原著 β-α 相関事象測定を用いた大気塵埃の 自然放射性核種の連続観測 一核燃料取り扱い施設などからの 人工放射性核種のオンライン検知に向けて-

橋本哲夫,石山央存,伊藤成樹

Reprinted from RADIOISOTOPES, Vol.57, No.11 November 2008

Japan Radioisotope Association http://www.jrias.or.jp/

原著

橋本哲夫,石山央存*,伊藤成樹**

新潟大学名誉教授,NRI研究所代表 950-2053 新潟県新潟市西区寺尾前通2-2-10 *新潟県放射線監視センター・新潟分室 950-2144 新潟県新潟市西区曽和314-1 **株式会社 Z-コスモス 959-0422 新潟県新潟市西蒲区曽根1962

2008年6月9日 受理

放射線検出にフォスフィッチ型の α-β 線弁別測定器を用い,α線とβ線由来のパルスを1µs の時間分解能を有する迅速パルス時間間隔解析システムに導入し,パルス発生時間を多重時間間隔 解析 (MTA) 法で処理した。この解析システムでは PC 画面上でα線やβ線の計数率変化とと もにβ-α連続壊変相関事象をパルス時間間隔分布 (TIA) スペクトルとしてオンラインで観測が 可能となった。ウラン析出薄膜,ウラン鉱物粉末,α線をカットした²⁵⁶Ra からなる3線源の測定 からは,α線とβ線の計数率とも常に一定値を示すトレンドグラフが得られた。大気塵埃を捕集 しつつ本迅速パルス時間間隔解析法を適用したところ,塵埃に付着した²²²Rn の子孫核種由来のα 線とβ線の計数率は明らかな捕集時間依存性を有するトレンドグラフを示しており,TIA スペク トルからは²¹⁴Bi(β)→²¹⁴Po(α)→連続壊変に由来するβ-α相関事象を164µsのα壊変の半減期 により確認できた。

塵埃捕集装置と α/β 弁別放射線検出器と組み合わせた本迅速パルス解析システムからのオンラ イン情報として,相関事象率 $(n_{\alpha\beta})$, α 線計数率 (n_{α}) と β 計数率 (n_{β}) がリアルタイムで得ら れる。これらの情報に基づき,核種混入検知パラメータ R_{α} 又は R_{β} [= $(n_{\alpha}$ or $n_{\beta})$ * $(n_{\alpha} + n_{\beta})/n_{\alpha\beta}$] を得た。塵埃を捕集しつつウランや²²⁶Ra線源を挿入し,これらのパラメータの変動を調査した。 その結果,自然放射性核種に起因するバックグラウンドの影響下でも、極微量な人工 α 放射性核 種の混入(数%程度以下)を迅速に検知できることがわかった。本システム構成を核燃料再処理施 設や原子力関連施設の排気箇所でのオンライン RI(特に α 放射性核種)混入(漏洩)の高感度自 動検知のシステムとしての利用を提案する。

Key Words : time interval analysis, air-borne dust, α ray counting, β ray counting, natural radionuclide, α -nuclide, radon-222 progeny, artificial radionuclide, on-line monitoring, $\beta - \alpha$ correlated event

1. はじめに

近年,原子力関連施設から周辺環境中への放 射性核種の漏洩の早期検出及び核種同定が重要 課題となっている。核燃料再処理施設からは, 使用済み核燃料に含まれるウラン(U)やプル トニウム (Pu) などの超ウラン核種 (TRU) 由来のα 放射性核種と長寿命の核分裂生成物 (FP)の漏洩につながる混入の迅速な検出が排 気箇所で重要であり,原子力発電所関連施設か らはヨウ素など短寿命核分裂生成物の高感度検 出が必要である¹¹⁻⁵¹。 しかしながら,自然界には自然放射性核種と してのラドン (²²²Rn 及び ²²⁰Rn)及びその子孫 核種等が大気塵埃に付着した放射性物質として 必然的に存在している。これらの自然放射性核 種由来の α 核種及び β 核種の濃度は大気の状 態と測定条件により変動するので一定のバック グラウンド値とみなすことができない。そのた め,微量の混入人工 α 核種や β 核種の迅速(オ ンライン)検出にとって妨害となる。

それゆえに、大気塵埃に付着した自然放射性 核種からの α 線と β 線を基に、付着量の変動 に依存しないパラメータが得られれば、このパ ラメータの変化から自然放射性核種以外の人工 放射性核種の混入を迅速に検出できると考えら れる。

ここでは、通常行われている施設からの漏洩 放射性核種のモニタリングと同様に、大気塵埃 を連続的にろ紙上に吸引捕集し塵埃に付着した 自然放射性核種から、マイクロ秒(μ s)オー ダで β - α 連続壊変する相関事象を時間間隔解 析法(Time interval analysis, TIA)⁵⁾⁻⁹⁾により 抽出計測し、 α 線、 β 線計数率をも加味し、 オンラインでの人工放射性核種の混入を検知し ようとした。

そのため、大容量の高速パーソナルコンピュ ータ (PC) と最新のハードウェアとオーダメ ードのソフトウェアとを組み合わせたシステム を構築した。放射線検出のため、ZnS (Ag) 薄 膜とプラスチックシンチレータよりなるフォス フィッチ型検出器を用い、α線とβ線を弁別 同時検出するとともに、β-α相関事象の連続 時間間隔観測を行った。これらの結果をもとに 自然放射性核種としての Rn の子孫核種が存在 する場合の新たな核種混入検知パラメータを提 案した。このパラメータの変動により、自然放 射性核種からの妨害なしに、原子力や核燃料処 理施設・放射性同位体取り扱い施設からの人工 α 放射体とβ 放射体の高感度オンラインモニ タリングが可能となることがわかった。



Fig. 1 Air-borne dust sampler, radioactivity counter, and rapid pulse time interval analysis (TIA) system. (a) A collecting device of air-borne dust made from a cleaner of blackboard eraser and a survey meter with phosfitchtype detector separable to α and β rays. (b) The radioactive detector was faced to filter paper of dust collection with about 7 mm space and α - and β -ray pulses from counter were fed to a TIA-analyzing system (lefthand side). Thus, the dust collection and realtime TIA-data analysis were simultaneously carried out during measurements.

2. 実 験

2・1 大気塵埃の捕集と連続測定

大気中塵埃(浮遊塵)の捕集には,簡便法と して白墨塵を吸収除去する市販の電動黒板消し クリーナ(ナショナル,MC330E)を改造し用 いた。Fig. 1(a)の写真に示すように,黒板消し クリーナの蓋を外し,替わりに蓋とほぼ同じ寸 法のアルミニウムプレート(2mm厚)を固定 した。白墨塵の吸い込み箇所にドリルで1mm 径の穴を多数開け,この面に集塵用ガラスセル ロースろ紙(アドバンテック,HE40T,78mm



Fig. 2 Conceptual expression of a rapid pulse-time interval analyzing (TIA) system. The operations of this system consist of parallel three inputs for pulses, data registration, data TIAprocessing, and on-line graphic display of results, dealt with 1 μ s time resolution for realization of whole on-line processing.

幅長尺ろ紙を約80mm 長さに切り取ったもの) を黒色ゴムシートで固定した。このゴムシート は吸い込み面のみから大気を吸入し,周辺部分 からの大気の流入を封じる目的で用いた。その 集塵ろ紙の直上約7mmの高さにFig.1(a)前 方に示す α/β シンチレーションサーベイメー タ (アロカ社製, Model TCS-362)の検出器部 分を固定した。ろ紙を装着した状態で排気量を 測定したところ,75~55 L/min と集塵時間に 伴い変化しており,平均的には62 L/min であ った*。

この α/β 同時検出部位はフォスフィッチ型 であり、α線検出用に検出器前面部位に配置 した ZnS (Ag) 薄膜と、β線検出用に後部に 置かれたプラスチックシンチレータを組み合わ せて構成されている。放射線によるシンチレー ションを光電子増倍管で検出し、立ち上がりが 遅いα線パルスと立ち上がりの速いβ線パル スをエレクトロニクス回路(ローパスフィルタ とハイパスフィルタ) により, それぞれ α 線 と β 線由来の出力パルスに弁別し, それぞれ を BNC コネクターに2分岐出力した**。この 出力パルスを Fig.1(b)に示すように迅速パル ス解析システムとつなぎオンラインで α 線と β 線パルス計測(後述のように γ 線成分も含 む), パルス時間間隔解析及びリアルタイム表 示を行った。

2・2 迅速パルス時間間隔解析・表示システム 3チャネル(A, B, C)のロジックパルスを 並列に入力でき,パルス発生時間を記録し,単 ーチャネルはもとより複数チャネル間のパルス 時間間隔を最短時間分解能としてµs単位で解 析しつつ,その結果をリアルタイムでPC画面 に表示できるシステムを用いた^{12,13)}。本迅速パ ルス解析・表示システムの概念図をFig.2に 示す。高速時間分解能でパルスの発生時間の記 録を行うため,32 bit タイミングコントロール

^{*}この黒板消しクリーナは吸収内圧力に応じ排気量を 変化させていることがわかった。

^{**}アロカ社からのマニュアルと解説書類に基づいて 出力させた。

IC (HTS-A) \geq 28 bit $p \rightarrow p$ IC (HTS-B) ϵ 最適化し,これらを組み込んだカスタムボード (ZN-HTS2)を作製した。入力パルスの迅速転 送を実現するため、HTS-A(32 bit)において は非同期 PCI Bus を用いている。32 bit のうち 28 bit をカウンタ IC からの時間データ入力に 用い、カウンタの桁上がりの検知のためオーバ フロー信号として1 bit を使用し、残りの3 bit をパルス入力3チャネルに使った。作動時の 32 bit のデータは FIFO(Fast-In Fast-Out) RAM (PCI I/O) に1 us ごとに転送した。こ の RAM 内部のデータは、DMA(直接メモリ ーアクセス) で常時 CPU 側の Main RAM の1 次バッファに転送されており、このバッファか ら随時パソコン側の要求により Main RAM 側 に読み出している。

高速パルス(時間)間隔測定ソフト(HTS2) により Main RAM のデータは常時多重時間解 析 (multiple time interval analysis, MTA) 処 理され時間間隔分布として積算される^{6),12)}。解 析結果の相関事象は時間間隔分布スペクトルと してリアルタイムに PC 画面上部に表示される (Fig.5~8(a)参照)。この時間間隔分布スペ クトルは、単一入力パルス間隔はもとより、異 なる入力パルス間の時間間隔分布測定にも設定 可能である*。時間間隔分布スペクトルの横軸 は、時間間隔幅(dt)に相当しており、メニュー の時間スケール (Scale X) を切り替えることに *L* ^b, 1 μs, 10 μs, 100 μs, 1 ms, 5 ms, 10 ms と6段階に選択することができる。大気塵埃の 放射性核種測定では、1µsスケールに設定し、 全横軸幅は1msとすることで、²¹⁴Bi (β) → ²¹⁴Po (α: T_{1/2}=164 µs) → 壊変過程において, μs オーダで連続壊変する β - α 相関事象を選 択的に抽出計測できる。Ac 系列及び Th 系列

の場合には、それぞれの目的相関壊変事象であ る、²¹⁹Rn(α)→²¹⁵Po(α :1.78 ms)→及び²²⁰Rn (α)→²¹⁶Po(α :145 ms)→の短時間 α - α 連続 壊変過程に応じた時間間隔スケールとして、前 者では100 μ s、後者では1 ms を各々のオンラ イン測定に利用できる¹⁰⁾。なお、本システムで はさまざまの相関事象混在時にも、測定しなが ら対象パルスや時間間隔を切り替えて解析可能 であるほか、測定終了後に独自のフォーマット で保存されたデータをパルス(時間)間隔測定 ソフト(HTS2)に呼び出し、オフラインで再 度解析することにより、目的とする複数の相関 事象の評価を行うことも可能である^{10),11)}。

表示画面の下部(Fig.5~8(b)参照)には 複数入力パルスの計数率(先行する5分間の平 均値を cpm として棒グラフ化)及び時間間隔 解析結果をトレンドグラフとしてオンライン表 示できる**。

本報告では、主に α 線由来のパルスを A チャネルに、 β 線 (γ 線成分も含む) 由来のパルスを B チャネルに入力し、 $\beta-\alpha$ 線 (B-A 入力パルス) 間の相関事象を時間間隔分布スペクトルとして観測している。

結果と考察

3·1 放射線源からの β-α 相関事象観測

Fig. 3 に示すようにウラン系列には ²²²Rn が 含まれており、その子孫核種に属する壊変 に、²¹⁴Bi(β) → ²¹⁴Po(α : T_{1/2}=164 μ s) → 過程で 連続壊変する μ s オーダの β - α 相関事象が存 在する。Fig. 4 に本システムでのパルスの処理 法を概念図で示す。 β 線パルスをトリガ信号 とし、次の α 線パルス(ストップパルス)ま での時間間隔($\Delta \tau i$)をメニューの時間スケー ル($dt = 1 \mu$ s) で除した値の頻度分布を得てい る。多重時間間隔解析 (MTA) 法の適用では、 パルスごとにT (1000× $dt = 1000 \mu$ s=1 ms に相当)時間演算を繰り返し、その結果を積算

^{*}物質を励起したとき生起する物理現象が µs 以上で あれば,励起源と物理現象をパルス化して本装置に 取り込み測定を繰り返し行えば簡便に相関現象を解 析できる。例としてパルス状 LED 光励起による蛍 光(P-OSL)の測定がある¹⁴。

^{**}本パルス信号データ解析装置は特許出願中である。

Uranium series



Fig. 3 Uranium decay series focused on β - α correlated event from ²²²Rn-progenies.

処理してパルス時間間隔分布スペクトルを得て いる。測定中の積算パルス時間間隔分布スペク トル (Fig.5~8(a))において,目的連続壊変 (²¹⁴Bi(β)→ ²¹⁴Po(α :164 μ s)→) 由来の α 壊変 を指数関数として観察できる。これが β - α 相 関事象であり,水平なバックグラウンドに上乗 せする形で捉えることができる*。MTA 法は 単に隣り合うパルス間を解析する隣接時間間隔 解 析 (STA:single time-interval analysis) 法 に比べ,バックグラウンドが水平成分となるた め解析が容易になる^{6),12),13)}。

最初にウラン薄膜線源の測定を行った。微量 な天然ウランを含む希硝酸溶液から,研磨直後 の Al 板上に自発析出させ¹⁵⁾,30 年近く放置し ておいたウラン薄膜線源を使用した。検出器の 下の捕集ろ紙上にウラン薄膜線源を置き,15 時間の連続測定した結果を Fig.5 に示す。

*一般式は $F(t) = A[B \cdot \exp(-\lambda \cdot t) + C]dt$ で表され る^{12),13)}。t 以外は全て定数である。



Fig. 4 Conceptual view of β - α correlated events from time interval analysis with respect of β and α -ray pulse input time. T is data processing time of other pulse occurrence for a certain pulse using multiple time interval analysis (MTA) and $\Delta \tau$ is practical time interval.



Fig. 5 TIA-spectrum and α - and β -ray counting trend graph on computer display from the measurement of spontaneously deposited U source. Uranium was natural composition and total measuring time was 918 min.

(a) TIA spectrum of β - α correlated events, (b) β - and α -counting rates versus measuring time.

Fig. 5(a)の β - α 積算パルス時間間隔分布スペ クトル (以下では TIA スペクトルと略記) に おいては,何らの短時間壊変成分も見出されず ランダム現象由来の水平なバックグラウンドス ペクトルのみが観察される。このことは,以下 の線源や大気塵埃に見られる²²²Rn 子孫核種由 来の β - α の連続壊変に基づく相関事象は存在 してないことを意味している。このウラン薄膜 線源は製作後の時間が²³⁰Th や²²⁶Ra の半減期 (Fig.3 参照) と比べて短いため,²²⁶Ra 以下の 子孫核種の成長が無視できるため,実際に線源 表面に Rn とその子孫核種が存在していないた めと解釈できた。

Fig. 5(b)のトレンドグラフでは β と α 計数 率ともに何らの時間依存性も見られず,長時間 一定値を示している。この天然ウラン薄膜線源 からの β 線と α 線由来の計数率の比 (以下 β / α 比と略記) は 2.14 と見積もられ,主として ²³⁸U と²³⁴U からの α 線と, ²³⁸U と放射平衡にあ る²³⁴Th と ²³⁴Pa からの β 線の計数率のみに由 来している。この場合系列図上での β と α の 壊変数の比は 2 対 2 となり,各々の計数効率を 同等とした時 β / α 比は 1.0 と見積もられるが, β に対して α 線の検出効率が検出器をカバー するアルミニウム蒸着膜や空気層の吸収により 半分程度と減少しているため 2.14 の測定値を 示すのであろう*。

次に、リン灰ウラン鉱石(岡山県人形峠上斎

^{*}検出効率はこれら以外に, ZnS(Ag)やプラスチッ クシンチレータの発光効率とか遮光用のアルミ蒸着 膜や ZnS(Ag) 塗布膜などへの α 線や β 線の吸収 などに明らかな差異があるため複雑である。





原産の Uranite)表面を研削して粉末状とし, 粘着テープ(約10×10 mm)に付着させたも のを放射線源とし,検出器の下に置き本システ ムにより17時間弱測定した結果をFig.6に示 す。測定中に放射線検出器とリン灰ウラン粉末 試料は固定されており,一定の幾何学的効率が 保たれている。Fig.6(b)のトレンドグラフの ように,計測時間中は $\beta \ge \alpha$ 計数率に変化は 見られず,ウラン薄膜線源同様に一定値を与え ている。この測定条件での β/α 比は2.17 と 見積もられた。この β/α 比もウラン薄膜線源 の比に近く、ウラン系列が放射非平衡状態にあ ることを示唆している。実際に、化学分離と収 率トレーサを併用した α 線スペクトロメトリ ーからの同じリン灰ウラン試料からの分析結果 において²²⁶Ra/²³⁸U 放射能比が 0.39 ~ 0.83 (試 料採取箇所により変動)と非平衡にあることを 確認ずみであった¹⁶⁾。

Fig. 6 (a) の β-α TIA スペクトルでの1~ 200 μs 範囲の計数値を積算し, 300~500 μs 域



Fig. 7 TIA and α - and β -counting results from measuring a β -source. The present ²²⁶Ra source as a β -source was obtained from a minute hand of old luminous watch and wrapped with plastic film in 42 μ m thickness. Total measuring time was 1 080 min.



の積算値をバックグラウンド値として差し引い た値を全相関事象計数とした。この全相関事象 計数値 ($N_{cc}=N_{\alpha\beta}=665$ counts)の全計数値 ($N_{\alpha}+N_{\beta}=175$ 000) に対する割合(以後,全 相関計数割合(CC_{t})と定義) $CC_{t}=N_{\alpha\beta}/(N_{\alpha}+N_{\beta})$ が0.38%であり,後に見る大気塵中の CC_{t} (=5.5%程度)と比較して極度に少ない値と なっている*。このことは、リン灰ウラン試料 では β - α 相関事象となる Rn の子孫核種が大 気塵埃の場合と比べて 7% 程度以下に相当し ており、リン灰ウランでは U, Th, Ra 等の親核 種が大きく全計数率に寄与していると判断され る。

Fig. $6(a) \circ \beta - \alpha$ TIA スペクトルにおいて, 最初の 200 μ s 部分から ²¹⁴Po の半減期が求まる。 実際に大気塵埃中の放射性核種から,後述のよ うに $\beta - \alpha$ 相関事象をもたらす Rn の子孫核種 である α 壊変核種 ²¹⁴Po の半減期 (T_{1/2}) 164 μ s に一致していた。ともかくも Fig. 6(a)のリン 灰ウラン粉末からもごくわずかな $\beta - \alpha$ 相関事 象を確認できた。この相関事象の割合が少ない のは、ウラン粉末試料表面からの ²¹⁴Po に起源

(20)

^{*} β / α 比が変化する線源挿入の実験では後述のよう に5分間測定の平均値をそれぞれ相関事象計数率 $(n_{\alpha\beta}), \alpha$ 線計数率 $(n_{\alpha}), \beta$ 線計数率 (n_{β}) とし て用いている。ここでは測定時間をtとすれば $N_i = \Sigma n_i = n_i * t$ の関係にある。 N_i 相互間の比である CC_i では測定時間の項が相殺されている。

する α 線の計数が相対的に少ないことと合致 しており,ほとんど相関事象が見られなかった ウラン薄膜線源の結果 (Fig.5(a))とも矛盾し ない。

Fig.7に古い目覚まし時計からの夜光時計針 に塗られていた放射性物質を用い, α 線カッ トのため 42 µm 厚のポリエステルフィルム (時 計針を6µm厚のルミラーフィルムを7枚)で 包んだものを線源として測定した結果を示す。 夜光塗料として¹⁴⁷Pmや³H(トリチウム)な どの β 放射性核種使用の前は, ²²⁶Ra が使われ ていた。Fig.7(a)のパルス時間間隔分布スペ クトルにおいて、ごく弱い相関事象を観察でき るので,今回の目覚まし時計針でも放射線源と して 226Ra を使用していたと確認できた。しか しながら、Fig.7(b)のトレンドグラフに見ら れるように、測定時間による変動もないβ計 数率のみが観測されており,相対的に弱い α 計数率(平均4cpm)はトレンドグラフでは観 測できない。その結果として β/α 比は 199 に も上り、ポリエステルフィルムでカバーした時 計針はほぼ純粋な β線源として見なすことが できた。この時の α 計数はポリエステルフィ ルムの隙間を抜けて放出される²²²Rn とその子 孫核種によるものと考えた。*CC*_t [*N*_{αβ}(=229 counts) と全計数値 ($N_{\alpha} + N_{\beta} = 181\ 127\ \text{counts}$) の割合]は0.13%と評価できウラン薄膜線源 と共に大気塵埃からの CC_t値よりも極度に小さ い値であった。

以上記述してきたように、 $\alpha \ge \beta$ 計数率に、 相関(壊変)事象率を加味した *CC*, からも、放 射平衡関係の状態を探ることができた¹⁷⁾。

3・2 大気塵埃からの β - α 相関事象連続観測 土壌・岩石・コンクリートなどの建材等には 必ずウラン系列核種が含まれており、それらの 表面から²²²Rn が大気中に放出されている¹⁷⁾。 その結果、大気中には²²²Rn の子孫核種は、親 核種からの $\alpha や \beta$ 壊変の結果としてプラスの 電荷を帯びている。これらプラスの荷電状態の 子孫放射性核種は大気塵埃に容易に付着するの で、大気塵埃には必ず²²²Rnの子孫核種が見出 され、必然的にこれら自然放射性核種由来の α 線や β 線が観測される^{17),18)}。したがって、大 気塵埃付着自然放射性核種として、²¹⁴Bi(β)→ ²¹⁴Po(α :164 μ s)→過程が生じており、この短 時間の連続壊変由来の β - α 相関事象を捉える ことができる¹⁰⁾⁻¹³⁾。

大気塵埃を連続的にろ紙上に捕集しながらβ 線と α 線を測定して得た結果を Fig.8 に示す。 本質的に自然放射性核種のみの放射能の測定に 基づいている。Fig.8(a)はTIA スペクトルで あり、このスペクトルには明らかに短時間減衰 曲線が観測されている。コンピュータソフト(カ レイダグラフ)を用いてこの曲線をフィッティ ング解析した結果, 164.8 ± 0.4 µs の半減期で 減衰しており²¹⁴Poの文献値164 us に一致して いた¹⁹⁾。一方, Fig. 8(b)のトレンドグラフは β 線と α線の計数率の捕集時間依存性である。 塵埃の捕集開始とともに β・α 計数率共に増加 し、ほぼ2時間程度で飽和傾向となり、その後 ゆっくりと減少を示している。このことはろ紙 の目づまりによって大気吸引量の減少傾向を反 映していると考えている (p.681 脚注*参照)。 吸引ポンプを停止し捕集を終了すれば(ここで は捕集開始後5時間)、大気からの塵埃の供給 がなくなるので捕集塵埃中の放射性核種はその 半減期に従って減衰する。壊変の半減期解析か ら、 β 計数では36.5±0.4 min、 α 計数から 38.7±0.5 min と評価され、お互いに一致して いない。これらは β - α 相関事象に先行する β 壊変する核種,²¹⁴Pbや²¹⁴Biの半減期である 26.8 min や 20.0 min に合致してないことから, これら先行核種が混合した状態で捕集されてお り、過渡平衡を経て壊変するためと考えられ る*。両核種の混合比の正確な解析は今後の課 題である。

^{*}実際には ²¹⁸Po(T_{1/2}:3.1 min)も捕集されること が知られている²⁰⁾。



Fig. 8 TIA and α - β counting results from simultaneous and on-line radioactivity measurements and data-processing during collection of air-borne dust (a) TIA spectrum of β - α correlated events, (b) β - and α -counting rates versus airborne dust collecting time.

今回の捕集終了時での β/α 比は2.55と見 積もられた。この値は、捕集途中時での値2.73 に比較して小さくなっており、 α 線に比べて β 線計数率のわずかな減少が検出されており、捕 集中の β/α 比の減少の原因も今後の課題であ る。捕集放射性核種の壊変に充分な捕集終了約 6時間経過した後の $\beta と \alpha$ 計数率は一定値の まま続いていた*。同様な結果は、異常に高い 捕集放射性核種濃度が実測された福井県敦賀市 でのデータからも見出され、半減期の見積もり から、10 hr 程度と評価できた。このことから、 Th-系列核種である半減期10.6hrを有する ²¹²Pbと極微量な²¹⁰Pb、²¹⁰Bi, ²¹⁰Poの捕集も存在 すると考えられた。すなわち、本システムでTh系列の²²⁰Rn(55.6s)の子孫核種も捕集されて いることがわかった。

Fig.9に家屋内大気塵埃を連続12時間余り 捕集しつつ測定したトレンドグラフを示す。時 間間隔分布スペクトル上にはFig.8(a)と同様 に²²²Rnの子孫核種である²¹⁴Po由来のβ-α相 関事象が確認でき,164 μsの半減期で減衰し

^{*}測定場所での自然の γ 線や宇宙線によるプラスチ ックシンチレータのバックグラウンドは 169±19 cpm であった。これらに加えて塵埃捕集された自然 放射性核種からの γ 線が測定値には関与しており, これらを分離して測定することは困難であった。し たがって本論文での β 線計数率にはこれら全ての γ 線由来のバックグラウンド計数率が含まれている。

Nov.2008 橋本,他:β-α相関事象測定を用いた大気塵埃の自然放射性核種の連続観測 一核燃料取り扱い施設などからの人工放射性核種のオンライン検知に向けて一



Fig. 9 Changes of β - and α -counting rates versus air-borne dust collecting time by inserting U and β -source. U-source was prepared from spontaneous deposition on fresh aluminum plate as seen in Fig. 5. β -source was ²²⁶Ra source consisting of a minute hand of old luminous watch, which was wrapped with plastic film in 42 μ m thickness as described in Fig. 7. The region of interest (ROI) was expanded in the following figures in more detail studies.

ていた。Fig.9の場合には、捕集途中の8時間 16分と10時間23分に、それぞれウラン薄膜 線源と42 µm のポリエステルフイルムで包ん だRa線源(夜光時計針)を挿入した状態でほ ぼ1時間継続測定し、更に引き抜き後も捕集し つつ測定を続けることで、大気塵埃からの Rn の子孫核種以外に他の放射線源による汚染状態 を模擬してみた。その結果として、Fig.8(b) と同様に約2時間後に捕集塵埃放射性核種によ る放射能のピークが現れておりその後の緩やか な減衰傾向が見られる。途中でウラン薄膜線源 (α; 202 cpm, β; 635 cpm) を挿入すること で, α と β 両計測率が捕集塵埃の計数率に上 乗せされた状態で増加している。一方 Ra 線源 (β; 539 cpm, α; 4 cpm) の挿入からは β 計 数率の顕著な増加が見られるものの, α 計数 率の増加は無視できる程度であった。塵埃捕集 からの放射能が平坦部分を示す8時間38分か ら 55 分間の計数率とその値の分散は, α 線計 数では 552±28 (5.0%) cpm, β 線計数では 1 475±50 (3.0%) cpm, また β/α 比は 2.67 となり, Fig.8 の平坦時での値とほぼ一致して おり,同一捕集場所では,ほぼ同じ組成の Rn の子孫核種が捕集されるためと考えた。

放射線源挿入の影響をより詳しく調べるため, 捕集開始後6時間38分から255分間の部分 (Fig.9のROI)の捕集時のデータをエクセル 上で処理した。

前述の全相関計数割合 $(CC_i = n_{\alpha\beta}/(n_\alpha + n_\beta))$, 及び α -相関計数割合 $(CC_\alpha = n_{\alpha\beta}/n_\alpha$ と定義) と β -相関計数割合 $(CC_\beta = n_{\alpha\beta}/n_\beta$ と定義) を 捕集時間の関数として Fig. 10 に示す*。これ ら相関計数割合の変化を基に人工放射性核種混

^{*}大気塵埃のように計数率に変化を示す場合には n_i を用いた。p. 686 脚注*参照。



Fig. 10 Changes of three kinds of correlated event-percentages in the expanded region (ROI part) in Fig. 9. Each *CC* (%) means the following percentage values; CC_{α} CC_{β} , and CC_{ι} are correlated event rates $(n_{\alpha\beta})$ against α -counting rates (n_{α}) , β -counting rates (n_{β}) , and total counting rates $(n_{\alpha} + n_{\beta})$, respectively.

入を検知するパラメータとして当初考えた。し かしながら、 $CC_{\alpha}(\%)$ は、ウラン線源挿入前 後で24%程度から23.5±3.2%へとわずかな 低下を示しているにすぎず、全体でも(21.7± 3.2%)大きな変化は見られない。同様に、 CC_{β} (%)や $CC_{i}(\%)$ もU線源やRa線源挿入前後 で大きな変化は見られない。 $CC_{i}(\%)$ の場合全 体の値は5.5±1.0%となっており、線源の挿 入による影響は $CC_{\alpha}(\%)$ や $CC_{\beta}(\%)$ に比較 して更に変動傾向は少なく、 $CC_{\beta}(\%)$ や CC_{i} (%)と同様に人工核種混入の検知パラメータ に適さないことがわかった。

そこで,線源挿入前や除去の時に変動幅がご く少ない CC_i 値そのものを大気塵埃由来の Rn の子孫核種に対する基準値として用いることに した。すなわち,塵埃に付着した放射性核種が Rn の子孫核種のみであれば, CC_i は一定値を 与えると考えられるためである*。

β 計数率及び α 計数率を全相関計数割合

(*CC*_t) で除した値をそれぞれ人工放射性核種混 入検知パラメータとした。

これらのパラメータとして、 $R_{\alpha} = n_{\alpha}/CC_{i} = n_{\alpha}$ * $(n_{\alpha} + n_{\beta})/n_{\alpha\beta}$ と $R_{\beta} = n_{\beta}/CC_{i} = n_{\beta}$ * $(n_{\alpha} + n_{\beta})/n_{\alpha\beta}$ と定義し Fig. 11 にプロットした。

それぞれの検知パラメータ (R_{α} , R_{β}) には $n_{\alpha} \geq n_{\beta}$ の 2 乗項が導入されることとなり, n_{α} 又は n_{β} 増加に伴って, $R_{\alpha} \geq R_{\beta}$ の変動が大き くなることは明白である。実際, Fig.11 にお いて, β/α 比が 2.14 を与えたウラン薄膜線源 を挿入した時, R_{α} は明らかな上昇を示してお り, 同時に R_{β} の上昇も検知されている。²³⁹Pu, TRU や ²¹⁰Po のように純粋に α 放射体のみの 混入であれば R_{α} の値の上昇としてのみ認識で きよう。一方, β/α 比が 199 と評価され β 線 源と見なせるポリエステルフィルムで包んだ

^{*}β/α 比は捕集大気量や通過する気団により変動す る傾向がある²¹⁾。



Fig. 11 Changes of new parameters, R_{α} and R_{β} , as a proposal detection parameter of artificial radioactivity leakage from nuclear energy facilities. The ROI part in Fig. 9 was also concerned here. R_{α} and R_{β} equal to $[(n_{\alpha} \text{ or } n_{\beta})/CC_{t}] = (n_{\alpha} \text{ or } n_{\beta}) * (n_{\alpha} + n_{\beta})/n_{\alpha\beta}]$, where n_{α} , n_{β} and $n_{\alpha\beta}$ are the same definitions as indicated in caption of Fig. 10.

²²⁶Ra-時計針を挿入したときには R_{β} が大きく 上昇しており, R_{α} にもわずかな増加傾向への 変化が検知できる。したがって, R_{β} の有意の 変動から塵埃に核分裂生成物などの純粋な β 放射体が混入されたことを検知できるであろう。 他方, ²²⁶Ra 線源の α 計数率が4 cpm (前出) であり, 線源挿入時の捕集塵埃からの α バッ クグラウンド計数値の平均が492 cpm であっ たことを考慮すれば, ほぼ1% 程度の人工 α 放射性核種の混入も R_{α} の増加として確認でき たことになる*。

このように、オンラインで得られる核種混入 検知パラメータ、 $R_{\alpha} \geq R_{\beta}$ 、の変動から、 β 放 射性核種の混入はもとより、従来困難視されて いた極微量人工 α 放射性核種の混入(漏洩) 迅速検知法として有効であることがわかった。

また, $\alpha \geq \beta$ 計数率と相関計数率の情報を 計算機ソフトに付加し, R_{α} , R_{β} 値の上昇を自 動的にチェックすることにより,通常の塵埃捕 集データに基づき閾値を設定し,閾値を越える 異常値が検知された時,警報を発するように設 定できよう**。オンラインの画面上での R_{α} あ るいは R_{β} 値の上昇を読み取れば,塵埃への核 燃料や TRU 由来の α 放射性核種か,FP 由来 の β 放射性核種か,あるいは $\beta \geq \alpha$ 放射性 核種の混合物なのかなど,何れの人工核種の付

^{*}実際上は, 捕集された自然放射性核種 Rn の子孫核 種由来の α・β 計数率の変動があるので, 計数率の 統計的変動幅を考慮に入れた上で, α:5%, β: 3% 以上の混入時を検出限界と考えた。

^{**}α 線とβ 線計数率とβ-α 相関計数率 (Fig.4に 示した単位時間ごとの3個の情報)をデジタル回 線で送り,現地から離れた中央監視センター等で オンラインデータ解析も可能である。新潟県放射 線監視センターでは、実際に本測定システムでの 放射線監視体制を整えつつある。

加(漏洩)であるかの判断も総合的にできるで あろう。

従来の β/α 比の変動を用いた人工放射性核 種検出の性能は、測定時の自然放射性核種濃度 に大きく左右されるとともに²⁰⁾、測定された β 線 α 線共にその発生源は全く曖昧なままであ る。それに比較して、ここで提案した人工放射 性核種の検知法は、従来用いられていた β 線 や α 線計数率以外に、Rn の子孫核種から の²¹⁴Bi(β)→²¹⁴Po(α :164 μ s)→連続壊変過 程に基づく β - α 相関事象が核種混入パラメー タに含まれており、原理的にも人工放射性核種 と自然放射性核種を区別しており、 R_{α} , R_{β} 値 を利用するオンライン人工核種混入検知結果の 信頼性はより高いであろう。

4. おわりに

従来の相関事象を取り扱わない α 線や β 線 のみの測定では,自然放射性核種が微量の人工 α 線及び β 線放射性核種の迅速検知の妨害と なっていた。

原子力関連施設や核燃料取り扱い施設に本迅 速 β - α パルス時間間隔システムを適用すれば, 自然放射性核種の影響を最小限にしてオンライ ンで人工 α 放射性核種の混入(漏洩)を高感 度で検知できることがわかった。その結果とし て,周辺環境への人工放射性核種の施設からの 放出や拡散を未然に検知できるため,周辺住民 のみならず施設での作業員にとっても安全と安 心が確保できると考えている。

本方法は人手を介せずその場での迅速データ 記録とオンライン計算処理・表示による相関事 象解析と α・β 連続測定に基づいた核種情報の ため信頼性の高い結果が得られる。

今後の検出感度の向上に向けては,捕集面積 や検出器表面積の拡大とともに,検出部表面の 金属製保護格子が検出効率を低くしているので 改良が必要である*。混入(漏洩)人工 α 放射 性核種の同定のためには,異常を検出したろ紙 付着塵埃を液体シンチレータに導入し,αス ペクトル解析する方法も試みつつある。

今日,放射性物質取り扱い施設での人工放射 性物質混入(漏洩)検出法の大部分は外国発の アイデアを使っていると言えよう。ここに提案 した MTA を伴う迅速パルス時間間隔解析法 は 1980 年代に提案した著者らのアイデアに基 づくものであり,本邦発のオンライン混入(漏 洩)人工放射性核種検出法になりうると確信し ている。

また、本測定システム全体をコンパクトに纏 めて小型軽量のサーベイメータ化し、経済的な システムを構築することも可能である。そのよ うな放射線測定システムにより、放射線取り扱 い施設はもとより、地質科学分野での自然放射 性核種のその場観測による活断層の検知とか、 一般の方々や学生の方々が実際に大気中の自然 放射性核種に起因する α·β 線の検出を実習す るための教育現場での放射線リテラシー装置と して利用できると考えている。

謝 辞

本研究に当たり大変有用なご意見とご協力を 頂いた八幡 崇博士(現在は信越化学㈱勤務) と川野名 勇氏(ノナシステム)に感謝いたし ます。

文 献

- UNSCEAR 2000, Sources and effects of ionizing radiation, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, United Nations, New York (2000)
- 吉沢道夫,原子力ハンドブック"第7章 放射 線管理",pp.1158-1170,オーム社,東京(2007)
- (1) 橋本哲夫, 久保田知明, 時間間隔解析法を用いた玉川温泉水中のTh系列核種の絶対測定, RA-DIOISOTOPES, 38, 415-420 (1989)
- 4) Uezu, Y. and Hashimoto, T., New aspects of time interval analysis method for the determination

^{*}同型の応用光研㈱製の4mmメッシュの保護格子付 き検出器では, α線では20%以上, β線では40% 以上の検出効率との記載あり。

of artificial alpha-nuclides, J. Radioanal. Nucl. Chem., 255, 87-89 (2003)

- Hashimoto, T. and Sakai, Y., Selective determination of extremely low-levels of thorium series in environmental samples by a new delayed coincidence method, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 138, 195-206 (1990)
- Hashimoto, T., Uezu, Y., Yamamoto, Y., Washio, H. and Noguchi, M., Princinple of single and multiple time interval analysis applicable to radioactive nuclides with half-life of millsecond order, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **159**, 375-387 (1992)
- 7) Hashimoto, T., Ishizuka, F., Yoneyama, Y., Kubota, T. and Fukuyama, N., Determination of natural α-radionuclides related to millisecond order lives in environmental samples using time interval analysis (TIA) method, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.*, **197**, 99-114 (1995)
- 8) Hashimoto, T., Yoneyama, Y., Sato, K. and Komatsu, Y., Pulse time interval analysis (TIA) combined with liquid scintillation counting for the determination of environmental α-nuclides-Preparation and utilization of ²²⁵Ra as a yield tracer, J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 239, 619-629 (1999)
- Hashimoto, T., Sanada, Y. and Uezu, Y., Simultaneous determination of radio-nuclides belonging to three natural decay series using time interval analysis (TIA), *Anal. Bioanal. Chem.*, **379**, 227-233 (2004)
- 10)八幡 崇,坂上央存,伊藤成樹,橋本哲夫,複 数入力に対応した高速パルス時間間隔データ処 理およびリアルタイム表示システムの構築とそ の性能評価,日本原子力学会和文論文誌,5,221-228(2006)
- 11) Sakaue, H., Fujimaki, H., Tonouchi, S., Itou, S. and Hashimoto, T., A new time interval analysis system for the on-line monitoring of artificial radionuclides in airborne dust using a phosfitch type alpha/beta detector, J. Radioanal. Nucl. Chem.,

274, 449-445 (2007)

- 八幡 崇,橋本哲夫,多重パルス時間間隔解析 (MTA)法の理論的なアプローチと壊変系列毎 の微量放射性核種の弁別定量への適用,RADIO-ISOTOPES,56,359-369(2007)
- 13) Sanada, Y., Kobayashi, H., Furuta, S., Nemoto, K., Kawai, K. and Hashimoto, T., Selective detection using pulse time interval analysis for correlated events in Rn-progeny with a microsecond lifetime, *RADIOISOTOPES*, 55, 727-734 (2006)
- 14) Takeuchi, T., Shibutani, T. and Hashimoto, T., Construction of a portable mini luminescencemeasurement system equipped with a miniature X-ray generator, *GEOCHRONOMETRIA*, 30, 17-22 (2008)
- Hashimoto, T., Sugiyama, H. and Sotobayashi, T., Spontaneous deposition of uranium on aluminium plates, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 45, 157-164 (1980)
- Komatsu, S., Alpha-spectrometric determination of U-, Ra-, and Ac- isotopes using respective yield tracers, Master Thesis of Niigata University (1981)
- 17) 橋本哲夫,自然界での放射壊変系列の非平衡生 起の原因について, *RADIOISOTOPES*, 43, 212-223 (1994)
- 18) Jacobi, W. and Andre, K., The vertical distribution of radon 222, thoron 220, and their decay products in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 68, 3799-3814 (1963)
- 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林昌敏(編), 放射線
 データブック, pp.253, 地人書館, 東京(1982)
- 20) 伊藤 登,神埼 亮,早川博信,大気浮遊じん 連続測定におけるベータ/アルファ放射能濃度比 による人工放射性核種の分離について,福井県 原子力環境監視センター所報,第5巻,37-63 (2000)
- 21) 木村秀樹,「六ヶ所再処理工場に関わる環境放射 線モニタリングに関する研究」博士論文,56-66 (2008)

Abstract

Continuous Measurements of Natural Radionuclides on Air-borne Dust Using β - α Correlated Events —Towards On-line Detection of Artificial Radionuclides in Nuclear-fuel Reprocessing and its Related Facilities—

Tetsuo HASHIMOTO, Hisanobu ISHIYAMA* and Shigeki ITOU**

Emeritus Professor of Niigata University, NRI-Institute 2-2-10 Teraomae-dori, Nishi-ku, Niigata-shi, Niigata Pref. 950-2053, Japan *Niigata Prefectural Institute of Environmental Radiation Monitoring 314-1 Sowa, Nishi-ku, Niigata-shi, Niigata Pref. 950-2144, Japan **Z-COSMOS Co. Ltd., 1962 Sone, Nishikan-ku, Niigata-shi, Niigata Pref. 959-0422, Japan

On the highly sensitive and on-line detection for the contamination of artificial nuclides, much attention has been paid to the elimination of significant problem due to 222 Rn-progenies. A phosfich-type α - and β -ray radiation counter, which was fixed just above the dust-collecting filter paper within a space in a few mm, provides both α - and β -ray pulses during continuous collection of air-borne dust. Both pulse input times were registered into the memory buffer in a pulse time interval analyzing (TIA) system, followed rapidly by the data processing using MTA (multiple TIA) method. Resultant $\beta \cdot \alpha$ TIA-spectrum (or decay-curve of $\beta \cdot \alpha$ correlated events) and changes of α - and β -counting rates were displayed instantly on a PC-display with 1 μ s time resolution using installed softwares. Thus, three practical values, including β - α correlated event rates $(n_{\alpha\beta})$, $\alpha - (n_{\alpha})$, and β -ray counting rates (n_{β}) were available from the present TIA-measurement system. A uranium deposited source (as mixture of α - and β -ray emitters), uranium mineral powder sample, and ²²⁶Ra-source (as β -source) showed negligible contribution to β - α correlated events in TIA-spectrum, giving constant α/β counting ratios. In the case of air-borne dust samples, the β - α correlated events in TIAspectrum showed certainly a presence of 164 µs decay-curve due to ²¹⁴Po, based on successive decay process such as ${}^{214}\text{Bi}(\beta) \rightarrow {}^{214}\text{Po}(\alpha : T_{1/2} = 164 \ \mu\text{s}) \rightarrow By$ using three measuring values, new parameters, R_{α} and R_{β} [equal to $(n_{\alpha} \text{ or } n_{\beta})^*(n_{\alpha}+n_{\beta})/n_{\alpha\beta}$], have been introduced for the highly sensitive and real-time indicators of contamination owing to artificial nuclides, even under the inevitable existence of ²²²Rn progenies in the airborne dust sample. The present radiation measurement system, combined with β - α correlated events, has been proved to be useful for the detection of extremely small contamination with artificial α -nuclides as well as β -nuclides; the detection limit was estimated to be several percents of radioactivity against natural α nuclides. The present method will be preferable to the in situ or remote monitoring of artificial radionuclides from nuclear facilities and so on.

(Received June 9, 2008)