



時間間隔解析技術を用いた 次世代放射線モニタリングシステム

植頭 康裕 橋本 哲夫*

東海事業所 放射線安全部

*新潟大学 理学部

Next generation Radiation Monitoring System Using Time Interval Analysis

Yasuhiro UEZU Tetsuo HASHIMOTO*

Radiation Protection Division, Tokai Works

*Faculty of Science, Niigata University

キーワード

時間間隔解析, 長半減期核種, 迅速定量, 天然放射性物質, 大気浮遊塵, プルトニウム, ラドン, トロン

Time Interval Analysis, Long Lived Nuclides, Rapid Determination, Natural Radiation Material, Dust, Plutonium, Radon, Thoron

1. はじめに

原子力施設内の放射線管理や周辺環境の放射線監視において、天然に存在するラドン等からの放射線と施設からの放射性物質による放射線を迅速に分離し、施設からの影響を正確に評価することは極めて重要である。特に線を出すプルトニウムやウランは、内部被ばく時の線量寄与が大きい¹⁾ことから線を出す放射性物質に比べて、管理基準は非常に低いレベルに設定されている。しかし、プルトニウム等線放出核種の測定は、天然の放射性物質による妨害が大きく、迅速かつ正確に定量することが難しかった。特にこれらを取り扱う再処理施設や核燃料加工施設では、天然の放射性物質の影響を除去し、極微量の線放出核種を定量できる正確で迅速な測定方法

の開発が大きな課題になっていた。

これまででは、測定の妨害となる天然の放射性物質の半減期がプルトニウム等の対象核種の半減期に比べて短いことを利用して、試料に含まれるラドン等の放射線の影響が弱まるまで数時間以上放置した後に測定する方法や放射線のエネルギーの違いを利用する方法、あるいは化学的に分析する方法などが用いられてきた。しかし、いずれも天然の放射性物質の妨害を除去することが難しい、あるいは時間がかかるなど正確性や迅速性に欠けていた。このため、事故時などにプルトニウムやウランの量を迅速かつ正確に測定することは困難であった。

そこで、プルトニウムやウラン等線を出す長半減期核種を迅速かつ正確に定量するために、検出器に入射した放射線由来のパルスの時間間隔分布とエネルギー分布の情報を組み合わせ、ラドン (^{222}Rn)・トロン (^{220}Rn) の壊変生成物由来のパルスを電子回路上で減算することにした。

2. 概念

本技術は、天然の放射性物質であるラドン及びその壊変生成物等が短半減期放射性物質であるため、放射線のパルスが一定の時間間隔内に連続し



植頭 康裕

環境監視課放出管理チーム所属
副主任研究員
施設周辺環境モニタリング及び環境試料中の放射性物質の分析・測定法の開発業務に従事



橋本 哲夫

新潟大学理学部教授
環境監視課客員研究員
環境放射線及び放射能の分析・測定方法と動態に関する研究に従事

て検出器に入射する確率が高い(以下「相関事象」という。), プルトニウムのような長半減期放射性物質は, 測定時間内にランダムに入射するという違いを利用したものである。技術的には, 検出器に入射した放射線のパルス信号を統計処理し, 電子回路上でこれら天然の放射性物質の妨害を除去することにより長半減期核種の正確な測定が可能となる。図1に時間間隔解析法による天然放射性壊変系列中の着目核種を示す。

時間間隔解析法はおおむねマイクロ秒からミリ秒オーダーの半減期を有する核種の減算に適用でき, ウラン系列においては, ²¹⁴Bi-²¹⁴Po のパルス対を除去できるものであり, トリウム系列においては, ²²⁰Rn-²¹⁶Po 及び²¹²Bi-²¹²Po のパルス対が本法により除去できる。

これらパルスの時間間隔の計測には, 隣合ったパルス対の時間間隔解析を行う隣接時間間隔解析 (Single time interval analysis, 以下STA法) 及び任意の測定時間内のすべてのパルス対の時間間隔を解析する多重時間間隔解析 (Multiple time interval analysis, 以下MTA法)^{7)・8)} が存在し, これまでは主に短時間内で消滅する核種の炉内反応解析⁹⁾ に用いられてきたものである。この時間間隔解析の最終的な確率式は以下のとおりである。

$$MP(t)dt_{STA} = M[\lambda_r \cdot (\lambda_r + C) \cdot \exp[-(\lambda_r + C) \cdot t] + \lambda_b \cdot C \cdot \exp(-Ct)]dt \dots\dots (1)$$

$$MR(t)dt_{MTA} = M[\lambda_r \cdot \exp(-\lambda_r t) + C]dt \dots\dots (2)$$

ここでは, 上記式の各パラメータを以下のように定義する。M: 全計数値, λ_r : 相関事象発生率, λ_b : ランダム事象発生率, C : 相関事象の壊変定数, C: ランダム事象の計数率。

上式において, いずれも第一項は相関事象の発生確率を示し, 第二項は, ランダム事象の発生する確率を示している。

時間間隔解析では, 検出器に入射した放射線パルスのエネルギー情報と時間間隔情報を入手し, 統計処理を実施した後にエネルギースペクトル上から相関性を有する天然放射性物質を除去する。図2に本システムの構成を示す。

検出器は, ラドン・トロンの壊変生成物である²¹²Biや²¹⁴Biのような 線放出核種からの壊変により生成される 線放出核種を測定するために, 線及び高エネルギーの 線計測に高い感度と分解能を有する空乏層2,000µm厚のORTEC BA 030 450 2000 Sを用いて, 線及び線を検出する。それら放射線パルスは, アンプで増幅された後にADCにおいてデジタル変換

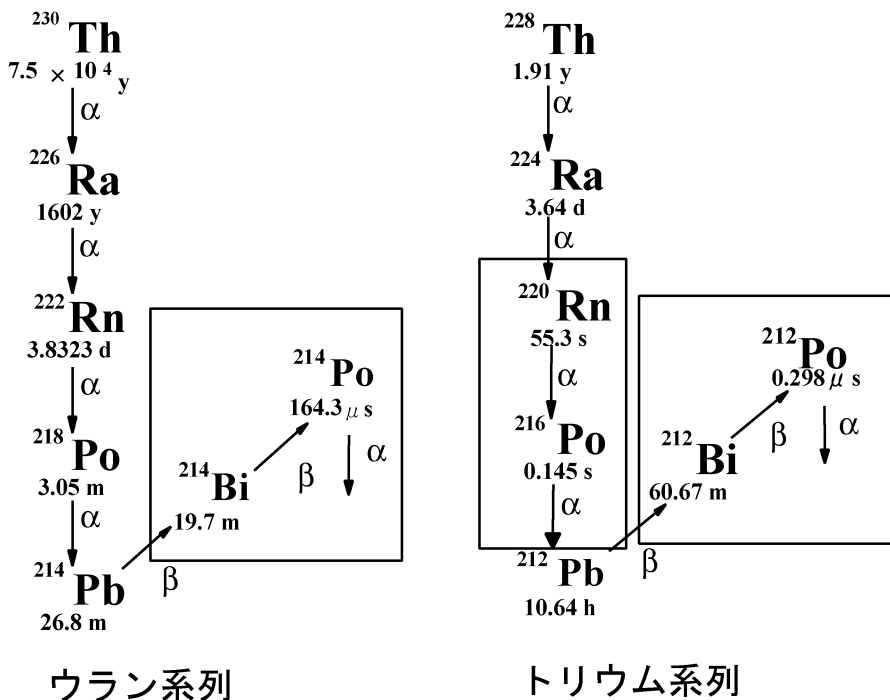


図1 天然放射性壊変系列における時間間隔解析法に適用可能な核種

シンポジウム

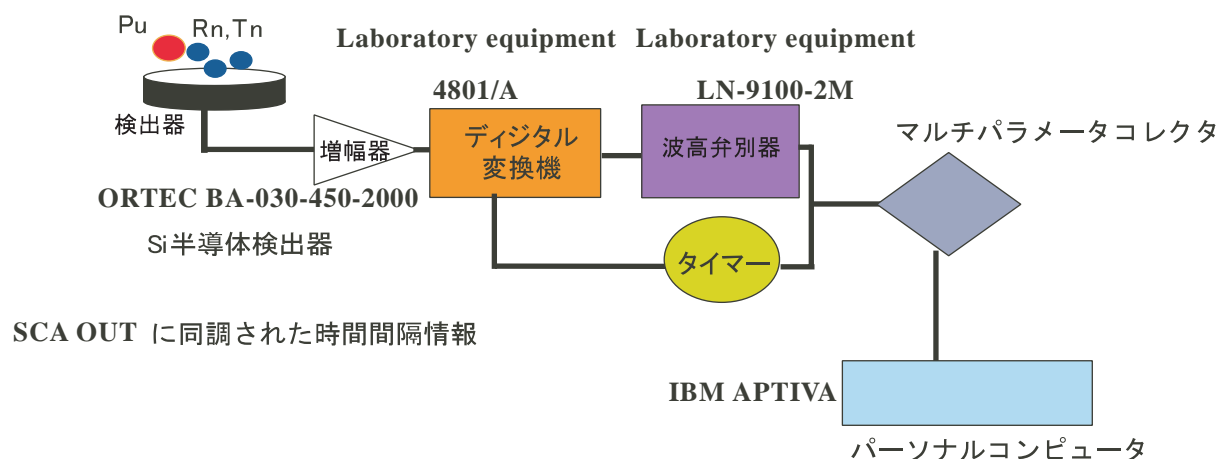


図2 時間間隔解析装置システム構成

されるが、その際に、波高弁別器とタイマーに同時に送信される。これらの情報を多重情報入力器（マルチパラメータコレクタ）に同時に入力させ、測定終了後に統計処理し、天然放射性物質からの放射線を除去するものである。

3. 実験

サイクル機構内で空気中のダストに付着したラドン・トロン壊変生成物を採取したダストろ紙にプルトニウムを添着し、前述の検出器で測定後に時間間隔解析により、ラドン・トロンの壊変生成物を減算することができるのかを試みた。採取の条件は、東京ダイレック社のダストサンブラ csp 50 を用いて、毎分100リットルでおよそ2時間空気中のダストを採取した。ダストを捕集するろ紙は、表面が平滑であり、プルトニウム等がろ紙の繊維内部に入り込まないミリポア製4フッ化エチレン系のメンブランフィルタ FSLW 04700を用いた。ダスト採取直後に試料表面に10数cpmのPu粒子を添着させ、飛散防止のためマイラ膜により表面を覆った。20分間の測定後に時間間隔解析による天然放射性物質の減算を試みた。

4. 結果と考察

図3にPu粒子を添加したダストろ紙を従来の方法で測定し求めたエネルギースペクトルを示す。

横軸がエネルギーであり、縦軸がカウント数である。低エネルギー側からラドン・トロン壊変生成物由来の線、Puを含む線及びラドン・トロン壊変生成物由来の線が認められる。

そこで、 ^{216}Po の半減期（145ミリ秒）の5倍の時間間隔内に入射したパルス対をエネルギースペクトル上から減算した結果を図4に示す。ここでは、高エネルギー側に存在していたラドン・トロンの壊変生成物を減算できたことが認められ、さらにPuを含む線領域においてもラドン・トロンの壊変生成物を減算することができた。その結果、添加したPu相当のピークが認められた。

さらに、ラドン・トロンの濃度の高い地点においてダストを採取し、時間間隔解析を行った結果を図5及び図6に示す。図5は図3同様に既存の方法で求めたエネルギースペクトルであり、低エネルギー側からラドン・トロン壊変生成物由来の線とPuを含む線及びラドン・トロン壊変生成物由来の線が明確に区別できず連続したスペクトルとなっている。

そこで、図4同様に ^{216}Po の半減期（145ミリ秒）の5倍の時間間隔内に入射したパルス対をエネルギースペクトル上から減算した結果が図6である。

図6は図5で認められたラドン・トロンによる連続的な影響が除かれており、プルトニウムのピークが認められる。このようなラドン・トロン濃度が高い条件の下においても、時間間隔解析を実施し、エネルギースペクトルからラドン・トロン壊変生成物由来のピークを減算することによって、プルトニウムのピークが浮かび上がることが確認できた。

ただし、試料の飛散防止のため、試料表面にマイラによるコーティングを行っているため、低エネルギーへのシフトとエネルギー分解能の劣化が

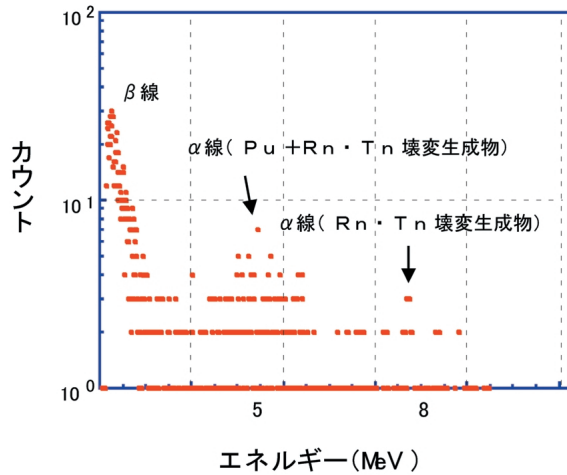


図3 ラドン・トロン壊変生成物とプルトニウムエネルギースペクトル

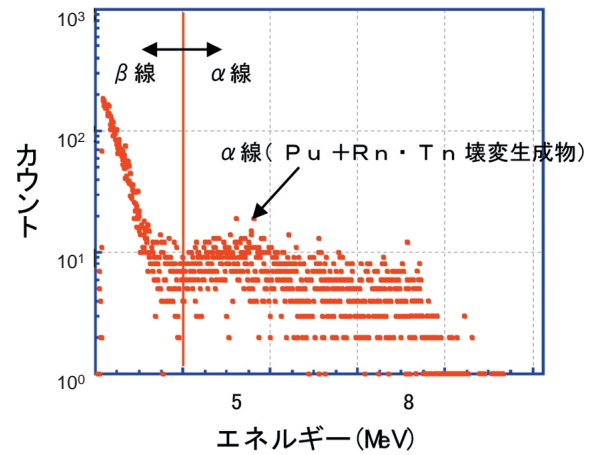


図5 ラドン・トロン壊変生成物の濃度が高い場合のプルトニウムを含む試料のエネルギースペクトル

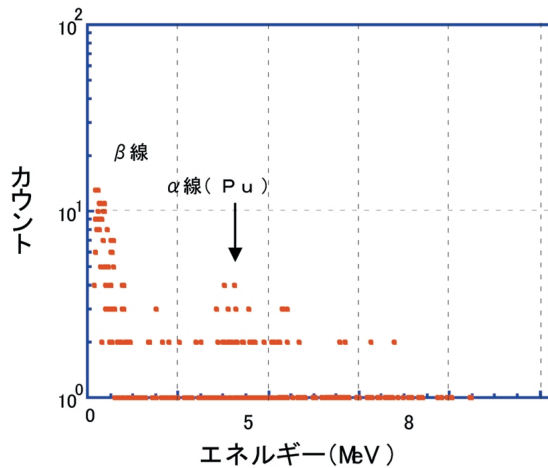


図4 時間間隔解析法によるラドン・トロン壊変生成物減算後のエネルギースペクトル

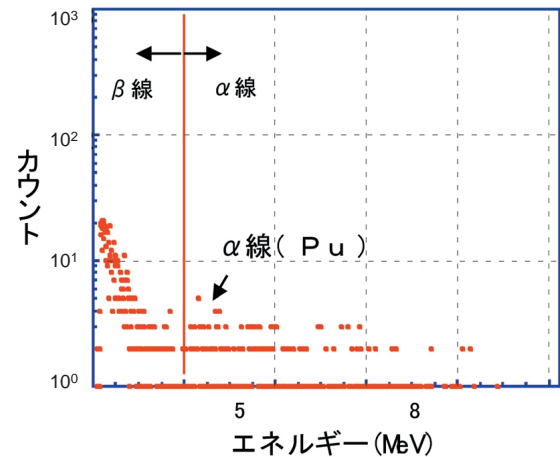


図6 時間間隔によるラドン・トロン壊変生成物減算後のエネルギースペクトル

生じている。

また、本法の検出下限値は、試料量 $6 \times 10^6 \text{ cm}^3$ 、試料測定時間 1 時間、バックグラウンド測定時間 1 時間、バックグラウンド 1 cpm、計数効率 30% の条件で、約 $6 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$ と見積もることができる。このレベルは ^{239}Pu の周辺監視区域の空気濃度限度である $8 \times 10^{-9} \text{ Bq/cm}^3$ を定量できる性能を有する。また、 ^{239}Pu の管理区域内の空気濃度限度を評価するためには、試料量 $2 \times 10^6 \text{ cm}^3$ (毎分 100L のサンプラで 20 分)、試料測定時間 10 分間、バックグラウンド測定時間 10 分間、バックグラウンド 1 cpm、計数効率 30% の条件で定量できる性能を有する。

今後は、マイラを用いない手法の検討、検出器の除染技術の確立、真空度に応じたエネルギー分解能等の検討、電子回路の高速化等を図り、再処理施設等への本システム導入へ向けた実用化研究を実施する。

5. おわりに

既存の方法ではラドン・トロンの壊変生成物のエネルギースペクトルに隠れてしまうような、プルトニウムのピークを時間間隔解析法によりラドン・トロンと区別することに成功した。本法の検出下限値は、試料量 $6 \times 10^6 \text{ cm}^3$ であり、周辺監視区域における ^{239}Pu の空気濃度限度を定量できる性

能を有していることを確認した。現状では、バックグラウンドの計数率は、ラドン・トロン等天然放射性物質を含む一般的な条件で計算されており、今後、時間間隔解析によりバックグラウンドを低下させることによってさらに低い濃度の²³⁹Puを定量できる。

従来、天然放射性物質の変動により、放射線モニター等に影響が生じていたが、本法が開発されたことによってこれらを解決できる見通しがついた。また、本システムをサーベイメータ等へ導入することによって、ラドン・トロン壊変生成物に反応しないサーベイメータを開発することが可能となる。

参考文献

- 1) 松岡理：プルトニウムの安全性評価，日刊工業新聞社
- 2) 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トリウム系列核種の絶対測定，Radioisotopes, **38**, 415-420, 1989
- 3) T. Hashimoto and Y. Sakai: J. Radioanal. Nucl. Chem. **138**, 195-206, 1990
- 4) T. Hashimoto, Y. Uezu, F. Ishizuka, H. Washio: J. Radioanal. Nucl. Chem., **173**, 87-97, 1993
- 5) T. Hashimoto, F. Ishizuka, Y. Yoneyama, T. Kubota, N. Fukuyama: J. Radioanal. Nucl. Chem., **197**, 99-114, 1995
- 6) T. Hashimoto, K. Sato, Y. Yoneyama, N. Fukuyama: J. Radioanal. Nucl. Chem., **222**, 109-116, 1997
- 7) T. Hashimoto, Y. Yoneyama, K. Sato, Y. Komatsu: J. Radioanal. Nucl. Chem., **239**, 619-629, 1999
- 8) T. Hashimoto, Y. Komatsu, D. G. Hong, Y. Uezu: Radiat. Meas., **33**, 95-101, 2001
- 9) Glenn F. Knoll: Radiation Detection and Measurement, John Wiley and Sons, Inc. New York, 2000