より 28% に、また $0.3 \mu\text{m}$ となると 42% に増加する。従って、捕集粒子径が $0.6 \mu\text{m}$ 以下にならぬよう常にコントロールする必要がある。殊に試作装置のように孔の一端に突起がある場合は目づまりを起し、実質的な孔径が細くなる可能性も考えられる。 $0.6 \mu\text{m}$ で cut off されているのならば捕集される一般粉塵は全粉塵（重量）濃度の 12% に過ぎぬので $0.01 \text{mg}/\text{m}^3$ 程度の粉塵濃度としても 24 時間で 0.86mg 捕集されるに過ぎない。この程度ならば、それ程大きな障害なしにエネルギーによる弁別が可能であると思われる。しかしながら、この濃度が高く $0.1 \text{mg}/\text{m}^3$ ならば 8.6mg となるため、エネルギー弁別には問題が残る。

以上のような問題はあるものの、粒径によって汚染物質と妨害物質を分離して採取すると云う考え、および慣性衝突法等により分離された粒子のみを捕集し、エネルギー分解能を向上させることは、極めて有効な手法であると結論できよう。ただ、不必要な試料を蓄積しても無意味なので、常に新しく採取された試料を測定できるような機構を考える必要がある。そのような観点から眺めると多孔式の分離装置よりもスリット（矩形）状のジェット孔により採取し、採取板もしくはジェット孔を移動させる方式の方がすぐれているように思われる。今後の開発の方向の一つとして検討する必要がある。

$7 \mu\text{m}$ cut off の分離機構を付属させたが、衛生工学的意味以上に有意であるとは思えない。若し前処理的な意味で分離機構を加えるのならば $0.8 \sim 1.0 \mu\text{m}$ cut off の分離機構を付属させ $0.6 \mu\text{m}$ cut off 機構の duty を緩和させると共に分離機構の安定化をはかることも一つの考えかたのように思われる。

Table I - 1 Radon and Thoron Daughters

Radioelement	Symbol	Half Life	Energy of Radiation (Mev) (%)		
			Alpha	Beta	Gamma
Radon (Thoron)	$^{86}\text{Rn}^{220}$ (Tn)	55.3 s	629		0.55 (0.07)
Polonium (Thorium A)	$^{84}\text{Po}^{216}$ (ThA)	0.145 s	678		
Lead : 100% (Thorium B)	$^{82}\text{Pb}^{212}$ (ThB)	10.64 h		0.58 max e^- : 0.148 0.222	0.239 (47) 0.300 (32)
Astatine : 0.014% (Astatine)	$^{85}\text{At}^{216}$	3×10^{-4} s	7.80 (97)		
Bismuth (Thorium C)	$^{83}\text{Bi}^{212}$ (ThC)	60.60 m	6.09 (10) 6.05 (25)	2.25 max e^- : 0.025 0.036	1.620 (18) 0.785 (1.1) 0.727 (7) 0.46 (0.8) 0.288 (0.5) 0.040 (2)
Polonium : 66.3% (Thorium C')	$^{84}\text{Po}^{212}$ (ThC')	3.04×10^{-7} s	8.78 (100) long range alphas		
Thallium : 33.7% (Thorium C'')	$^{81}\text{Tl}^{208}$ (ThC'')	3.10 m		1.80 max e^- : 0.187 0.423 0.495	2.614 (100) 0.860 (12) 0.583 (86) 0.511 (23)
Lead (Thorium D)	$^{82}\text{Pb}^{208}$ (ThD)	Stable			

Table I - 2 Radon and Thoron Daughters

Radioelement	Symbol	Half Life	Energy of Radiation (Mev) (%)		
			Alpha	Beta	Gamma
Radon (Radon or Ra Emanation)	${}_{86}^{\text{Rn}}{}^{222}(\text{Rn})$	38229 d	5.49 (100)		0.510 (0.07)
Polonium (Radium A)	${}_{89}^{\text{Po}}{}^{218}(\text{RaA})$	3.05 m	6.00 (100)		
Lead : 99.97 % (Radium B)	${}_{82}^{\text{Pb}}{}^{214}(\text{RaB})$	268 m		1.03 max (6) 0.67 max e^- : 0.037 0.049	0.352 (36) 0.295 (19) 0.242 (4) 0.053 (\approx 1)
Astatine : 0.03 %	${}_{85}^{\text{At}}{}^{218}$	1.5 ~ 2.0 s	6.74 (94) 6.65 (6)		
Bismuth (Radium C)	${}_{83}^{\text{Bi}}{}^{214}(\text{RaC})$	19.7 m	5.51 (0.008) 5.45 (0.012)	3.26 max	2.445 (2) 2.204 (5) 2.117 (1) 1.848 (2) 1.764 (17) 1.728 (3) 1.509 (2) 1.40 comp (4) 1.378 (5) 1.238 (6) 1.120 (17) 0.935 (3) 0.769 (5) 0.609 (47)
Polonium : 99.96 % (Radium C')	${}_{84}^{\text{Po}}{}^{214}(\text{RaC}')$	1.64×10^{-4} s	7.69 (100) 9.06 (0.022)		0.799 (0.014)
Thallium : 0.04 % (Radium C'')	${}_{81}^{\text{Tl}}{}^{210}(\text{RaC}'')$	1.32 m		2.3 max e^- : 0.208 0.28	2.43 (9) 2.36 (8) 2.09 (5) 2.01 (7) 1.31 (21) 1.21 (17) 1.08 comp(19) 0.795 (100) 0.296 (80)
Lead (Radium D)	${}_{82}^{\text{Pb}}{}^{210}(\text{RaD})$	220 y	(3.72) (2×10^{-6})	0.061 max e^- : 0.030 0.043	0.047 (4)
Bismuth : 100 % (Radium E)	${}_{83}^{\text{Bi}}{}^{210}(\text{RaE})$	5.013 d	(4.69) (5×10^{-5}) (4.65) (7×10^{-5})	1.160 max	
Polonium: 100 % (Radium F)	${}_{84}^{\text{Po}}{}^{210}(\text{RaF})$	138.40 d	5.305 (100)		0.803 (0.0011)
Thallium : 10^{-5} %	${}_{81}^{\text{Tl}}{}^{206}$	419 m		1.52 max	
Lead (Radium G)	${}_{82}^{\text{Pb}}{}^{206}(\text{RaG})$	stable			

Table II Collection Factors for the Radon Daughters.
 - Preliminary Experiments -

Experiment			Pl - 1	Pl - 3	Pl - 2
Ventilation			on	on	off
No. of Fig.			Fig. 6	Fig. 8	Fig. 7
Diffusinn Battery	NON	filter	9 3.6%	9 4.7%	9 3.5%
		0.60 μ m	6.4%	5.3%	6.5%
	USE	filter	8 4.0%	9 0.6%	8 7.4%
		0.43 μ m	1 1.9%	7.3%	8.7%
		0.60 μ m	2.6%	2.2%	2.4%
		1.1 μ m	1.6%	0 %	1.5%

Table III Collection Factors of the Trial Samplers for Radon Daughters. and Radon Daughter's Concentration.

Experiments		Ex - 2	Ex - 3	Ex - 1	Ex - 4	
Indicated Fig.		Fig. 12	Fig. 13	Fig. 11	Fig. 14	
Particle Size Distribution		Fig. 18	Fig. 15	Fig. 16	Fig. 17	
Start of sampling on		1/25 • 10:08	1/25 • 13:56	1/24 • 18:24 → 1/25 • 07:44	1/25 • 17:15 → 1/26 • 07:50	
Ventilation		ON	ON	OFF	OFF	
Sampling Period		30 min. morning	20 min. afternoon	13 h 20 min. over night	14 h 40 min. over night	
D. F.	filter	97.6%	90.0%	76.7%	72.0%	
NON	0.6 μm	2.4%	10.0%	21.8%	27.6%	
	7 μm	—	—	1.5%	0.4%	
USE	filter	91.5%	92.1%	83.0%	80.8%	
	0.6 μm	8.2%	7.9%	16.9%	19.2%	
	7 μm	0.3%	—	0.1%	—	
CONCENTRATIONS OF RADON DAUGHTERS						
Sampling period : 5 min from		1/25 • 14:18	1/24 • 17:02	1/25 • 08:03	1/26 • 07:27	1/26 • 10:38
Ra A		266±154	337±195	416±62	438±63	355±178
Ra B		115±192	468±137	140±55	561±38	- 235±108
Ra C		252±135	251±110	154±38	183±26	38.1±10.1
Unit of rds. concentration is pCi / m ³						
$\text{pCi} / \text{m}^3 = 10^{-12} \text{ } \mu\text{Ci} / \text{cm}^3$						

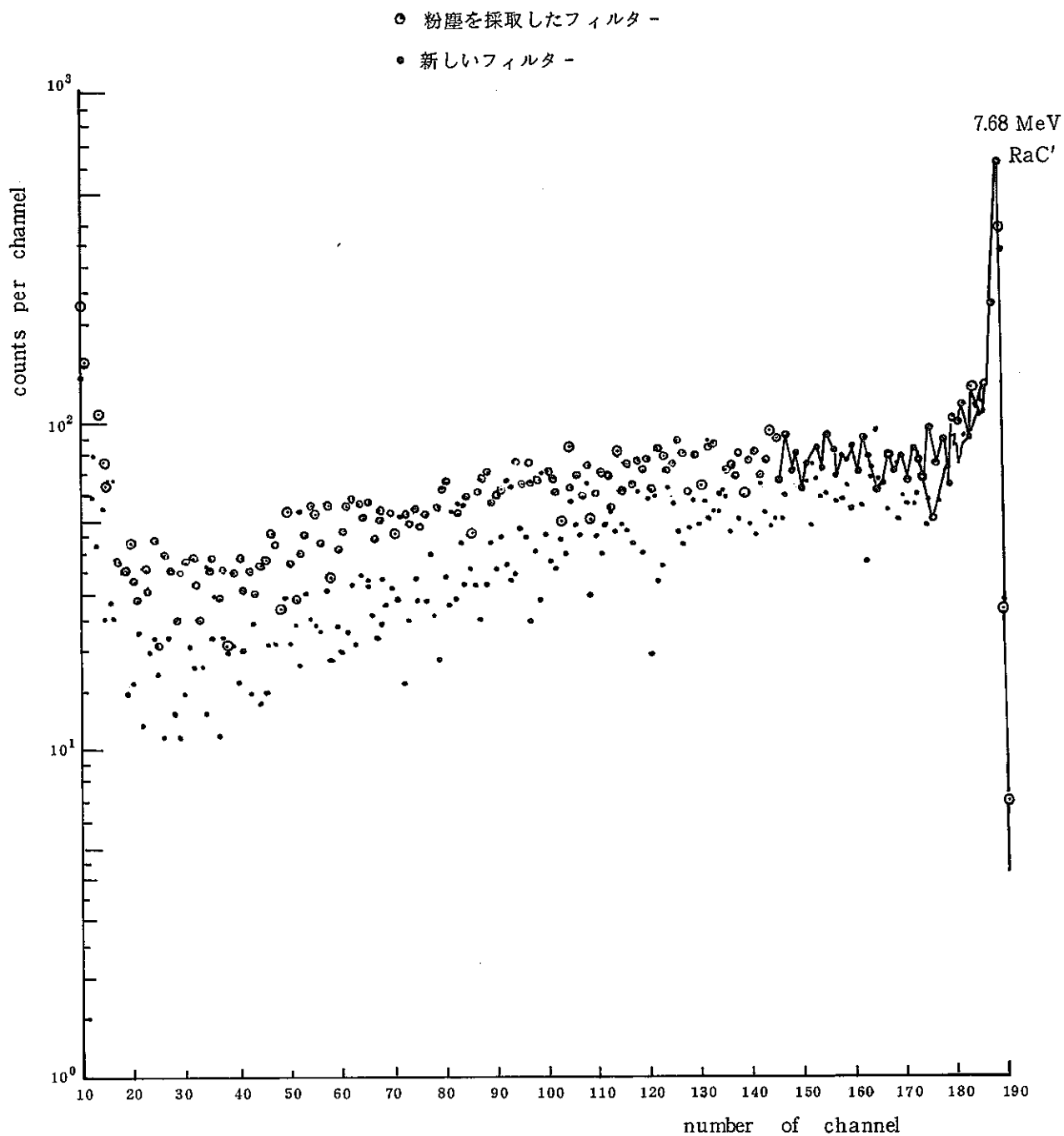


Fig. 1 フィルター採取試料の α スペクトル(真空中)

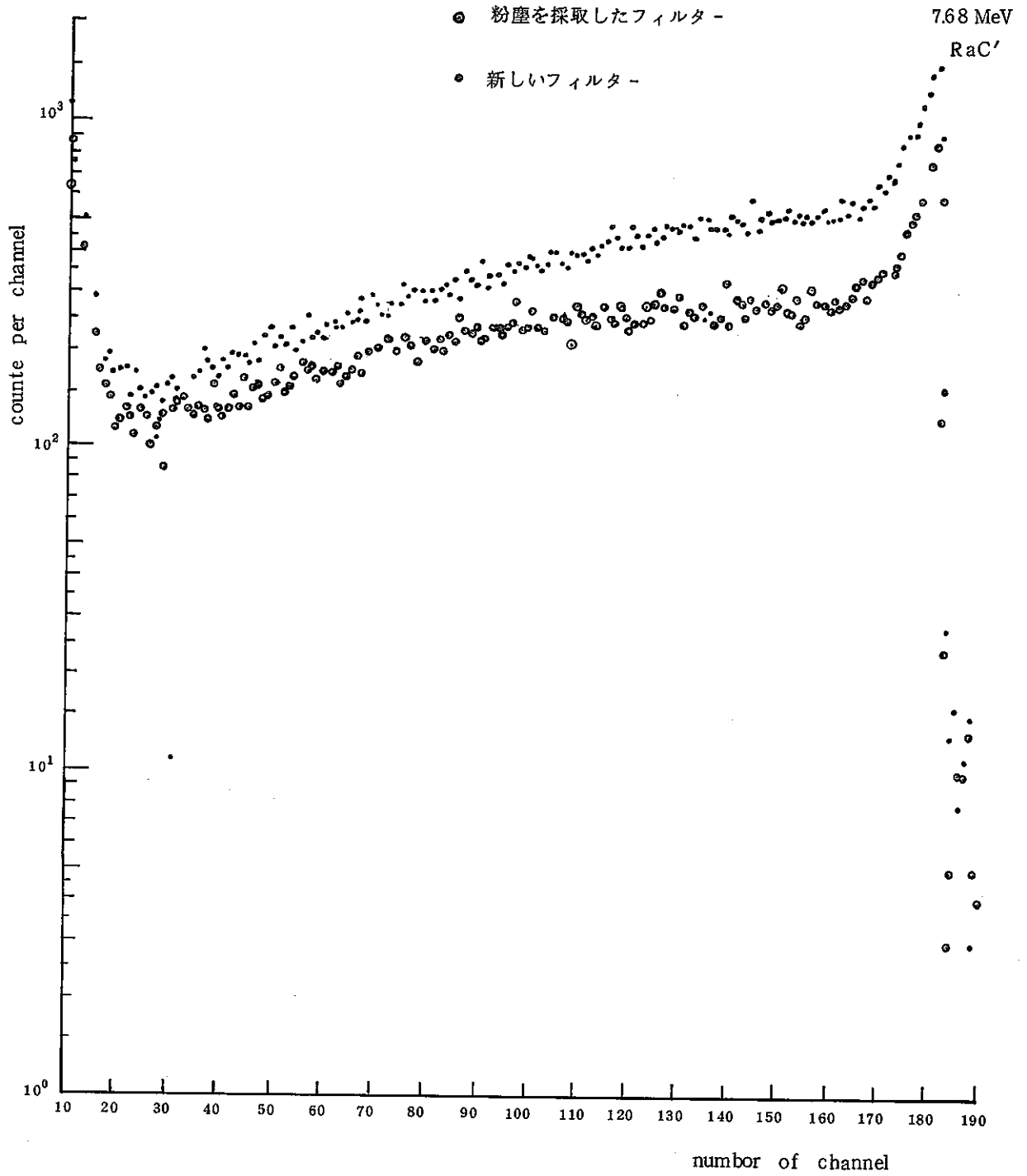


Fig. 2 フィルター採取試料の α スペクトル(空气中)

GROWTH CURVE OF RADON DAUGHTERS

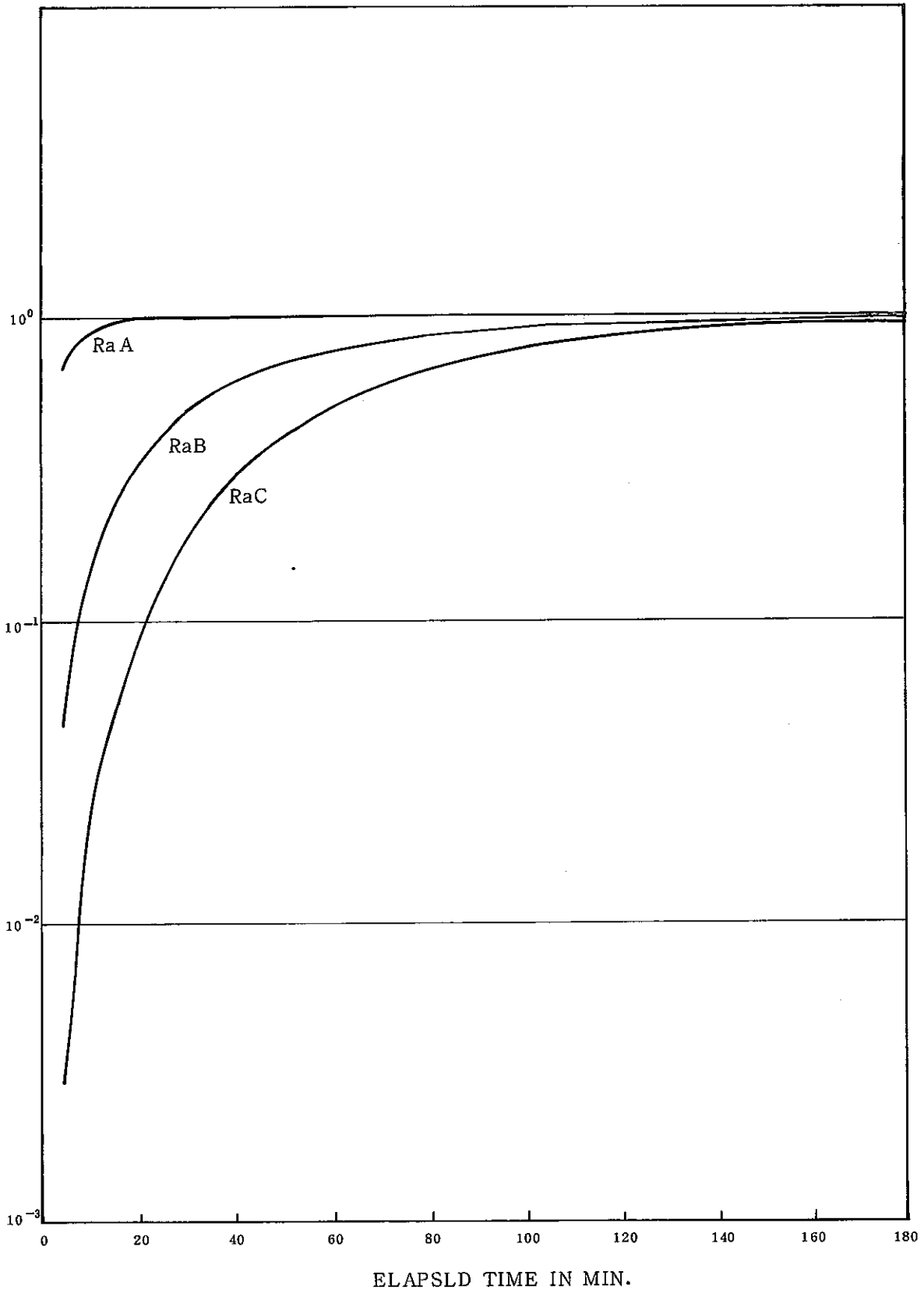


Fig. 3 ラドン娘核種の成長曲線

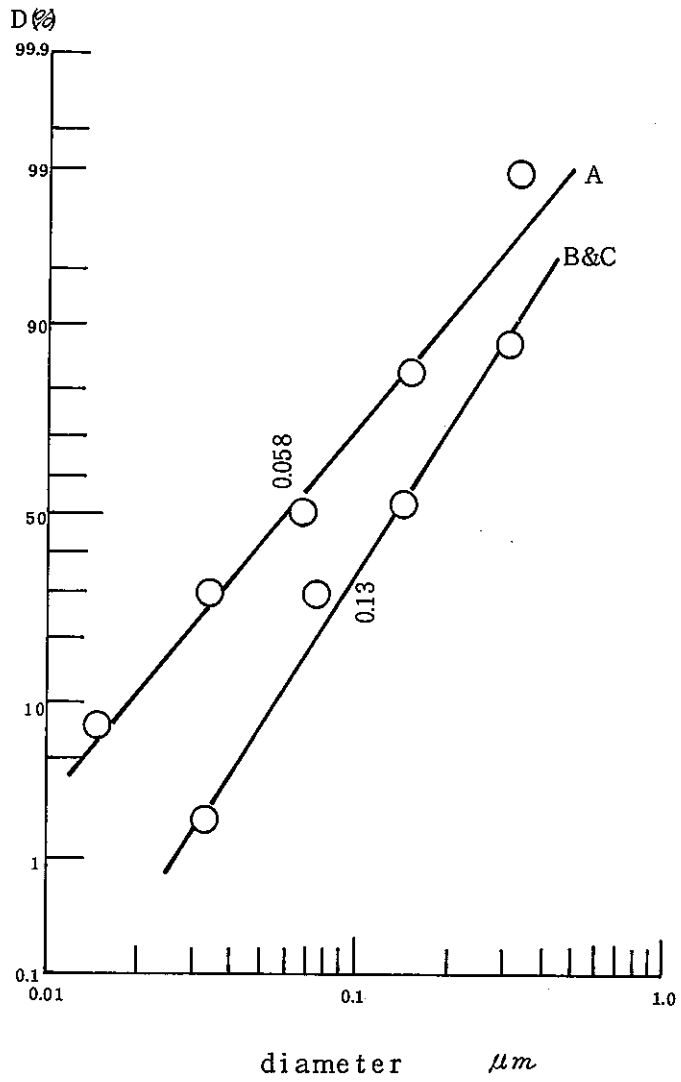


Fig. 4 人形峠鉾山中津河坑排気立坑底の娘核種粒径分布

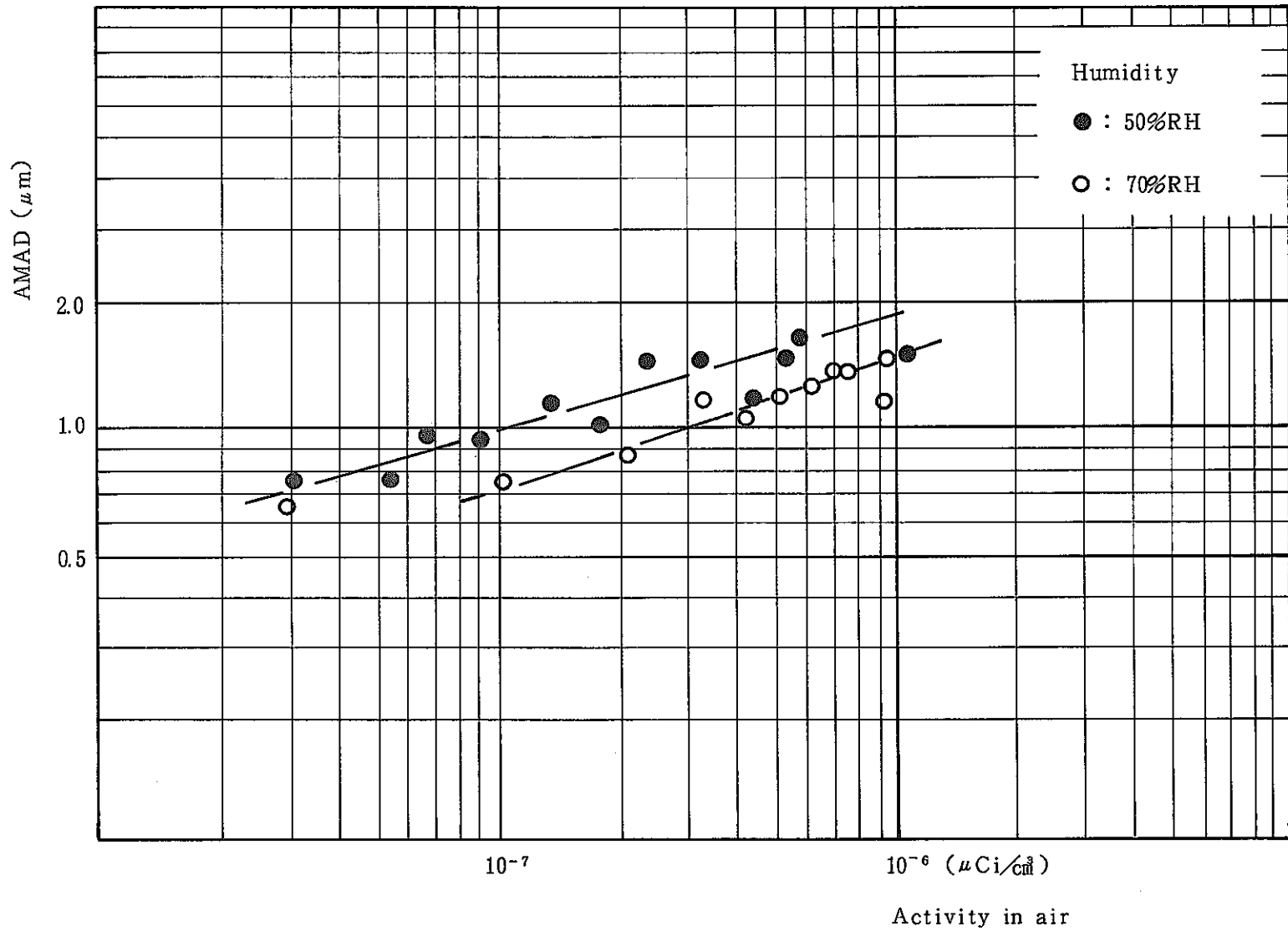


Fig. 5 相对湿度に依存した六フッ化ウラニルエアロゾルの粒径分布 (石田)

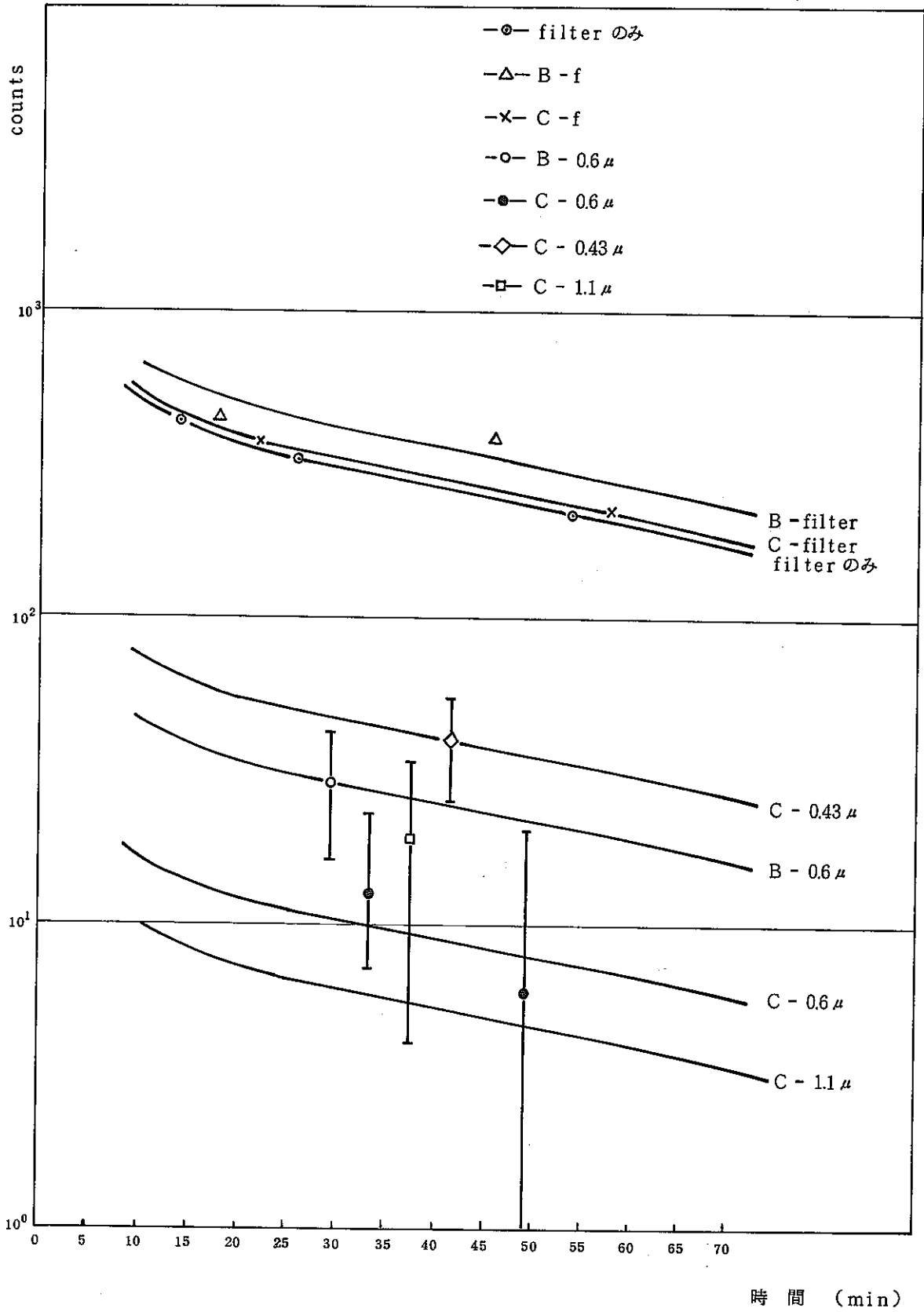


Fig. 6 ラドン娘核種の減衰曲線 アンダーセンサンプラーによる
 粒径別試料(予備実験): 午後, 安定状態

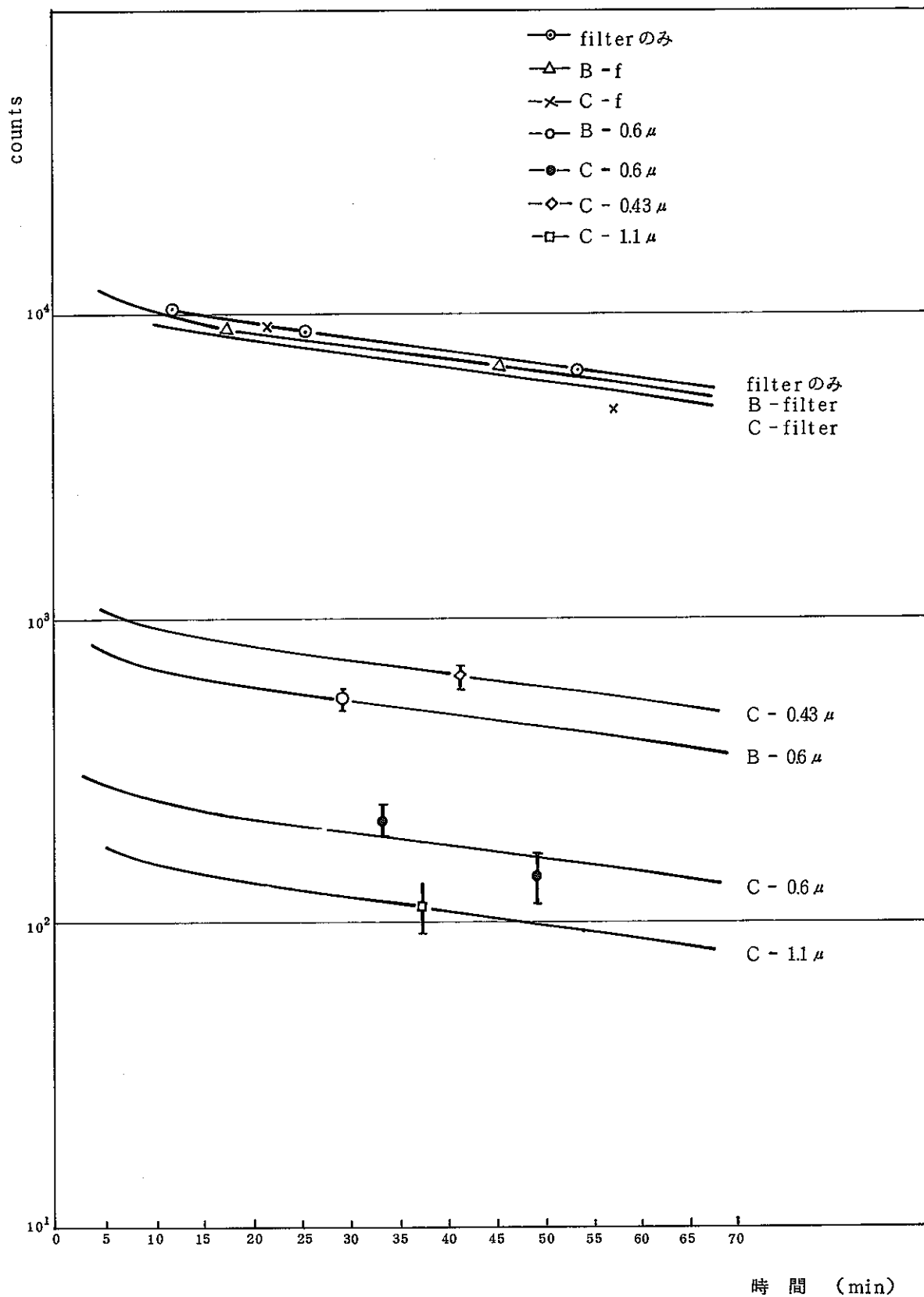


Fig. 7 ラドン娘核種の減衰曲線 アンダーセンサンプラーによる
 粒径別試料(予備実験): 夜間採取, 無換気状態

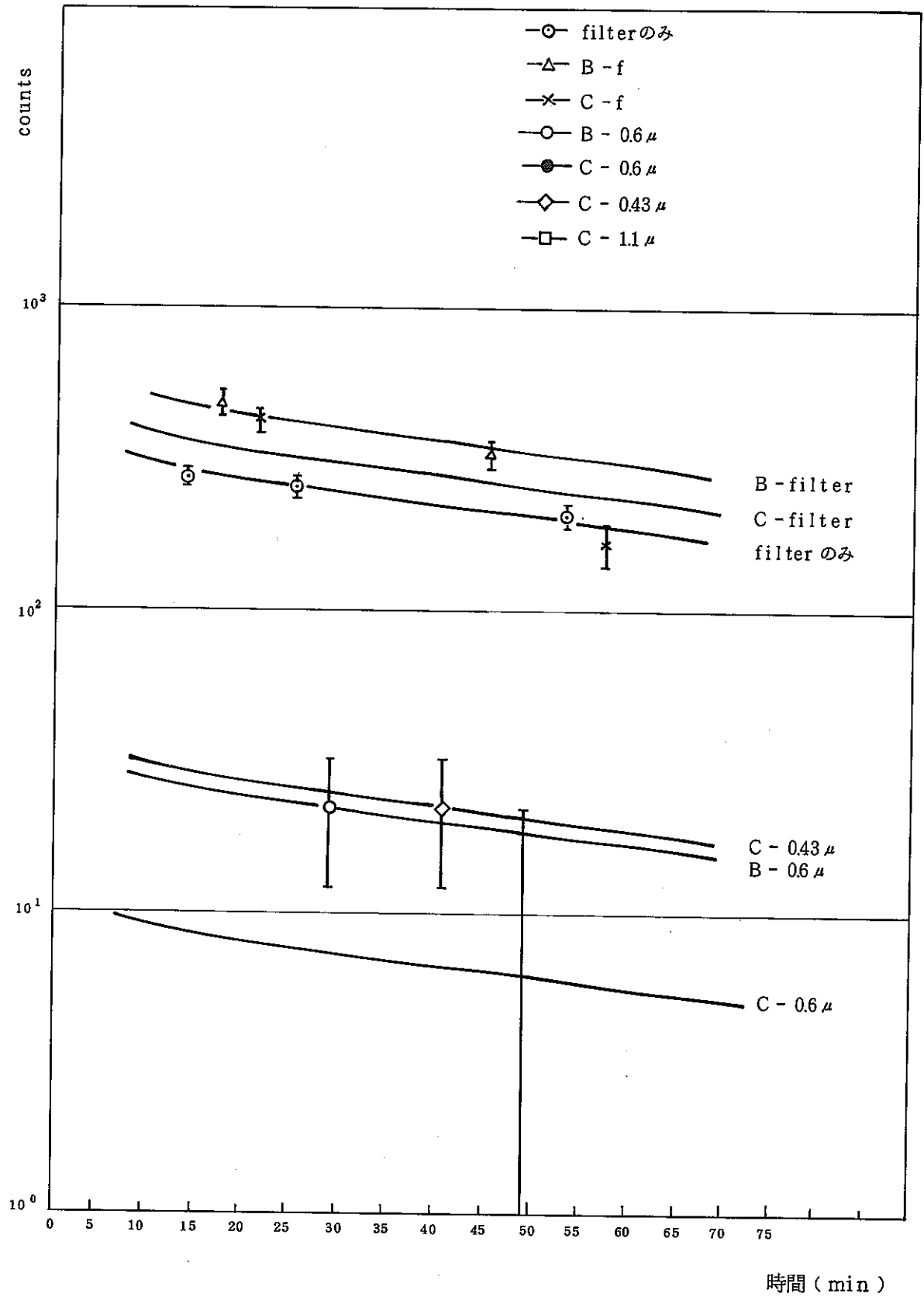


Fig. 8 ラドン娘核種の減衰曲線 アンダーセンサンプラー
による粒径別試料(予備実験): 午前換気状態

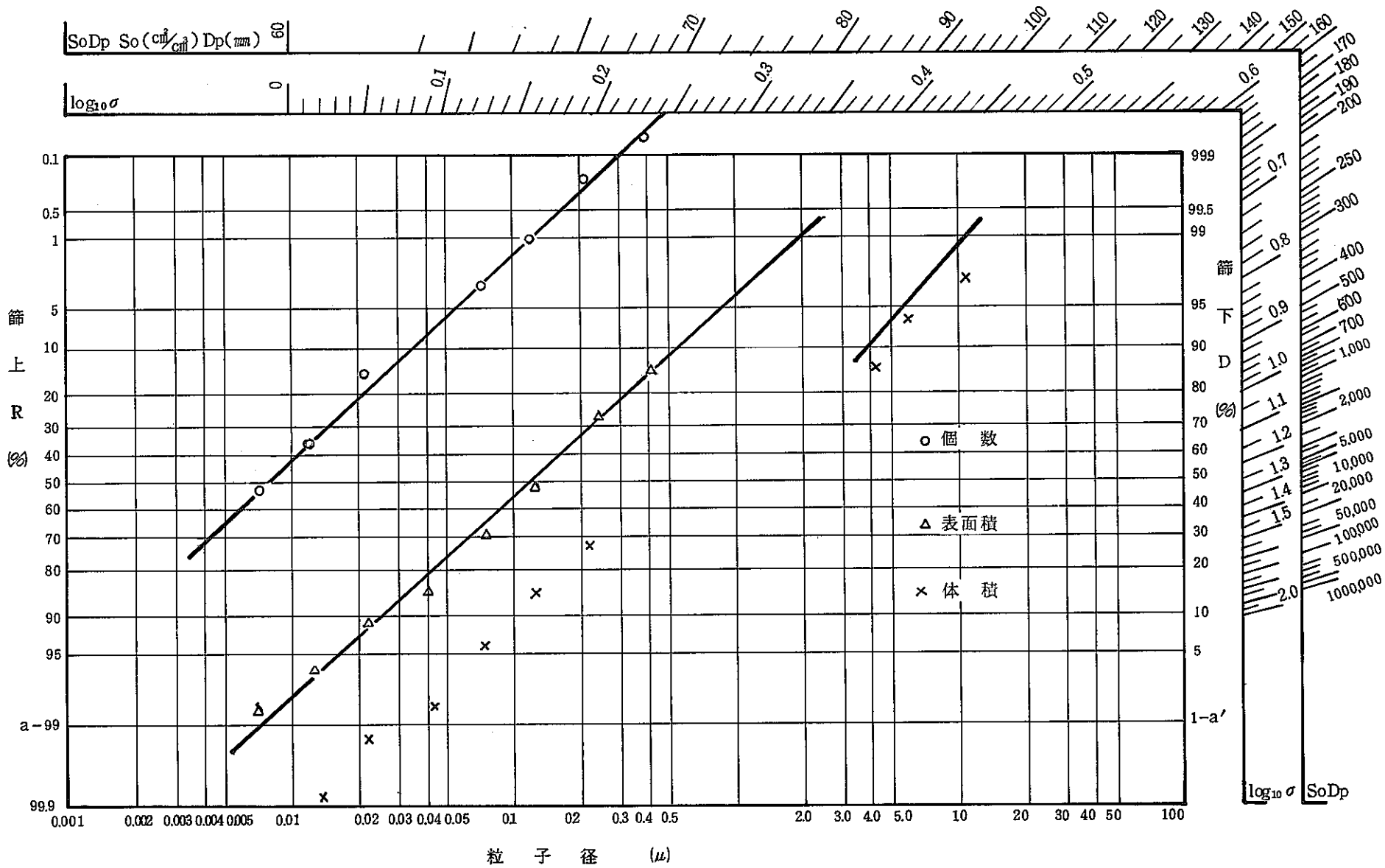


Fig. 9 一般粒子の粒径分布，予備実験時の粒子径（9月）

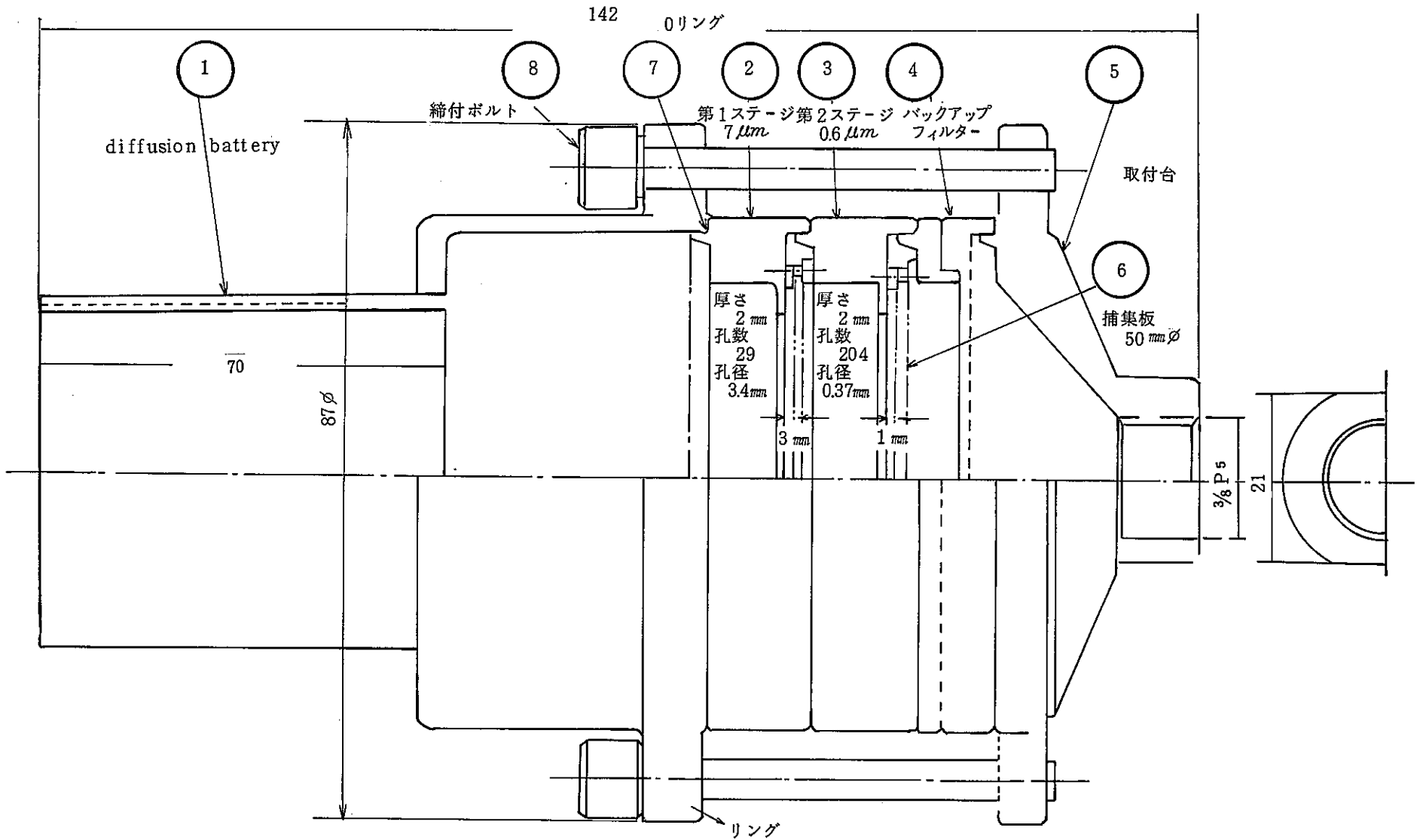


Fig. 10 試作採取装置

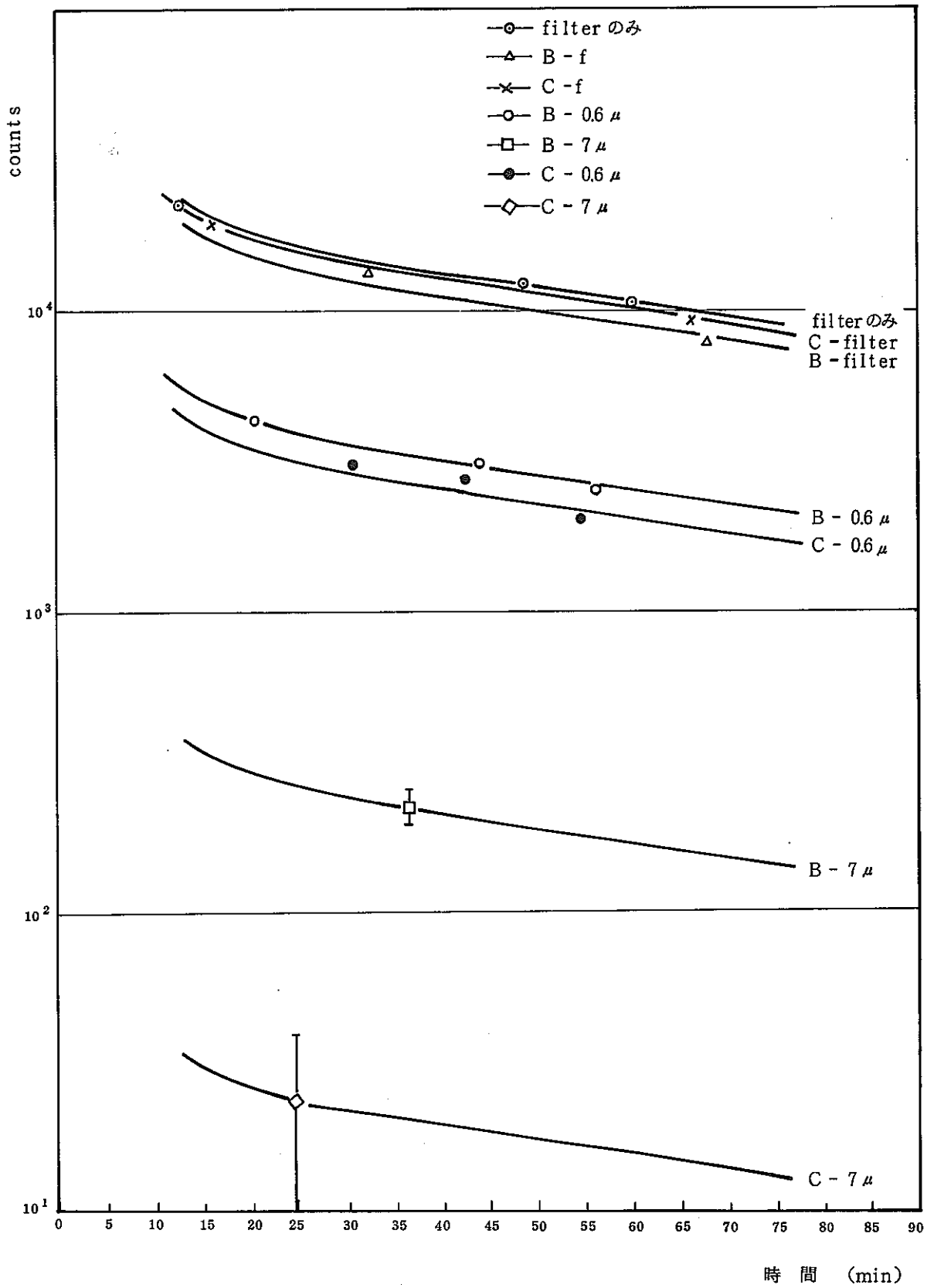


Fig. 11 ラドン娘核種の減衰曲線 試作装置による粒径別試料
夜間採取：無換気状態

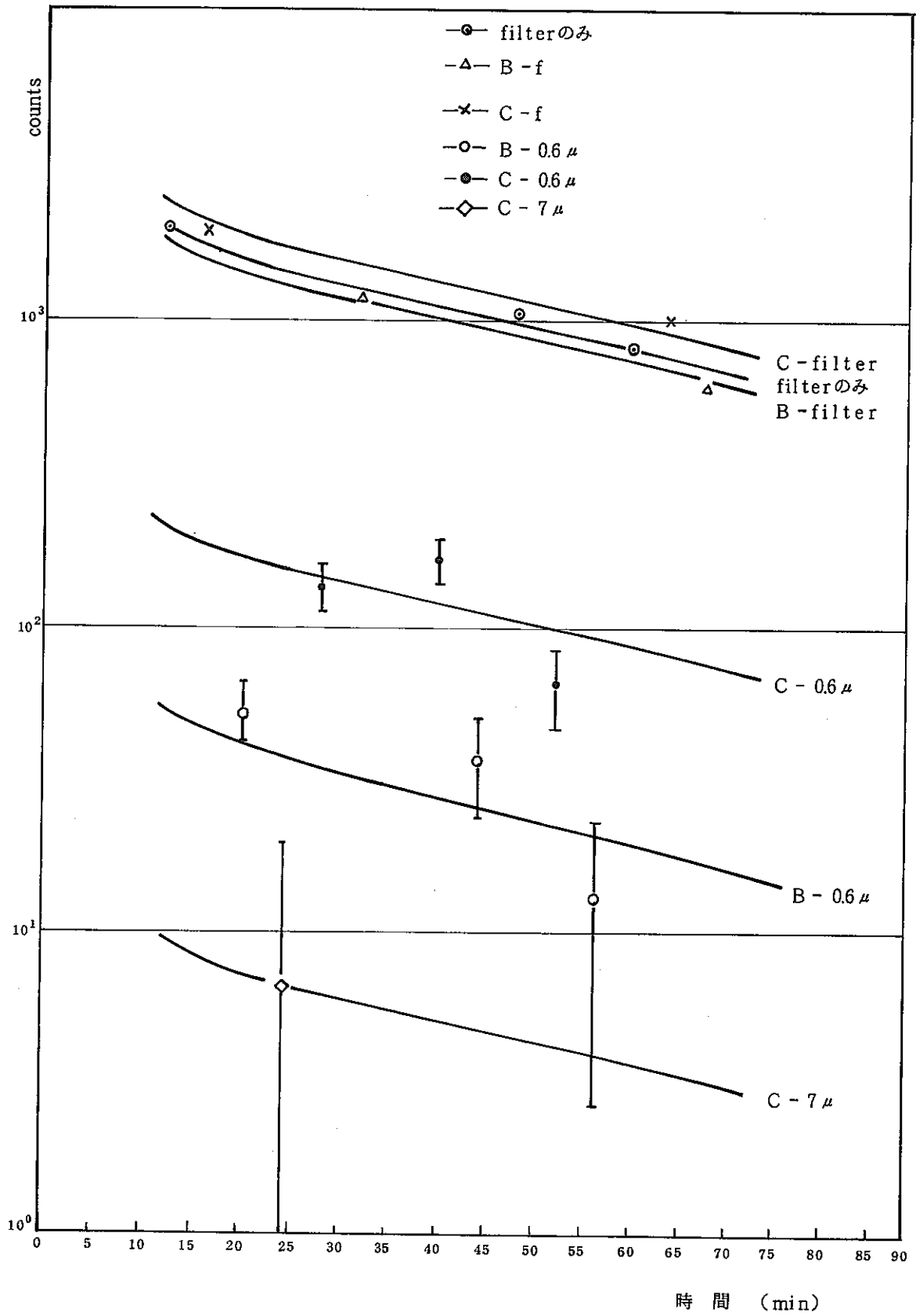


Fig. 12 ラドン娘核種の減衰曲線

試作装置による粒径別試料

午前中採取：換気状態

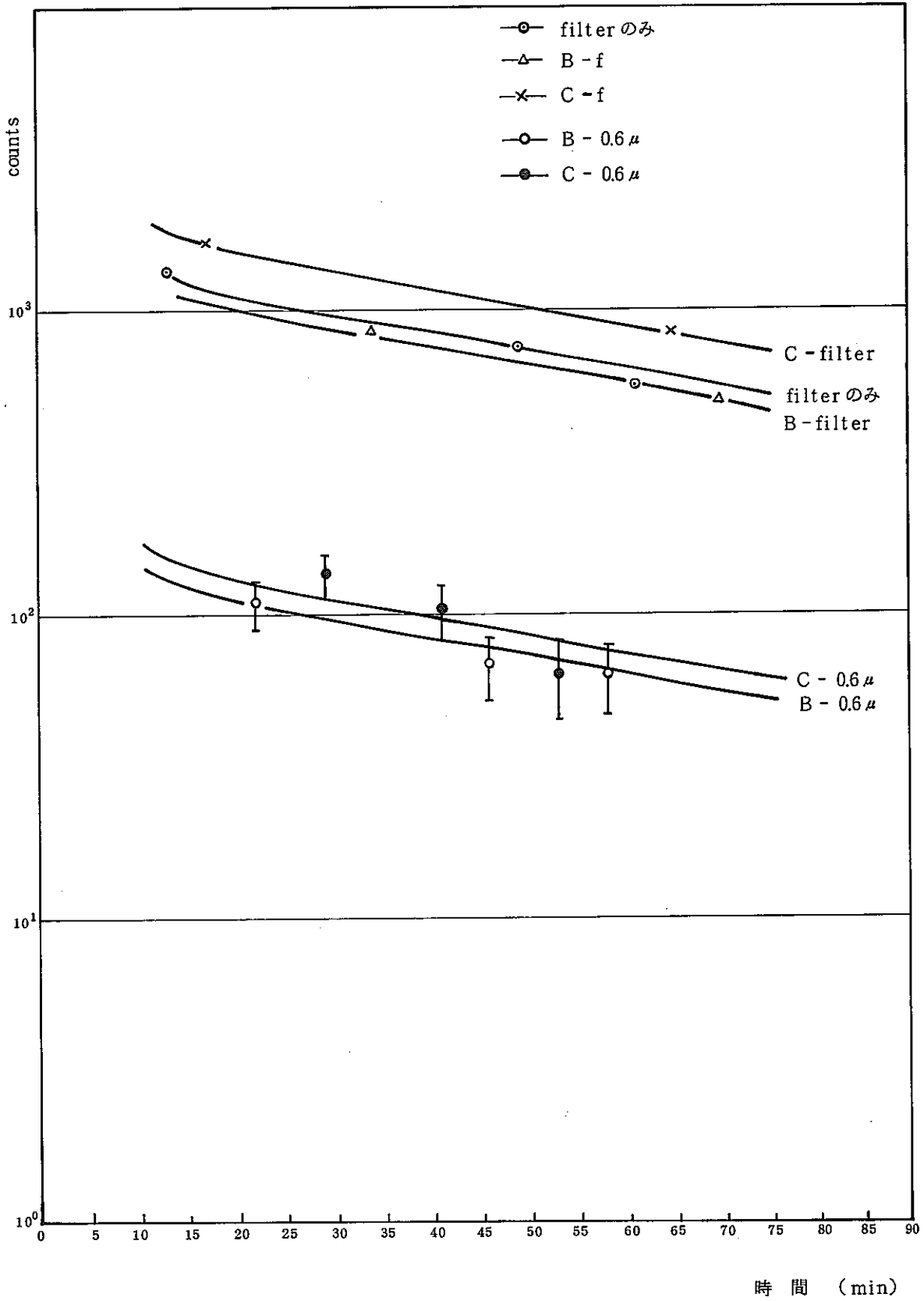


Fig. 13 ラドン娘核種の減衰曲線 試作装置による粒径別試料
 午後採取：換気状態

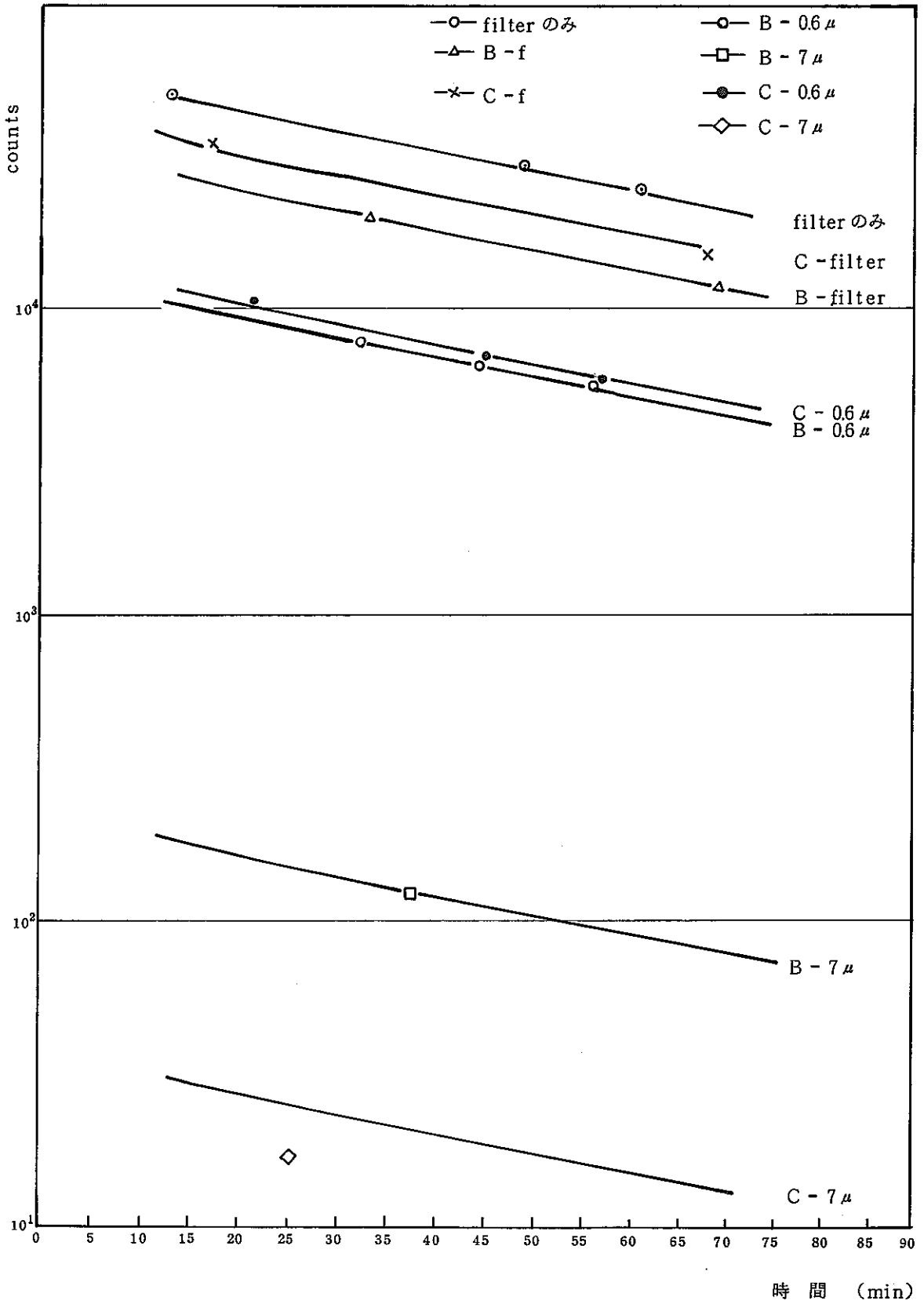


Fig. 14 ラドン娘核種の減衰曲線 試作装置による粒径別試料
夜間採取，無換気状態

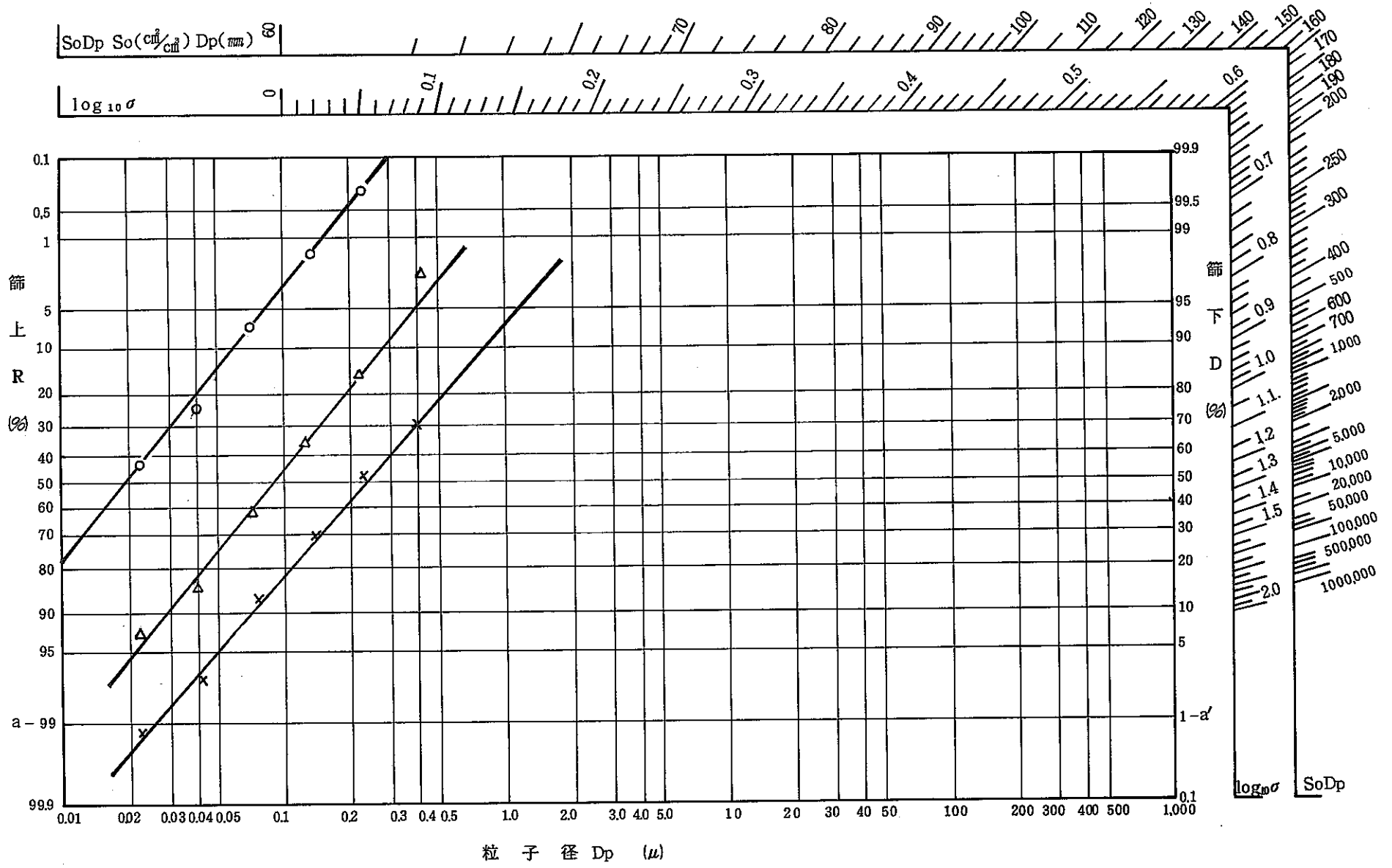


Fig.15 測定時の一般粒子粒径分布 午後：換気状態

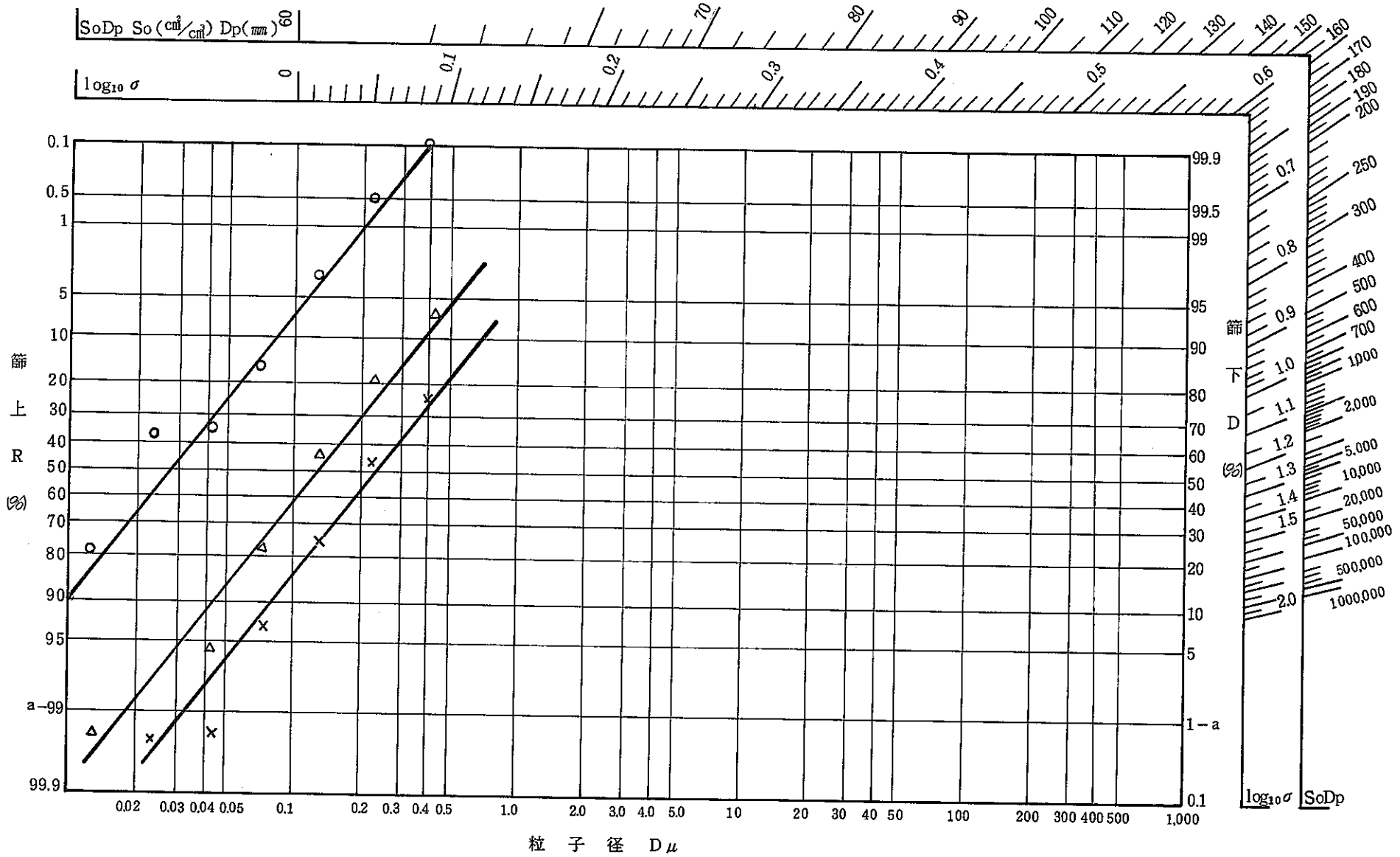


Fig. 16 採取開始時の一般粒子粒径 午後：換気停止直後

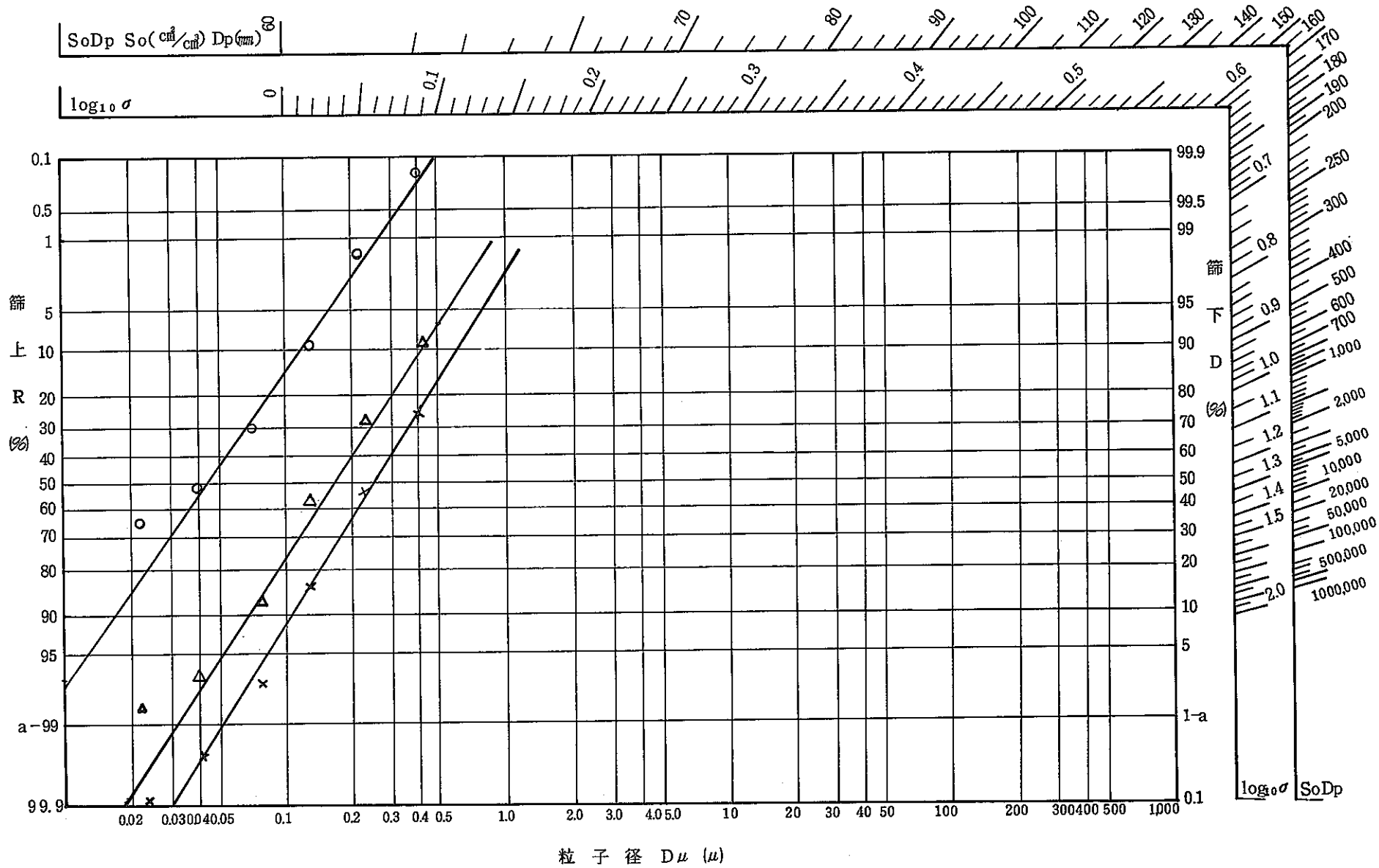


Fig. 17 採取終了時の一般粒子粒径分布 早朝：無換気状態

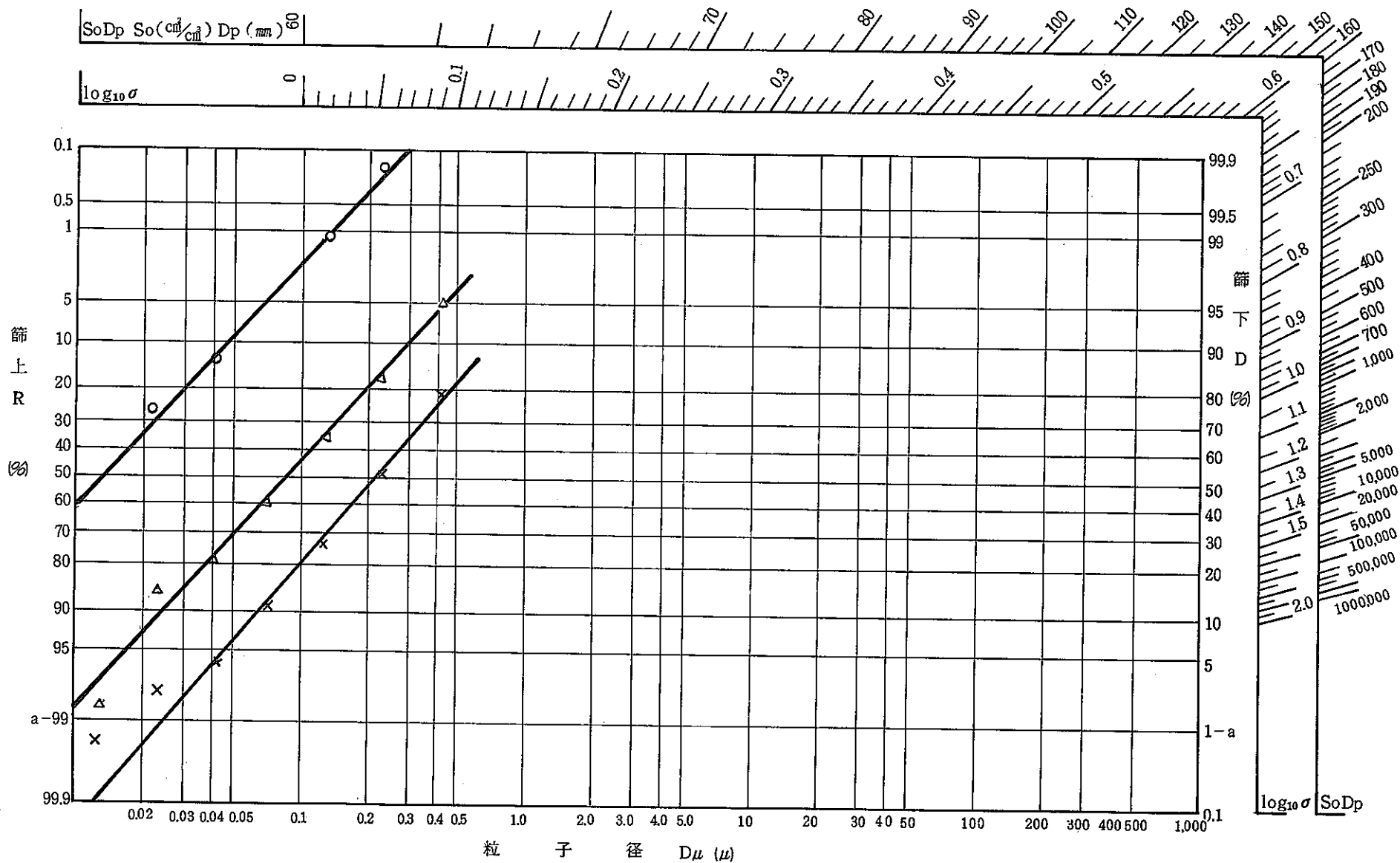


Fig. 18 一般粒子の粒径分布 午前中：換気状態

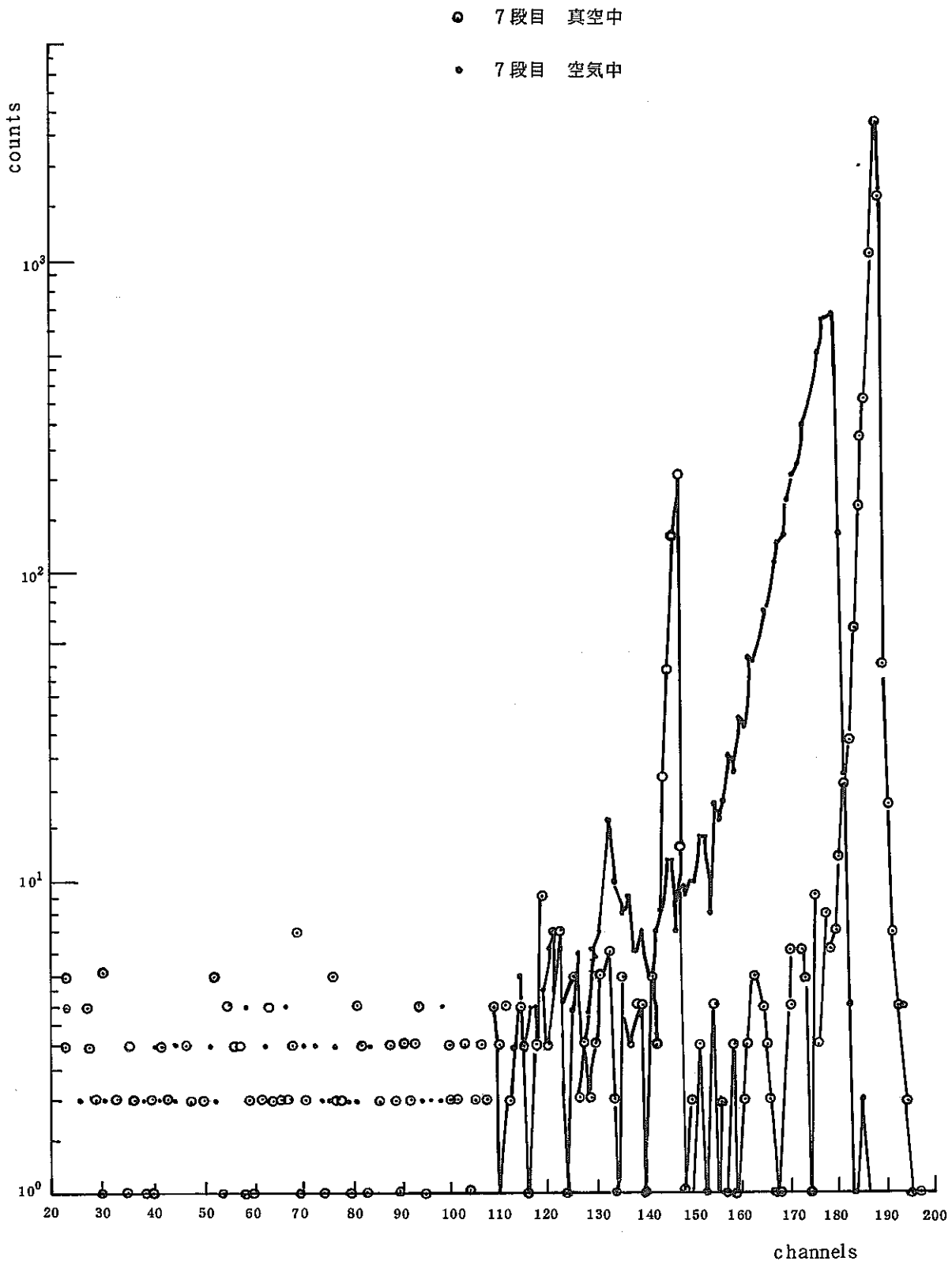


Fig. 19 試作装置捕集板上試料の α スペクトラム ($0.6 \mu m$ 相当)

○ 粉塵（タバコの煙）付 真空中

● 粉塵（タバコの煙）付 空气中

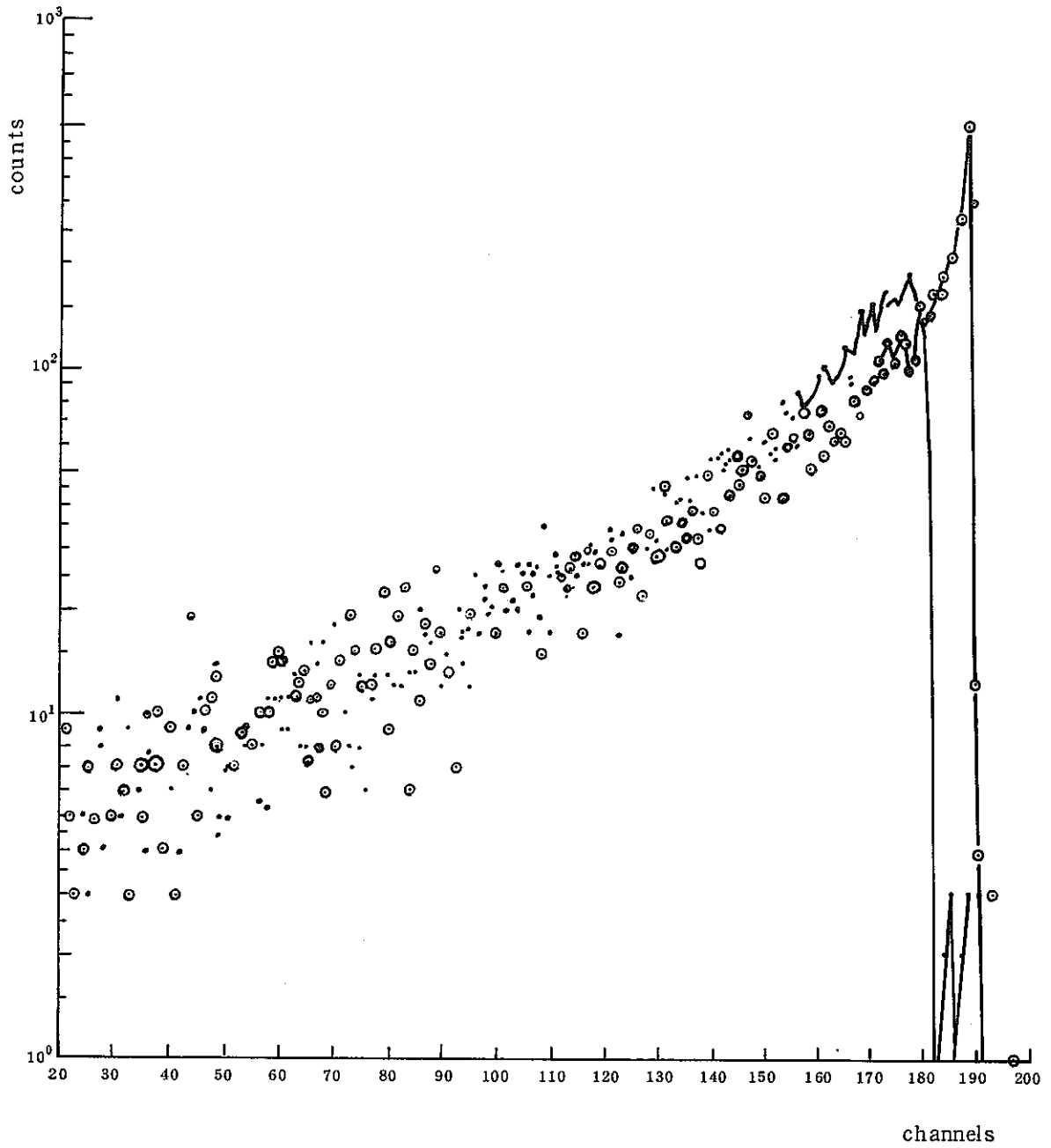


Fig. 20 捕集板上試料の上に非放射性試料が累積した時の
 α スペクトルの乱れ

別添 I

インパクト性能に関する考察

1. 捕集粒径と計算粒径の差について

本文 5.1 項に示したように捕集されたであろう粒子径 $0.34\ \mu\text{m}$ に対し、捕集粒径として計算された粒径は $0.6\ \mu\text{m}$ である。両者の違いの原因の一つは先にも述べた如くジェット孔の径の差にあると思われるが、その他に計算時に採用した衝突パラメータやインパクトステージ（孔のあいている板）の入気側の水平方向の空気流や粒子の密度などにも原因があるらしい。これ等について検討するため、次項に異なった衝突パラメータの例について述べ、さらにそれによる計算例を示すことにする。

2. インパクト諸元の計算法

Marple らの報告書^(脚注1)に従って述べる。

衝突効率 (impactor efficiency) は Stokes 数 (St) の $\frac{1}{2}$ 乗によって表現することができる。Stokes 数は粒子の stopping 距離とインパクトの細管 (穴) の半径の比として定義される。

$$S_{tk} = \frac{\rho_p C V_o D_p^2 / 18 \mu}{W/2} = \frac{2 \rho_p C V_o D_p^2}{18 \mu W} \quad (1)$$

ここで, W : ジェット流の直径, 細管 (穴) の直径 Dh に対し

$$W = Dh$$

ρ_p : 粒子の密度

C : Cunningham のスリップ補正係数

$$C = 1 + \frac{0.163}{D'_p P'_2} + \frac{0.0549}{D'_p P'_2} \exp\left\{-6.66 D'_p P'_2\right\} \quad (脚注2) \quad (2)$$

D'_p は μm で表した粒子の直径, P'_2 は細管 (穴) の出口での静圧で気圧で表す。

μ : 流体 (空気) の粘性係数: 1.81×10^{-4} poise (g/cm/sec)

P_1 : 入気側の静圧

P_2 : 細管 (穴) の出口側の静圧

$$P_2 = P_1 - \frac{1}{2} \rho V_o^2 \quad (3)$$

V_o : 細管 (穴) を流れる流体の速度

ρ : 流体 (空気) の密度: 1.205×10^{-3} g/cm³

(脚注1) Virgil A. Marple and Klans Willeke "Inertial Impactors: Theory, Design and Use" in Fine Particles: Aerosol Generation, Measurement, Sampling and Analysis, pp 412-446 B. r. H. Liu (ed), Academic Press, Inc., New York. (1976)

S/W が 0.6 以上, Reynolds 数 (Re) が 100 から 1000 の範囲, T/W が 1 以上で 50% の衝突効率に対する $\sqrt{S_{tk}} = \sqrt{S_{tk50}}$ は 0.47 であった。S/W が小さくなるかまたは Re が大きくなると $\sqrt{S_{tk50}}$ は小さくなる。

ここで多孔式のインパクトに拡張して述べる。

$$Re = \frac{\rho V_0 W}{\mu} = \frac{4 \rho Q}{\pi n \mu W} \quad \dots\dots\dots (4)$$

T : 細管 (穴) の長さ

n : 多孔式の穴の数

Q : 容積で表示した流速

$$V_0 : \frac{4 Q}{\pi n W^2} \quad \dots\dots\dots (5)$$

また衝突効率 50% の時の粒子径を D_{50} とすれば

$$S_{tk50} = \frac{4 \rho_p Q C D_{50}^2}{9 \pi n \mu W^2} \quad \dots\dots\dots (6)$$

$$Q = \frac{\pi}{12} \left(\frac{\rho_p}{S_{tk50}} \right)^{1/2} \left(\frac{Re}{\rho} \right) \mu \sqrt{C D_{50} n} \quad \dots\dots\dots (7)$$

$$W = \left(\frac{\rho_p Re^{1/2}}{9 \rho S_{tk50}} \right) \sqrt{C D_{50}} = \left(\frac{4 \rho_p Q C D_{50}^2}{9 \pi n \mu S_{tk50}} \right)^{1/3} \quad \dots\dots\dots (8)$$

$$D_{50} = \left(\frac{9 \mu \pi n S_{tk50} W^3}{4 \rho_p C Q} \right)^{1/2} \quad \dots\dots\dots (9)$$

などの式が求められる。

(脚注 2) $C = 1 + A \frac{\ell}{a}$ という表示方法と (2) 式は全く同じである。 ℓ は空気分子の平均自由行程, a は粒子の半径を表わし, 式中の A は,

$$A = 1.25 + 0.42 \exp \left(-0.87 \frac{a}{\ell} \right) \text{ である。 } \ell \doteq \frac{4.967 \times 10^{-3}}{P}$$

で P は mmHg で表わした圧力で, 1 気圧のとき $\ell \doteq 0.65 \times 10^{-5} \text{ cm}$ となる。

3. 計算式の相違

本文(16)式との相違は、本文の 2φ と前項の S_{ik50} の相違で、前者が 0.28 であったのに対し、後者は $(0.47)^2 \doteq 0.221$ となったためである。前者は前項の文献の $Re \doteq 20$ の場合に相当する（両パラメータ共、文献上の数値である）。以下、2項の方法で計算する。

4. 計算例

4.1 設計値の D_{50}

本文に示す設計値は $W = 0.037 \text{ cm}$, $T = 0.2 \text{ cm}$, $S = 0.1 \text{ cm}$, $n = 204$,
 $Q = 5.0 \times 10^4 / 60 = 8333 \times 10^2 \text{ cm}^3/\text{sec}$ なので, $S/W \approx 2.7$, $T/W \approx 5.4$
 $Re = 936 \times 10^2$ となり, 2項の各式がそのまま使用できる。第1回の近似計算で
 D_{50} が $0.52 \mu\text{m}$ となったので, $0.5 \mu\text{m}$ に対する C を求めると $C \approx 1.326$ となる。
 一方, $V_0 = 3.799 \times 10^3 \text{ cm}/\text{sec}$ なので, P_2 は(3)式より $P_2 = P_1 - 8.6955 \times 10^3$
 であるが, ρ を $980 \text{ cm}/\text{sec}^2$ とすれば差圧は 8.87 cm Aq となり P_2 を大気圧と同一に
 考えて良い。(9)式より $D_{50} = 0.514 \mu\text{m}$ となる。この時, $C \approx 1.317$ なので更にそれ
 を補正すると $0.156 \mu\text{m}$ となる。従って, この計算法によると $0.51 \sim 0.52 \mu\text{m}$ の粒
 径が 50% Cut-off 径となる。 $0.6 \mu\text{m}$ より小さいもののそれ程大きな差はない。

W が多少小さくて $W = 0.035 \text{ cm}$ の場合は $Re \approx 9893 \times 10^2$ となる。 $\sqrt{S_{tk50}}$
 は多少小さくなり恐らく 6%位下って 0.44 位と考えられる。これによって計算すると
 $D_{50} = 0.435 \mu\text{m}$ となる。即ち $0.44 \mu\text{m}$ の粒径が 50% Cut-off 径となる。なお,
 ここでは $\rho_p = 1$ として計算している。

4.2 幾つかの D_{50} について

(8)式より幾つかの D_{50} についてジェット孔径を計算する。 ρ_p は何れも 1 である。
 D_{50} は 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, $1.0 \mu\text{m}$ とし, 他の例えば n , S , T
 は前回の設計値通り $n = 204$, $S = 0.1 \text{ cm}$, $T = 0.2 \text{ cm}$ とする。 D_{50} を $0.3 \mu\text{m}$ から
 $1.0 \mu\text{m}$ まで変化させる。始め $\sqrt{S_{tk50}} = 0.47$ として計算し W を求めてから Re を計
 算し, その Re に対する $\sqrt{S_{tk50}}$ を推定し W を補正する。その結果は表-1 となる。
 これより, 例えば, $W = 0.32 \text{ mm}$ ならば $0.39 \mu\text{m}$, $W = 0.42 \text{ mm}$ ならば $0.63 \mu\text{m}$,
 $W = 0.49 \text{ mm}$ ならば $0.81 \mu\text{m}$ の粒径が 50% Cut-off となる。

5. 粒径差の原因について

何れの計算においても $\rho_p = 1.0$ としてきた。しかしながらラドン娘核種の粒径は粒子の表面積に依存するため空気力学的な径ではなく実際の径として考えねばならない。今 ρ_p が大となったとすると、同一空気力学径ならば実際の径は小さくなる。従って、予備実験時と本実験時の ρ_p が異なっているとすればインパクトに捕集される娘核種の粒径は異なることとなる。例えば ρ_p が大きくなればより粒径の小さい娘核種が同一インパクト捕集面に衝突することになる。(9)式より ρ_p の変化の割合を求める。0.44 μm (W: 0.035 cm) が 0.34 μm に変化するには 1.67 倍の変化を考えねばならない。(脚注3) このような変化が起り得るか否か全く不明であるが原因の一つにはなるであろう。夏季の浮遊粒子と冬季の浮遊粒子の種類が全く異なるのならば有り得ると思うが、今のところ明らかではない。

水平方向の流れによって $\sqrt{S_{tk50}}$ は小さい方へ、即ち D_{50} は小さな方へシフトすると言われている。しかし Andersen Sampler のような多孔型ではこの現象は少いと言う。しかし無視し得る訳ではない。

(脚注3) 粒径によって Cunningham の補正係数 C が異なるがこの数値を含んでいない。C は粒径と比例していないが C を考慮すると 1.52 倍位になるはずである。 ρ_p が 0.8 だった粒子が 1.2 になると言った程度である。

表-1 50% Cut off 径とジェット孔径

D_{50} μm	C	仮計算 W' mm	Re	Re に対する $\sqrt{S_{tk50}}$	補正孔径 W mm
0.3	1.543	0.272	1273	0.4635	0.275
0.4	1.408	0.319	1085	0.4645	0.322
0.5	1.326	0.363	954	0.4655	0.365
0.6	1.272	0.404	857	0.4660	0.406
0.7	1.233	0.444	780	0.4670	0.446
0.8	1.204	0.481	720	0.4675	0.483
0.9	1.181	0.517	670	0.4680	0.518
1.0	1.163	0.552	627	0.4685	0.553

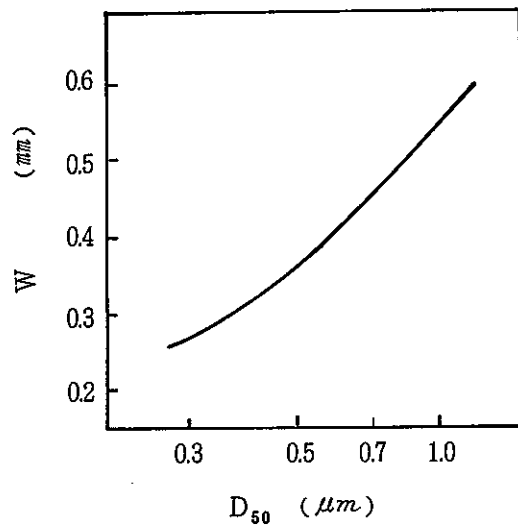


Fig 1 50% cut off 径とジェット孔径

別添Ⅱ

エネルギー分別測定装置による
ラドン娘核種の決定

1. 観測方程式の導出

^{218}Po (RaA) と ^{214}Po (RaC') から放出される α 線を測定することにより、ラドン娘核種の量を求めることができる。 ^{218}Po の放射能強度 I_{AA} は ^{218}Po が崩壊したものを測定することにより、また ^{214}Po の放射能強度は ^{218}Po の崩壊に帰因する I_{AC} , ^{214}Pb の崩壊に帰因する I_{BC} そして ^{214}Bi の崩壊に帰因する I_{CC} を測定しその算術和を行うことにより求めることができる。ここでサンプリング時間を T_s , サンプリングを終了する時間を 0 におきかえる定数を t , サンプリング停止後から測定するまでの放置時間を t_0 , 測定時間を t_m , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi の崩壊定数をそれぞれ λ_A , λ_B , λ_C , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi の捕集率をそれぞれ C_A , C_B , C_C とおくと, I_{AA} , I_{AC} , I_{BC} , I_{CC} は次のようになる。

$$I_{AA} = \int_0^{t_s} dt \int_{t_s-t+t_0}^{t_s-t+t_0+t_m} C_A \exp(-\lambda_A t_0) dt$$

$$= C_A \exp(-\lambda_A t_0) \frac{\{1 - \exp(-\lambda_A t_s)\}\{1 - \exp(-\lambda_A t_m)\}}{\lambda_A^2} \dots\dots(1)$$

$$I_{AC} = \int_0^{t_s} dt \int_{t_s-t+t_0}^{t_s-t+t_0+t_m} C_A \lambda_B \lambda_C \left\{ \frac{\exp(-\lambda_A t)}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} + \frac{\exp(-\lambda_B t)}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{\exp(-\lambda_C t)}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \right\} dt$$

$$= C_A \lambda_B \lambda_C \left[\frac{\exp(-\lambda_A t_0)\{1 - \exp(-\lambda_A t_s)\}\{1 - \exp(-\lambda_A t_m)\}}{\lambda_A^2 (\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} + \right.$$

$$\left. \frac{\exp(-\lambda_B t_0)\{1 - \exp(-\lambda_B t_s)\}\{1 - \exp(-\lambda_B t_m)\}}{\lambda_B^2 (\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \right.$$

$$\left. \frac{\exp(-\lambda_C t_0)\{1 - \exp(-\lambda_C t_s)\}\{1 - \exp(-\lambda_C t_m)\}}{\lambda_C^2 (\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \right] \dots\dots(2)$$

$$\begin{aligned}
 I_{BC} &= \int_0^{t_s} dt \int_{t_s-t+t_0}^{t_s-t+t_0+t_m} C_B \lambda_C \left\{ \frac{\exp(-\lambda_B t)}{\lambda_C - \lambda_B} + \frac{\exp(-\lambda_C t)}{\lambda_B - \lambda_C} \right\} dt \\
 &= C_B \lambda_C \frac{\exp(-\lambda_B t_0) \{1 - \exp(-\lambda_B t_s)\} \{1 - \exp(-\lambda_B t_m)\}}{\lambda_B^2 (\lambda_C - \lambda_B)} + \\
 &\quad \frac{\exp(-\lambda_C t_0) \{1 - \exp(-\lambda_C t_s)\} \{1 - \exp(-\lambda_C t_m)\}}{\lambda_C^2 (\lambda_B - \lambda_C)} \dots \dots \dots (3)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 I_{CC} &= \int_0^{t_s} dt \int_{t_s-t+t_0}^{t_s-t+t_0+t_m} C_C \exp(-\lambda_C t) dt \\
 &= C_C \exp(-\lambda_C t_0) \frac{\{1 - \exp(-\lambda_C t_s)\} \{1 - \exp(-\lambda_C t_m)\}}{\lambda_C^2} \dots \dots \dots (4)
 \end{aligned}$$

ここで、サンプリング時間を5分、サンプリング開始時間及び終了時間を(t_{s1}, t_{s1}), この測定時間の ^{218}Po ウィンドウ(1 MeV)での計数値を M_{A1} , ^{214}Po ウィンドウ(1 MeV)での計数値を M_{C1} , ^{218}Po , ^{214}Po それぞれに対する計数効率を η_A, η_C とれば、次なる観測方程式が得られる。

(2 分, 6 分)	4982658 $\eta_A C_A = M_{A1}$	}	RaA channel (5)
(7, 1 1)	1599445 $\eta_A C_A = M_{A2}$			
(1 2.1 6)	0513426 $\eta_A C_A = M_{A3}$			
(1 7.2 1)	0164811 $\eta_A C_A = M_{A4}$			
(2 2.2 6)	0052905 $\eta_A C_A = M_{A5}$			
(2 7.3 1)	0016983 $\eta_A C_A = M_{A6}$			
(2 分, 6 分)	0216927 $\eta_C C_A + 3697295 \eta_C C_B + 15944967 \eta_C C_C = M_{C1}$	}		
(7, 1 1)	0449527 $\eta_C C_A + 5657084 \eta_C C_B + 13372731 \eta_C C_C = M_{C2}$			

$$\begin{aligned}
 (12.16) \quad & 0.645984 \eta_c C_A + 6.990633 \eta_c C_B + 11.215446 \eta_c C_C = M_{c3} \\
 (17.21) \quad & 0.788983 \eta_c C_A + 7.836584 \eta_c C_B + 9.406174 \eta_c C_C = M_{c4} \\
 (22.26) \quad & 0.882413 \eta_c C_A + 8.306648 \eta_c C_B + 7.888773 \eta_c C_C = M_{c5} \\
 (27.31) \quad & 0.935117 \eta_c C_A + 8.490505 \eta_c C_B + 6.616159 \eta_c C_C = M_{c6}
 \end{aligned}$$

RaC channel

..... (6)

2. 観測方程式の解

2.1 分割和法による解

(5)式より(7)式が, (6)式より(8)式が求まる。

$$7330228 \eta_A C_A = \sum_{i=1}^6 M_{Ai} \quad \dots\dots\dots (7)$$

$$\left. \begin{aligned} 1312438 \eta_C C_A + 16345012 \eta_C C_B + 40533146 \eta_C C_C &= \sum_{i=1}^3 M_{Ci} \\ 2606513 \eta_C C_A + 24633737 \eta_C C_B + 23911106 \eta_C C_C &= \sum_{i=4}^6 M_{Ci} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (8)$$

ここで,

$$\left. \begin{aligned} \sum_{i=1}^3 M_{Ci} - 1312438 \eta_C C_A & \quad M_{C1} \sim 3 \\ \sum_{i=4}^6 M_{Ci} - 2606513 \eta_C C_A & \quad M_{C4} \sim 6 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (9)$$

とおくと(8)式は次のようになる。

$$\left. \begin{aligned} 16345012 \eta_C C_B + 40533146 \eta_C C_C &= M_{C1} \sim 3 \\ 24633737 \eta_C C_B + 23911106 \eta_C C_C &= M_{C4} \sim 6 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (10)$$

従って, (7)式及び(10)式より(11)~(13)式が導びかれる。

$$\left(0.1364214 \sum_{i=1}^6 M_{Ai} \right) \frac{1}{\eta_A} = C_A \quad \dots\dots\dots (11)$$

$$\left(-0.03934977 M_{C1} \sim 3 + 0.06670415 M_{C4} \sim 6 \right) \frac{1}{\eta_C} = C_B \quad \dots\dots\dots (12)$$

$$\left(0.04053898 M_{C1} \sim 3 - 0.02689848 M_{C4} \sim 6 \right) \frac{1}{\eta_C} = C_C \quad \dots\dots\dots (13)$$

また, background と channel 間の interference がないとき, 誤差は次式となる。 (脚注)

$$C_A \frac{1}{\left(\sum_{i=1}^6 M_{A1}\right)^{\frac{1}{2}}} = \Delta C_A \quad \text{or} \quad 0.1364214 \frac{1}{\eta_A \left(\sum_{i=1}^6 M_{A1}\right)^{\frac{1}{2}}} = \Delta C_A \dots\dots\dots (14)$$

$$\left\{ 0.001548404 (\Delta M'_{C1 \sim 3})^2 + 0.004449444 (\Delta M'_{C4 \sim 6})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \frac{1}{\eta_C} = \Delta C_B \dots\dots\dots (15)$$

$$\left\{ 0.001643409 (\Delta M'_{C1 \sim 3})^2 + 0.000723528 (\Delta M'_{C4 \sim 6})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \frac{1}{\eta_C} = \Delta C_C \dots\dots\dots (16)$$

となる。ただし、ここで

$$\left\{ \left(\sum_{i=1}^3 M_{C1}\right) + 0.03205698 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \left(\sum_{i=1}^6 M_{A1}\right) \right\}^{\frac{1}{2}} = \Delta M'_{C1 \sim 3} \dots\dots\dots (17)$$

$$\left\{ \left(\sum_{i=4}^6 M_{C1}\right) + 0.12644010 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \left(\sum_{i=1}^6 M_{A1}\right) \right\}^{\frac{1}{2}} = \Delta M'_{C4 \sim 6} \dots\dots\dots (18)$$

とおいている。

(脚注) $F = f(x, y, z)$ のとき、伝播誤差 ΔF は次のように表示される。

$$\Delta F = \left\{ \left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)^2 (\Delta x)^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial y}\right)^2 (\Delta y)^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial z}\right)^2 (\Delta z)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \dots\dots\dots (A)$$

従って、(12)式 C_B の誤差 ΔC_B を求める場合を例にとればその手順は以下のようになる。

$$\left\{ -0.03934977 \left(\sum_{i=1}^3 M_{C1} - 1312438 \eta_C C_A\right) + 0.06670415 \left(\sum_{i=4}^6 M_{C1} - 2606513 \eta_C C_A\right) \right\} \frac{1}{\eta_C} = C_B \dots\dots\dots (12')$$

(A)式を(12')式に適用し、

$$\Delta C_B = \frac{1}{\eta_C} \left[0.03934977^2 \left\{ \Delta \left(\sum_{i=1}^3 M_{C1} - 1312438 \eta_C C_A\right) \right\}^2 + 0.06670415^2 \left\{ \Delta \left(\sum_{i=4}^6 M_{C1} - 2606513 \eta_C C_A\right) \right\}^2 \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{1}{\eta_c} \left[0.001548404 \left\{ \sum_{i=1}^3 M_{C_i} + 1.312438^2 \eta_c^2 (\Delta C_A)^2 \right\} \right. \\
 &\quad \left. + 0.004449444 \left\{ \sum_{i=4}^6 M_{C_i} + 2.606513^2 \eta_c^2 (\Delta C_A)^2 \right\} \right]^{\frac{1}{2}} \\
 &= \frac{1}{\eta_c} \left[0.001548404 \left\{ \sum_{i=1}^3 M_{C_i} + 0.03205698 \frac{\eta_c^2}{\eta_A^2} \left(\sum_{i=1}^6 M_{A_i} \right) \right\} \right. \\
 &\quad \left. + 0.004449444 \left\{ \sum_{i=4}^6 M_{C_i} + 0.12644010 \frac{\eta_c^2}{\eta_A^2} \left(\sum_{i=1}^6 M_{A_i} \right) \right\} \right]^{\frac{1}{2}} \\
 &= \frac{1}{\eta_c} \left\{ 0.001548404 (\Delta M'_{1 \sim 3})^2 + 0.004449444 (\Delta M'_{4 \sim 6})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \dots\dots\dots (15)
 \end{aligned}$$

となる。

2.2 荷重最小自乗法による解

最小自乗法は偏差の自乗和を最小にする手法であるが測定値のもつ確からしさは何れの測定値も同一であると仮定している。しかし、測定の確からしさは同じではなく、これを考慮した最小自乗法を適用しなければならない。

確からしさは測定値の平方誤差で表わされ、その自乗を本計算の荷重 Weight とすることができる。今、Weight を P_i とすると荷重観測方程式は、

$$\left. \begin{aligned}
 \sqrt{P_1} a_1 x + \sqrt{P_1} b_1 y + \dots\dots\dots + \sqrt{P_1} c_1 z &= \sqrt{P_1} M_1 \\
 \sqrt{P_2} a_2 x + \sqrt{P_2} b_2 y + \dots\dots\dots + \sqrt{P_2} c_2 z &= \sqrt{P_2} M_2 \\
 \vdots & \\
 \sqrt{P_i} a_i x + \sqrt{P_i} b_i y + \dots\dots\dots + \sqrt{P_i} c_i z &= \sqrt{P_i} M_i
 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (19)$$

となる。x, y …… z は未知数である。

従って、

$$\left. \begin{aligned}
 \sum P_i a_i^2 x + \sum P_i a_i b_i y + \dots\dots\dots + \sum P_i a_i c_i z &= \sum P_i a_i M_i \\
 \sum P_i a_i b_i z + \sum P_i b_i^2 y + \dots\dots\dots + \sum P_i a_i c_i z &= \sum P_i b_i M_i \\
 \vdots & \\
 \vdots &
 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (20)$$

$$\left. \begin{aligned} & \sum P_i a_i c_i x + \sum P_i b_i c_i y + \dots + \sum P_i C_i^2 Z = \sum P_i C_i M_i \end{aligned} \right\}$$

が得られる。本例の場合は(6)式より、

$$\left. \begin{aligned} M_{C_1} - 0.216927 \eta_C C_A &= M'_{C_1} \\ M_{C_2} - 0.449527 \eta_C C_A &= M'_{C_2} \\ M_{C_3} - 0.645984 \eta_C C_A &= M'_{C_3} \\ M_{C_4} - 0.788983 \eta_C C_A &= M'_{C_4} \\ M_{C_5} - 0.882413 \eta_C C_A &= M'_{C_5} \\ M_{C_6} - 0.935117 \eta_C C_A &= M'_{C_6} \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (21)$$

とし、更に、 ΔC_A はもともと Weight を与えて求めた値なので(4)式を代入して(第2項の係数を自乗する。)

$$\left. \begin{aligned} (M_{C_1} + 0.000875774 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \sum_{i=1}^6 M_{A_i})^{\frac{1}{2}} &= \Delta M'_{C_1} \\ (M_{C_2} + 0.00376077 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \sum_{i=1}^6 M_{A_i})^{\frac{1}{2}} &= \Delta M'_{C_2} \\ (M_{C_3} + 0.00776620 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \sum_{i=1}^6 M_{A_i})^{\frac{1}{2}} &= \Delta M'_{C_3} \\ (M_{C_4} + 0.0115851 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \sum_{i=1}^6 M_{A_i})^{\frac{1}{2}} &= \Delta M'_{C_4} \\ (M_{C_5} + 0.014491 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \sum_{i=1}^6 M_{A_i})^{\frac{1}{2}} &= \Delta M'_{C_5} \\ (M_{C_6} + 0.0162741 \frac{\eta_C^2}{\eta_A^2} \sum_{i=1}^6 M_{A_i})^{\frac{1}{2}} &= \Delta M'_{C_6} \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (22)$$

として、

$$\Delta M_{c1}' / M_{c1}' \stackrel{\vdots}{=} \sqrt{P_1}, \dots \Delta M_{c6}' / M_{c6}' \stackrel{\vdots}{=} \sqrt{P_6}$$

となる。即ち、(6)式を

$$\left. \begin{aligned} 3697295 \eta_c C_B + 15944969 \eta_c C_C &= M_{c1}' \\ 5657084 \eta_c C_B + 13372731 \eta_c C_C &= M_{c2}' \\ 6990633 \eta_c C_B + 11215446 \eta_c C_C &= M_{c3}' \\ 7836584 \eta_c C_B + 9406174 \eta_c C_C &= M_{c4}' \\ 8306648 \eta_c C_B + 7888773 \eta_c C_C &= M_{c5}' \\ 8490505 \eta_c C_B + 6616159 \eta_c C_C &= M_{c6}' \end{aligned} \right\} \dots (6)'$$

のように書き直し、更に

$$b_i \eta_c C_B + C_i \eta_c C_C = M_{ci}' \dots (6)''$$

として表すと、

$$\left. \begin{aligned} \sum_{i=1}^6 P_i b_i^2 \eta_c C_B + \sum_{i=1}^6 P_i b_i C_i \eta_c C_C &= \sum_{i=1}^6 P_i b_i M_{ci}' \\ \sum_{i=1}^6 P_i b_i C_i \eta_c C_B + \sum_{i=1}^6 P_i C_i^2 \eta_c C_C &= \sum_{i=1}^6 P_i C_i M_{ci}' \end{aligned} \right\} \dots (20)'$$

の方程式が得られ $\eta_c C_B$, $\eta_c C_C$ が求められる。

一方、この方法の誤差は測定値の推定誤差より、偏差は観測方程式に解を代入した時の偏差より求められ、両者はほぼ同じ値になることが期待されるが必ずしもそうとは限らない。誤差は次のようにして求められる。

(20) 式を次の行列

$$\begin{vmatrix} B_1 & C_1 \\ B_2 & C_2 \end{vmatrix} = A \dots\dots\dots (24)$$

とし、その逆行列を

$$-A = \begin{vmatrix} X_1 & Y_1 \\ X_2 & Y_2 \end{vmatrix} \dots\dots\dots (25)$$

とすると、

$$\left. \begin{aligned} \eta_C C_B &= X_1 \left(\sum_{i=1}^6 P_i b_i M'_{C_i} \right) + Y_1 \left(\sum_{i=1}^6 P_i C_i M'_{C_i} \right) \\ \eta_C C_C &= X_2 \left(\sum_{i=1}^6 P_i b_i M'_{C_i} \right) + Y_2 \left(\sum_{i=1}^6 P_i C_i M'_{C_i} \right) \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (26)$$

となる。今、 $\sum_{i=1}^6 P_i b_i M'_{C_i}$ の誤差を $\Delta M'_{Cb}$ 、 $\sum_{i=1}^6 P_i C_i M'_{C_i}$ の誤差を $\Delta M'_{Cc}$ とすると C_B 、 C_C の誤差 ΔC_B 、 ΔC_C は、

$$\left. \begin{aligned} \eta_C \Delta C_B &= \left\{ X_1^2 (\Delta M'_{Cb})^2 + Y_1^2 (\Delta M'_{Cc})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \\ \eta_C \Delta C_C &= \left\{ X_2^2 (\Delta M'_{Cb})^2 + Y_2^2 (\Delta M'_{Cc})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (27)$$

となる。更に M'_{C_1} 、 M'_{C_2} 、…… M'_{C_6} の誤差を $\Delta M'_{C_1}$ 、 $\Delta M'_{C_2}$ 、…… $\Delta M'_{C_6}$ とすると、

$$\left. \begin{aligned} \Delta M'_{Cb} &= \left\{ \sum_{i=1}^6 (P_i b_i \Delta M'_{C_i})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \\ \Delta M'_{Cc} &= \left\{ \sum (P_i C_i \Delta M'_{C_i})^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (28)$$

となる。

3. 測定効率の推定

3.1 幾何効率

検出器の検出面に向って線源から放出された α 線はすべて検出面に到達しているものとする。

線源の半径 a , 検出器の半径 r , 両者の距離 h とする。点線源の場合の幾何効率 G_p は線源の中心から検出器の検出部を見た立体角を Ω とすると (Fig. 1)

$$G_p = \frac{\Omega}{4\pi} = \frac{1}{2}(1 - \cos \theta) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + r^2}} \right) \dots\dots\dots (29)$$

となる。ここで $D = \sqrt{h^2 + r^2}$ とおけば,

$$G_p = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{h}{D} \right) \dots\dots\dots (29)'$$

線源の拡りを考慮した幾何効率 G_s は,

$$G_s \doteq G_p - \frac{3}{16} a^2 \frac{r^2 h}{D^5} + \frac{5}{32} a^4 \frac{r^2 h}{D^9} \left(h^2 - \frac{3}{4} r^2 \right) + \dots\dots\dots (30)$$

もう一つの方法として,

$$G_s \doteq \frac{1}{2} \left[1 - \cos \theta \left\{ 1 - \frac{3a^2}{2h^2} \left(\frac{\sin 2\theta_2}{4} \right) \right\} \right] \dots\dots\dots (31)$$

がある。何れの式でもよい。

3.2 スペクトル補正

Fig. 2 のように片対数グラフにスペクトルをプロットする。ピークのチャンネルを N_p とする。ピーク付近を矩形で近似し, 低エネルギー側に対しては 1 ~ 3 本の指数関数の合成として近似する。

近似曲線は高エネルギー側で原スペクトルに沿って引き, その延長が低エネルギー側では下側に行くようにする。この曲線が原スペクトルの値になったところから次の曲線を引く。

合成して確める。

$$\left. \begin{aligned}
 \text{矩形の面積} & : S_R = C_{PR} \times \Delta N_P \\
 \text{曲線 1 の面積} & : S_1 = C_{P1} \int_{N_P}^0 \exp \left\{ -K_1(N_P - N) \right\} dN \\
 \text{曲線 2 の面積} & : S_2 = C_{P2} \int_{N_P}^0 \exp \left\{ -K_2(N_P - N) \right\} dN
 \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

ここで N はチャンネル N_0 , ΔN_P は矩形巾のチャンネル数を表す。

$$S = S_R + S_1 + S_2 + \dots \quad (33)$$

チャンネルの巾を ΔN とし, $\Delta N > \Delta N_P$ のとき, S'_1, S'_2 を次式で表す。

$$\left. \begin{aligned}
 S'_1 &= C_{P1} \int_{N_P}^{N_P - \Delta N} \exp \left\{ -K_1(N_P - N) \right\} dN \\
 S'_2 &= C_{P2} \int_{N_P}^{N_P - \Delta N} \exp \left\{ -K_2(N_P - N) \right\} dN
 \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

この時, 効率は次式となる。

$$[\text{効率}] = \frac{S_R + S'_1 + S'_2}{S} \times G_s \quad (35)$$

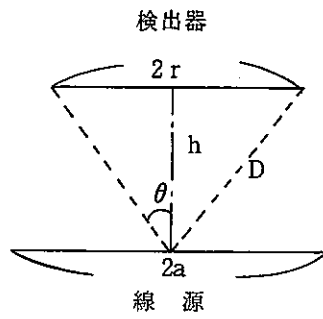


Fig. 1 検出器と線源の位置関係

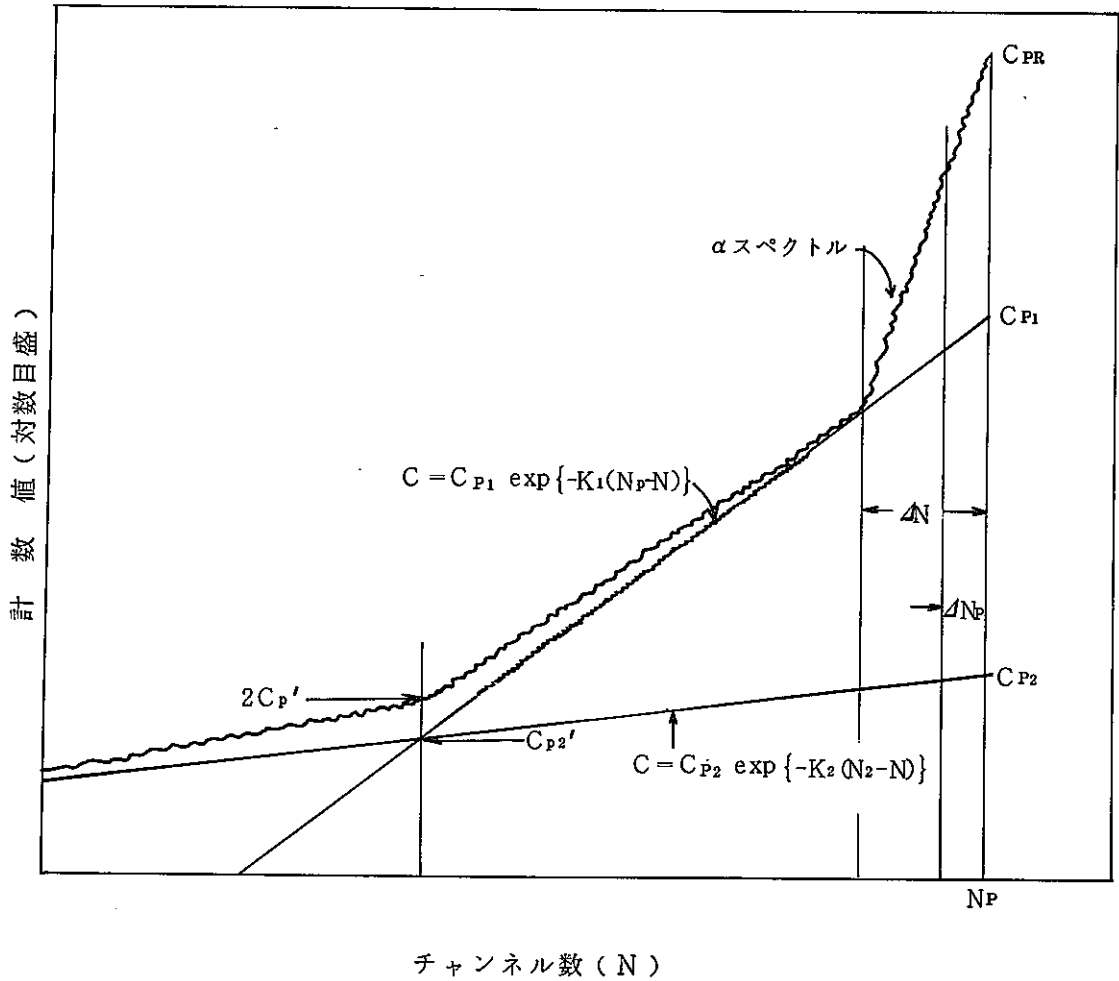


Fig. 2 スペクトルの補正法