

令和 6 年 5 月 17 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04561

研究課題名（和文）ラドン壊変物の影響を除いた低バックグラウンド放射線監視システムの実現に向けた研究

研究課題名（英文）Fundamental study aiming for low-background radiation monitoring system excluding the effect of radon decay products

研究代表者

小島 康明 (KOJIMA, Yasuaki)

名古屋大学・アイソトープ総合センター・准教授

研究者番号：80314730

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：自然放射性核種の影響を排除することで測定の下限值を下げ、低バックグラウンドでの放射線モニタリングを実現することを目指した基礎研究を行った。エアサンプラーを用いて濾紙上に捕集した空気中エアロゾルを測定試料とし、そこから放出される放射線をPIPS検出器およびNaI検出器で測定した。また、「時間情報付きリスト形式」で保存したデータをオフラインで解析するプログラムを作成した。検出イベントの時間差ヒストグラムには半減期168マイクロ秒で減衰する特徴的な成分が見られた。これはPo-214の半減期に一致することから、Po-214の崩壊に起因するイベントを抽出できることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射線施設周辺の環境モニタリングを行う際に、放射線検出データを時間情報付きのリストデータ形式で保存する手法を適用することで、従来法よりも格段に自由度の高いデータ解析を可能にすることを目指したものである。従来の方法では捨てられていた検出時間情報を活用することで、伝統的な手法では得ることが困難な情報を引き出すことができ、実際、Bi-214、Po-214、Pb-210の崩壊連鎖のイベントを抽出できること等を確認した。本データ収集法の放射線管理分野へのさらなる活用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this studies is improvement of the lower limit of radiation monitoring system by eliminating the effect of natural radionuclides. Airborne aerosols collected on filter paper using an air sampler were used as the measurement samples, and the radiations emitted from them were measured with a PIPS and an NaI detector. Also, a software was developed to analyze the data stored in a list format with time stamp. The time-difference histograms of the detected events showed a characteristic time component with a half-life of about 168 microseconds. This corresponds to the half-life value of Po-214; It was confirmed that events caused by the decay of Po-214 can be extracted.

研究分野：放射線計測

キーワード：放射線計測 リストデータ 天然放射性核種 ラドン壊変核種

1. 研究開始当初の背景

非密封放射性物質を使用する放射線あるいは原子力関連施設では、放射性物質の放出を監視するために環境放射線モニターを設置している。生活環境の安全性を担保し、近隣住民の不安を解消するためには、法定基準を十分に下回る線量を検出できるモニタリングを行うことが望ましい。このため、大型で高感度な NaI シンチレーション検出器等を用いることが多いが、一方で高感度の測定器を用いる弊害として、自然放射線に対する感度も上がってしまうことが指摘できる。特に、降雨時は大気中の自然放射性核種が雨滴に湿性沈着して地表付近に落下・集積されるため、モニタリング値が一時的に急上昇することが知られている。このことは、施設から放出される放射性物質の測定下限値が上がることを意味するため、放射線安全管理上、解決すべき課題である。

放射線モニターでの測定値に影響を及ぼす代表的な天然放射性核種には、ラドン壊変核種の ^{214}Pb (半減期 27 分) や ^{214}Bi (同 20 分) がある。 ^{214}Pb はエネルギーが 352keV 等の γ 線を、 ^{214}Bi は 609keV 等の γ 線を放出するため、バックグラウンド除去のための単純なアイデアとしては、それらのエネルギーの検出イベントをモニタリング結果から除外することがまずは思い浮かぶ。しかし、これは適切な方法ではない。なぜなら、 ^{214}Pb および ^{214}Bi の γ 線エネルギーは、放射線施設周辺のモニタリングで重要な ^{131}I および ^{134}Cs から放出される γ 線エネルギーに近接しているため (それぞれ 364 および 605keV)、測定結果に含めることが不可欠だからである。このため、エネルギー情報だけに頼るのではない、新たな低バックグラウンド測定手法の開発が望まれる。

さらに、多くの放射線施設が抱える悩みとして、放射線管理に使用できる予算が少ないこと、また、管理に携わる職員が必ずしも計測の専門家とは限らないということが挙げられる。すなわち、複雑なスペクトル解析を行うことでバックグラウンド除去を実現する手法は、安全管理の現場からは求められていない。

2. 研究の目的

近年、放射線計測分野にデジタル処理技術が急速に普及してきており、従来よりも格段に高性能な計測装置を安価に導入できるようになってきた。このうち、時間情報付きリストデータ収集装置 (以下では、リストデータ収集装置と呼ぶ) を用いると、放射線のエネルギーおよび検出時刻を、測定器へ放射線が入射し検出されること (以下では、イベントと呼ぶ) に記録することができるため (イメージとしては、「箇条書き」のように情報を記録する)、原子核・素粒子実験の分野で広く使われるようになってきている。

本研究は、 ^{214}Bi が ^{214}Po に壊変後、半減期 164 マイクロ秒という特徴的な短時間で ^{210}Pb に α 壊変することに着目する (図 1 . 文献[1]を基に作成)。リストデータを解析してエネルギーと検出時刻の両方の情報の相関を調べることで、 ^{214}Bi - ^{214}Po の壊変連鎖事象を選別する。その上で、 ^{214}Bi - ^{214}Po 事象を取り除いたリストデータをモニタリングの対象とすることで、バックグラウンドの影響を低減させ、検出下限を引き下げることを行う。言い換えると、既存の放射線モニタリング装置では活用されていない検出時刻に関する情報を、リストデータ収集装置を用いることで積極的に活用し、測定技術を高度化する。本申請は提案手法を実現するための基礎研究を行うものであるが、将来的にはデータ処理手法をパッケージ化し、誰でも簡単に利用可能なシステムを構築することを目指しており、本研究をその出発点にしたい。

3. 研究の方法

3. 1 エアロゾルの捕集と最適な捕集時間の決定

大気中の自然放射性核種を測定試料とした。具体的には、室内空気中のエアロゾルをハイボリュームエアサンプラー (柴田科学, HV-500R) でガラス繊維フィルター (以下では、濾紙と呼ぶ) 上に捕集し、エアロゾルに付着している放射性核種を次節で述べる放射

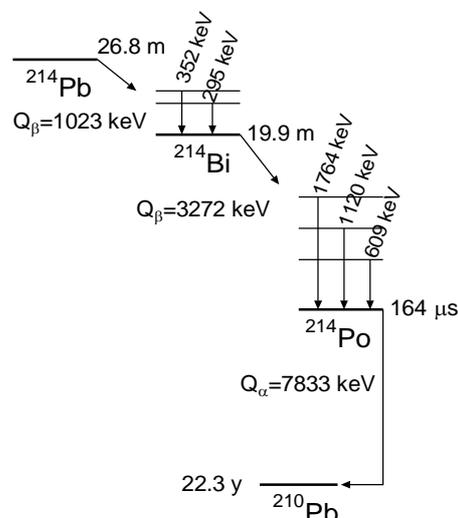


図 1 ^{214}Pb の崩壊連鎖

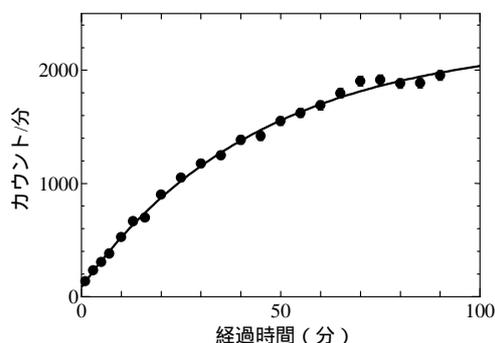


図 2 エアロゾル捕集中の濾紙表面の放射線計数。横軸は捕集開始からの経過時間。

線測定器で測定した。

一連の実験に先立ち、最適なエアロゾル捕集時間を決定するために、GM サーベイメータを用いて、エアロゾル捕集中の濾紙表面から放出される放射線の計数を数分おきに計測した。その結果を図2に示す。時間とともに計数が増えていき、空気中の放射性核種が濾紙に捕集されていっていることが分かる。計数は70～90分で飽和値に達していることから、以降の実験での捕集時間を90分と決めた。90分間の吸引空気量はおよそ45m³である。

3.2 エアロゾル試料の測定

濾紙に付着した自然放射性核種の測定は、PIPS型シリコン検出器(キャンベラCAM600AM, 表面積600mm², 空乏層厚およそ0.3mm)とNaI(Tl)シンチレーション検出器(SCIONIX, 直径2インチ, 長さ2インチ)を用いて行った。今回使用したPIPS検出器は、入射窓の厚さが極めて薄いため(シリコン換算でおよそ2μm)、β線に加えて、α線の測定も可能である。また、入射窓が遮光膜を兼ねているため、明るい室内でも特別な測定チャンバーを用いずに使用できるという利点があり、放射線モニタリングへの適用を考えた場合、適切な測定器である。以下の測定は、実験室の空気中で行った。

それぞれの測定器からの検出信号はプレアンプで波形整形した後、デジタル式のリストデータ収集装置(テクノエーピー, APV8002)を用いて記録した。本装置の場合、測定中にリアルタイムでエネルギースペクトル等を見ることができないという短所がある。しかしながら、自作のプログラムによるデータ解析方法を工夫することで、測定終了後に様々な情報を引き出せる利点があるため、本装置によるデータ収集を行った。

一枚の濾紙試料の測定時間は2時間程度とした。統計精度を上げるために「捕集 測定」を複数回繰り返した。また、放射線施設から漏洩した放射性核種を模擬するため、一部の試験では濾紙試料の近くに¹³⁷Csの密封β線源を置いて測定した。

4. 研究成果

以下では測定結果の代表例をいくつか述べる。

図3はエアロゾル捕集後の濾紙を測定して得られたエネルギースペクトルである。図3(a)の0～500ch付近の成分は主にβ線、それよりも高い領域はα線に起因する成分、図3(b)はγ線スペクトルである。遮へいをしていないので、室内バックグラウンドを含んでいる。また、α線は本来は線スペクトルであるが、空気中で測定しているため、空気によるエネルギー損失を受けて連続スペクトルになっている。

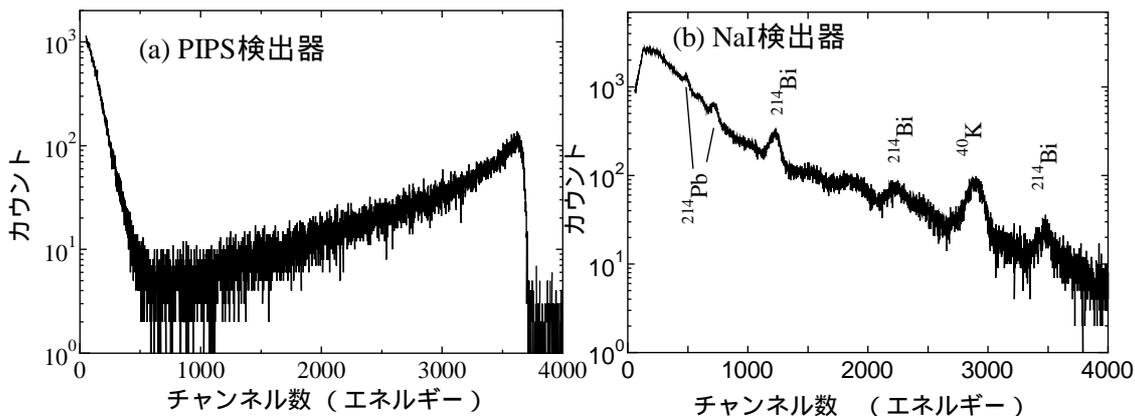


図3 エアロゾルを捕集した濾紙試料から放出された放射線のエネルギースペクトル。(a)はPIPS検出器、(b)はNaI(Tl)検出器での測定結果。

図4はPIPS検出器で測定された全イベントを対象に、時間的に隣接する事象の検出時間差を抽出し、ヒストグラムとしてプロットしたものである。時間的にほぼ一定な成分に加え、1ミリ秒程度で減衰する成分があることがわかる。この時間ヒストグラムを

$$y = a + b \exp(-ct) \quad (a, b, c \text{ はフィッティングパラメータ, } t \text{ は時間})$$

でフィッティングしたところ、指数関数部分の半減期として168μsが得られた。この値は²¹⁴Poの半減期の文献値164.3μs [1]と矛盾がない。図1に示す通り、²¹⁴Poは²¹⁴Biの娘核種であり、ウラン系列に属する代表的な自然放射性核種である。以上のことから、崩壊連鎖²¹⁴Bi-²¹⁴Po-²¹⁰Pbに起因する成分は、PIPS検出器で検出された時間差0～1ms程度の範囲内のイベントに表れていることが確認された。

このことを逆に利用すれば、ある時間的特性を持つイベントのみを抽出してデータ解析の対象とすることができる。これを行った例が図5である。この測定では、エアロゾルを捕集した濾紙試料に加え、¹³⁷Cs線源も同時に測定している。図4の黒線は全てのイベントを解析対象とし

たときの PIPS 測定器のエネルギースペクトルである(低エネルギー部分を拡大して示した)。濾紙試料だけを測った場合(図3(a))と比べ、0~250ch 付近に膨らみが見えたとともに、300ch 付近には“肩”が現れていることがわかる。前者は ^{137}Cs の β 線、後者は ^{137}Cs の内部転換電子に起因するものである。図5の青線は、データ解析の元データそのものは黒線と同じであるが、検出イベントの時間差が $170\mu\text{s}$ (^{214}Po の半減期にほぼ相当)以内のイベントのみを抽出し、そのエネルギースペクトルをプロットしたものである。原理的には、偶然成分を除けばこの時間差内には ^{137}Cs 線源に起因する放射線は入ってこないはずであり(半減期が長いため)、実際、青線には ^{137}Cs の内部転換電子ピークが消えていることがわかる。このことから、時間差情報を活用することで、ある程度ではあるが、放射線核種ごとにデータを分離できることが確認された。

最後に、時間情報付きリストデータ形式で放射線計測データを保存することで、従来法よりも格段に自由度の高いデータ解析が可能になり、伝統的な手法では得ることが困難な情報を引き出せる。引き続き研究を進め、放射線管理への活用を図っていきたい。

参考文献

- [1] R. B. Firestone, V. S. Shirley (Editors), Table of Isotopes, 8th edition, John Wiley & Sons, (1996).

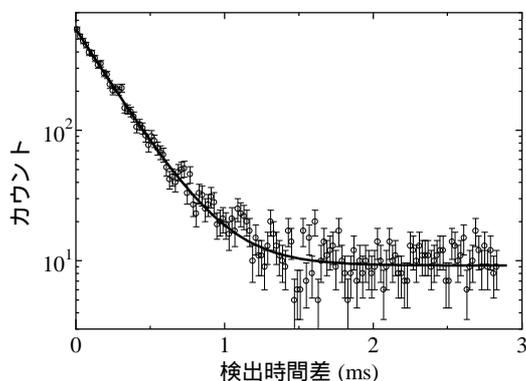


図4 PIPS 検出器で検出された事象の時間差ヒストグラム

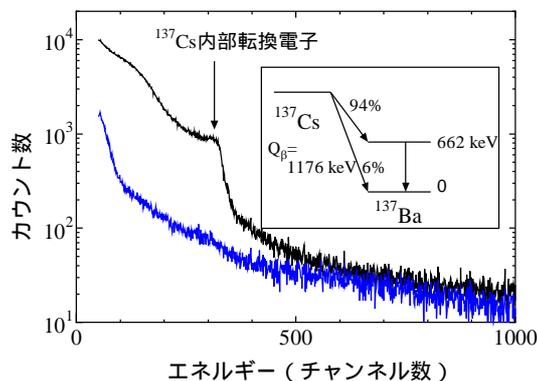


図5 濾紙と ^{137}Cs β 線源を PIPS 検出器で同時に測定したときのエネルギースペクトル。黒線は全てのイベントを、青線は時間差 $170\mu\text{s}$ 以内のイベントのみを解析対象とした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

小島康明, 「リストデータ形式のデータ収集系を用いた放射性エアロゾル測定の紹介」, トレーサー, 75号 (2024年3月) pp.8-9.

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------