フィッション・トラック　ニュースレター　第23号　30-32　2010年

迅速パルス時間間隔解析による環境放射能測定

橋本 哲夫*

New determination method of environmental radionuclides into decay-series using rapid pulse TIA (Time Interval Analysis) method for radiation-induced pulses

Tetsuo Hashimoto*

* 新潟大学名誉教授 & NRI研究所代表，　Emeritus Professor of Niigata Univ. & NRI-Institute

はじめに

天然物に含まれる微量な自然放射性核種を測定してウランやトリウム壊変系列に分別して測定するための簡便法がなく，従来は高感度の放射線測定器を用いて低バックグラウンドの下でγ線スペクトル測定を長時間測定行う必要があった．一方，同じ目的のために化学収率補正のトレーサを用い化学分離を適用してα線スペクトル測定を長時間行う方法も，非平衡を用いた年代測定には使われてきたが複雑であった．

何れの方法も高価な測定装置や設備とともに高度の技術を要するため研究者以外には普及していない．しかしながら，我々の生活圏内に必然的に付随する自然放射性核種の系統的な簡便な測定法の開発が，特に放射年代測定とか，大気中のラドン濃度の変動測定などの地球科学の分野で期待されていたが，画期的方法は見出されていなかった．

現役教官時代から退官後に至る今日まで微弱環境放射能の測定法の開発を私自身継続している．その一つとして，ウランやトリウム系列に属する多数の核種が存在する中から，選択的にミリ秒やマイクロ秒で連続して壊変する事象(以下では相関事象と呼ぶ)を抽出する新しい放射線測定法を提案してきている．本方法の基本形は，粉末試料から発生するラドンガスのシンチレションパルス計測で，二つのカウンター(計数器)で測定し，その片方の計測器に200ミリ秒程度のデッドタイムを設定して，両計数値の差異に基づきトロン量を評価する方法であった．天然壊変系列に含まれる145ミリ秒の連続壊変現象を相関現象として捉えて壊変系列毎の壊変率を見積もる方法であったが，統計誤差も大きいためか，今日の利用は殆んど利用されていない．このアイデアを全く新しく基本から検討し，迅速時間間隔解析（Time Interval Analysis: TIA）法を開発できた[1)]．

表　TIA法適用可能なミリ・マイクロ秒オーダの相関事象を含む系列

放射壊変系列	
U系列	^{214}Bi → ^{214}Po (164 μsec) → ^{210}Pb (β-α相関事象)
Th系列	^{220}Rn → ^{216}Po (145 msec) → ^{212}Pb (α-α相関事象)
Ac系列	^{219}Rn → ^{215}Po (1.8 msec) → ^{211}Pb (α-α相関事象)
Np系列	^{221}Fr → ^{217}At (32.3 msec) → ^{213}Bi (α-α相関事象)
	^{213}Bi → ^{213}Po (4.2 μsec) → ^{209}Pb (β-α相関事象)

TIA法は，主としてシンチレション放射線測定器からの放射壊変由来のパルスの発生の時間間隔分布を利用し，表に見られるThやAc系列のミリ秒程度のα-α相関現象をバックグランドの妨害なしに抽出測定できる特徴を有している．

近年，液体シンチレション測定でαとβ線の弁別測定と共に，半導体の迅速化が進みマイクロ秒オーダの時間間隔測定も可能となったので，Rn子孫核種(U系列)に属する^{214}Bi(β)→^{214}Po（α，$T_{1/2}$=164μs）のマイクロ秒間隔のβ-α相関事象を抽出するシステムを開発できた．このシステムにより大気塵埃付着のRn子孫核種の連続観測に成功し，核燃料取り扱い施設のオンラインモニターとして使えることを報告した[1,2)]．

本研究では開発してきた3チャンネル入力TIAシステムの有効性の更なる確認のため，液体シンチレーションカウンターやフォスフィッチ型α/β弁別検出器と組み合わせた壊変系列核種の簡便高感度検出測定について報告する．

実験

以下の2つの放射線測定器からのパルスを計測し，αとβ計数率および迅速TIA計数率から，系列核種の同定を行った．

i)液シン測定； HFと硝酸の混液で溶解した石

英粒子試料（2g）から，硫酸塩と炭酸塩沈殿法で精製し，ついでアルカリ溶液（pH:12）とした溶液からRaをRADEX(Ra専用液体シンチレータ約２ml)で抽出した．抽出済みのシンチレータを光電子増倍管１本からなり反射鏡付きのPERALS(ORDERA　8100AB)で計測した[3]．この装置は波高弁別によるα線パルスと全体のパルスの出力ができるので，両方のパルス計数率の出力を迅速パルス時間解析・表示システム（Z-COSMOS製,HTS-2）に入力した．このシステムは3種のパルスの入力時間と同時に計数率を記録すると共に，これらのデータを用いてオンラインでパルスの時間間隔を求めその結果を積算しつつ液晶画面に表示できる．すなわちパルス時間間隔解析（TIA）と共にα-β計数率の時系列変化も1マイクロ秒の時間分解能で調べることが可能な優れものである．

ii) α/β弁別測定；大気をガラスセルロースろ紙に吸引捕集しつつ，捕集塵埃上部に設置したフォスフィッチ(ZnS(Ag)　とプラスッチックシンチレションを組み合わせた検出器)型α/β弁別検出器で検出した．検出器からのパルス出力を迅速時間間隔解析システム用いてTIA解析し，その結果をオンラインで液晶画面に表示した．

結果と考察

時間間隔解析(TIA)法は，これまではコンピューターの処理時間の遅さから，ミリ秒オーダのTh系列中の相関事象であるRn-220(α)→Po-218(α；　145mS）→に用いられており[4]，バックグランドが数cps以上の試料では相関事象率に含まれる誤差が大きく問題であった．しかしながら，迅速TIAシステムの導入により，バックグランドが1000cpsでも妨害なくマイクロ秒オーダのU系列の相関事象を選択的に抽出出来た．

i) 石英中のサブppmレベルのUやThの簡便検出定量がNp系列由来のRa-225用いて化学収率を補正することで(2回の測定を要する)可能となった．すなわち，U系列のみならず，Np系列の抽出測定が確認できた[3]．

ii) 大気捕集塵埃からの(a)β-αTIA(短寿命核種の壊変に相当)分布スペクトルを(b)パラメータR_α・R_βの時系列変化ともに右図に示す[1]．相関事象としてはBi-214(β)→Po-214(α)→連続壊変由来の事象である．解析の結果βトリガーパルスに引き続くαパルスのTIA壊変はPo-214の半減期である164マイクロ秒と一致していた(a)．相関事象率やαとβ壊変率を利用した人工核種混入パ

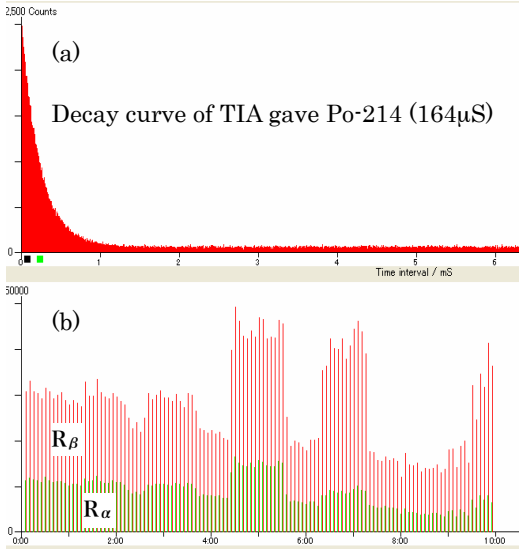

図　捕集大気塵埃からのβ-α相関事象の壊変曲線(a)と捕集時系列に伴う人工核種検知パラメータ(R_α, R_β)の変化 (b) [1]．

ラメータR_α・R_βの突起部は，α-β線放出のU線源(三種)とβ放出のRa線源(一種)を捕集中の塵埃上に挿入した結果であり，これらの変化を利用することでオンライン人工核種の混入の検知にとって，図に示すように，TIAスペクトル(a)とR_α・R_βの時系列変化(b)が有効であることを見出した．リアルタイムでの検知が可能であり，核物質取り扱い施設の放射線モニターリングへの利用が期待される．

ii)でβ-α相関現象のみ計測でき，i)ではβ-α，α-α両相関現象に適用できた．ii)ではTh系列のPo-218のα-α相関事象が大気塵埃のみならず，電着後20年以上保存しており娘諸核種と放射平衡に達しているU-232線源を使用したときもTn由来の相関事象を検出できなかった．おそらく，シンチレーション検出器でのαとβパルスの波高の違いのため，αではパルス処理に時間を要しデッドタイムが生じているためと考えている．そこで，Th系列中のTn娘核種に存在するより短いサブマイクロ秒のβ-α相関事象に注目している．このことは，より迅速なデータ処理が必要となるのは言うまでもない．今回の迅速TIAシステムの開発により，対象相関事象が拡大し，測定後単一の時間ファイルを利用して複数のTIAの解析も出来ることになった．

文献

1)橋本・石山・伊藤; 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測定―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，Radioisotopes, 57, 679-694(2 008),
2) 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解析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)
3) Hashimoto, T., Sanada, and Y., Uezu, Y.; Simultaneous determination of radionuclides belonging to three nztural decay series using teime-interval analysis (TIA), Anal. Bioanal. Chem., 379, 227-233(2004)
4) Hashimoto, T., and Sakai, Y.; Selective determination of extremely low-levels of thorium series in environmental samples bya a new delayed coincidence method, J. Radioanal. Nucl. Che., Articles, 138, 195-206(1990)