時間間隔解析を用いたダストモニタリング

石山　央存・山﨑　興樹

Continuous Monitoring of Radioactive Airborne Dust Using Time Interval Analysis (TIA)

Hisanobu Ishiyama and Koki Yamazaki.

Keywords: time interval analysis (TIA), radioactive airborne dust, online-monitoring, and total beta and alpha activities

1 はじめに

新潟県では，放射性ダストモニタリングにおける人工放射能の早期検出を目的として，時間間隔解析（TIA: Time Interval Analysis）法による自然放射線の定量を応用した新しい手法の確立に取り組んでいる．

これまでに，放射線の検出時刻を 32 ビットの時刻情報として処理しながら，時間差計算及び頻度分布（TIA スペクトル）表示を行う独自の解析装置を開発し，24 時間連続モニタリングに適用することができた[1, 2]．これにより，集じんろ紙面からの ^{214}Bi－^{214}Po に由来する μ 秒単位の $\beta-\alpha$ 連続壊変事象を数え落としなく測定することができ，これら天然核種由来の計数をモニタすることにより，空気中の全 β 及び全 α 計数の変動が天然核種の変動に由来することを示すことができた．

本稿では TIA の概念について解説するとともに，これまでの測定で得られた知見について紹介する．

2 実験方法

2. 1 TIA の概念

Th 系列における

$$^{220}\mathrm{Rn}\ (T_{1/2}=55.6\ \mathrm{s}) \xrightarrow{\alpha} {}^{216}\mathrm{Po}\ (T_{1/2}=145\ \mathrm{ms}) \xrightarrow{\alpha} {}^{212}\mathrm{Pb} \quad \cdots (1)$$

あるいは U 系列中の

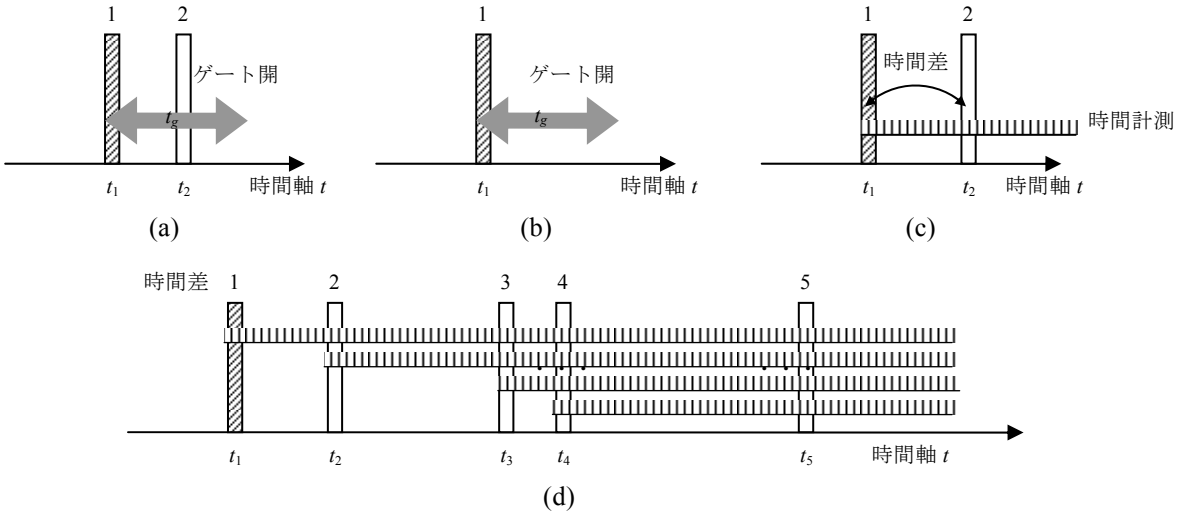
$$^{214}\mathrm{Bi}\ (T_{1/2}=19.9\ \mathrm{m}) \xrightarrow{\beta} {}^{214}\mathrm{Po}\ (T_{1/2}=164\ \mu\mathrm{s}) \xrightarrow{\alpha} {}^{210}\mathrm{Pb} \quad \cdots (2)$$

のように，数秒～数十分程度の寿命の親核種に続いて，数ミリ秒～数マイクロ秒のごく短時間で壊変する子核種があるとき，この連続壊変する親子核種のペアを相関事象と呼ぶ．TIA は，もともと(1)式のような $\alpha-\alpha$ 相関事象を液体シンチレーション測定により定量するために橋本らが開発したテクニック[3-5]であり，放射線の波高分析による核種定量が困難な場合に威力を発揮する．

TIA の概念は，Fig. 1 のような放射線検出のモデルで説明される．

すなわち，放射線を測定器で検出されたパルスとして扱い，検出時刻の順に時間軸上に並べて表わすものとする．それらに 1，2，3，・・・，n と番号を振り，それぞれの検出時刻を t_1，t_2，t_3，・・・，t_n として記録する．例えば，Fig. 1(a)はパルス 1 及び 2 が記録された状態である．

ここで，Fig. 1(a) のように，放射線を 1 つ検出した際に，時間 t_g の幅でゲートを開くことを考えてみよう．そのうえで，通常の計数（全計数）のほかに，ゲート内に入射した放射線の計数も記録することとする．t_g は相関事象の子核種の壊変率にあわせて，半減期の数倍程度に設定する．



β	time / μs	α	time / μs	β−α	time interval / μs
1	10000.437574				
2	10000.456344				
3	10000.482761				
4	10000.489384				
		1	10000.508896	1	0.019512 (β4−α1)
5	10000.522626				
6	10000.531821				
7	10000.533019				
		2	10000.539319	2	0.006300 (β7−α2)
		3	10000.545977	3	0.012958 (β7−α3)
8	10000.553107				
		4	10000.553205	4	0.000098 (β8−α4)
9	10000.573365				
		5	10000.573439	5	0.000074 (β9−α5)
		6	10000.630976	6	0.057611 (β9−α6)
10	10000.633781				
		7	10000.634369		0.000588 (β10−α7)
11	10000.643694			7	
12	10000.657166				
		8	10000.668823	8	0.011657 (β12−α8)
13	10000.693261				
14	10000.703466				
15	10000.712052				
16	10000.717379				
17	10000.721363				
18	10000.723747				
19	10000.727390				
20	10000.733674				
		9	10000.754693	9	0.021019 (β20−α9)

(f)

Fig. 1 Conceptual expression of calculating time intervals for every detected radiation.
(a) 相関事象をゲート時間内に捕捉できた場合　(b) 相関事象が捕捉できなかった場合
(c) パルス間の時間間隔計測の概念　(d) 多重時間間隔解析法の概念
(e) 異なる入力チャンネル間の多重時間間隔解析の概念
(f) 実測データ例（表形式に整理；β－α時間間隔は最短のデータのみ示した）

Fig. 1(a)に示すように，もしパルス 1 が目的とする相関事象の親核種からの放射線（例えば，^{220}Rn からの α 線）によるものであれば，引き続いて t_g 内に子核種からの放射線（^{216}Po からの α 線）が検出される確率が高い．従って，相関事象計数として 1 つのカウントがあることが期待される．

しかし，Fig. 1(b) に示すように，パルス 1 が相関事象の親核種からの放射線でないとすれば，ゲート時間 t_g 内に子核種の放射線は検出されないであろう．

こうして測定を続ければ，トータルの計数と相関事象の計数を得ることができ，測定効率がわかれば，全放射能中の ^{220}Rn 及び ^{216}Po の放射能強度を知ることができる．

しかし，上記の説明は理想的な場合であって，実際にはいくつかの問題がある．まず，この手法では目的とする相関事象と，たまたま t_g 内に検出された他の放射線との判別ができない．また，計数されるのが放射線だけでなく，検出器等の問題で偽計数が発生したり，反対に数え落としが生じた場合にも同様に評価が難しい．さらに，実際にこのようなゲートの ON/OFF を短時間で繰り返すことは，回路に負荷がかかるうえ，t_g 内に複数のパルスが入射した場合の対策が複雑となるなどの問題もある．

そこで，単純なゲートを設定する代わりに，Fig. 1(c)に示すように，パルス検出後，以降のパルス検出までの時間を計測することを考えてみよう．つまり，パルス 2 が検出された際に，t_1 と t_2 の時間差（t_2-t_1）の情報も記録するものとする．

この方法の長所は，パルス 1 と 2 が相関事象であるかどうかを，時間差から確認できることである．親核種の壊変に続いて子核種が壊変する確率は，子核種の壊変率 λ に従うので，それらの放射線放出の時間差もまた，核種に固有の確率分布をとるからである．十分な数の測定を行えば，時間差の実測値の頻度分布は確率分布に一致し，Fig. 2 に示すような λ に依存した指数関数のグラフとなるため，半減期解析から核種同定が可能となる．

（このことは理論的に次のように表現される．相関事象の子核種（壊変率 λ）が時刻 $t = 0$ で存在し，時間 t 経過後の微小時間 dt の間に壊変する確率 $P(t)\,dt$ は，

$$P(t)\,dt = \exp(-\lambda t) - \exp\{-\lambda(t+dt)\}$$

$$= \exp(-\lambda t)\,\{1 - \exp(-\lambda\,dt)\},$$

dt が十分に小さい（半減期の 1/10 以下）とき，近似式 $e^x \approx 1 + x$ （x <<1 のとき）より，

$$\approx \lambda \exp(-\lambda t)\,dt.$$

ただし，Fig. 2 のようなデータを得るためには，Fig. 1(d)に示すように，前後の放射線の時間差だけではなく，放射線が一つ検出されるたびに以降の全ての放射線との時間差を計算し，その頻度分布をとる必要があり，この手法を多重時間間隔解析（Multiple Time interval Analysis; MTA）という[4-6]．このとき，相関事象以外のバックグラウンド（またはランダム）事象は，グラフでは見かけ上減衰のない，水平な成分として表れ，相関事象成分と区別できる．

なお，水平に見えるバックグラウンド事象も，厳密にはより長い減衰をもつ複数の指数関数の足し合わせであり，もし相関事象に近い半減期を持つ核種が存在する場合には，グラフの形状はやや複雑となる．このため，測定系としては，目的の相関事象のみが際立って短い半減期を持ち、また高い存在比であることが望ましい．

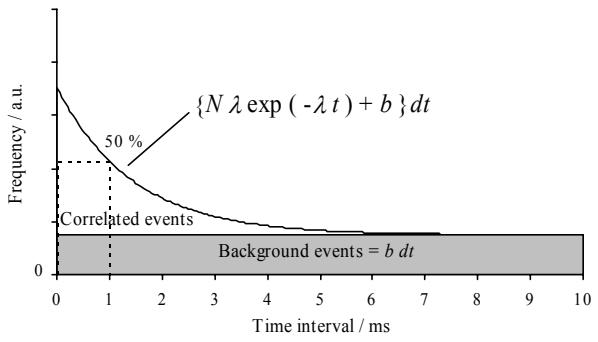


Fig. 2 An example of multiple time interval analysis by numerical simulation.
In this case, half life of the imaginary correlated events was set as 1 ms.
N and *b* are number of correlated and background events, respectively.

2. 2 TIA 装置

TIA を実際に行うに際して，(1)式のような ms レベルの相関事象だけでなく，(2)式のようなμs レベルの相関事象をも対象とする場合，ハード及びソフトウェア上のいくつかの工夫が必要となる．

まず，10^{-6} 桁を十分にカバーする桁数の時刻データが必要になるため，解析装置は 32 ビット以上のデータを扱えることが必須の条件となる．また，パルスが n 個あれば，それらの全間隔数は $n(n\text{-}1)/2$ 個であるため，測定時間を長くするなどして n が大きくなれば，処理すべき時間差データの数が膨大になることがわかる（ただし，実際には最小時間幅 dt×1,000 倍程度の時間で解析を停止している）．従って，測定しながらリアルタイムで解析結果を表示・取得するためには，μ秒レベルのタイマカウンタに加え，高速かつ大容量のメモリや，高速のデータ転送手段が必要となるほか，CPU 上で 2 つのプログラムを同時に動かすこと等が求められる．

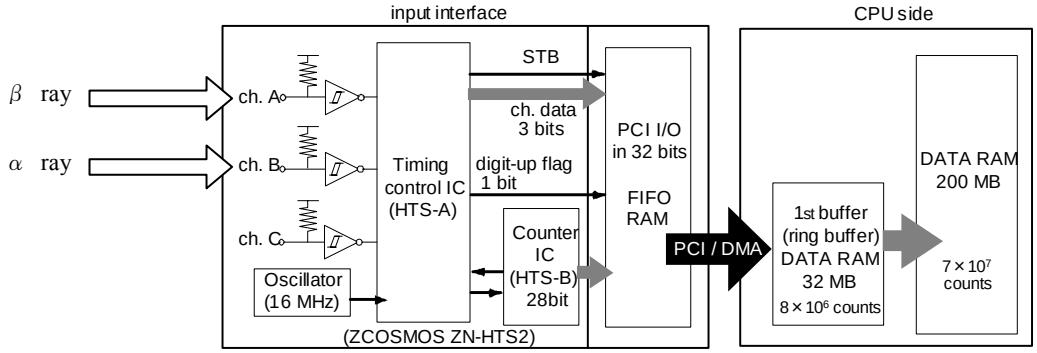


Fig. 3 Circuit diagram of the present TIA system

新潟県の導入した時間間隔解析装置[1,2,6-8]の構成図を Fig. 3 に示す. この装置は, カスタム IC と FIFO メモリつきの PCI/IO からなる入力インタフェースを備えた，専用の PC として組み上げている．データの RAM への転送は非同期 DMA を採用し，さらに CPU 側ではリングバッファを 1 次メモリとして使用することで，パルスの数え落としを極力減少させた．また，RAM 上に蓄積されたデータの解析とグラフ表示は，OS の Hyper threading モードまたは Dual Core CPU を利用して実現した．

もう 1 つの特徴は，3 つの入力チャンネルを備え，うち 2 つは異なるチャンネル間のパルスの時間差解析もできるようにしたことである．従って，(1)式のようなα－αの相関事象だけでなく，線質の異なる(2)式のようなβ－αの相関事象についても解析できるようになった．この場合の測定の概念を Fig. 1(e)に，実測例を Fig. 1(f)に示す．なお，装置の内部では全ての時刻情報を保持しているため，測定中でも即座に解析モードを切替えて，Ch. A－B 間，B－A 間，あるいは同一チャンネルの解析を表示することができる．また，解析の時間幅 dt も 1μs から 10 ms まで 6 段階に可変であり，測定中でも目的とする核種の半減期に合わせて切替え可能である．

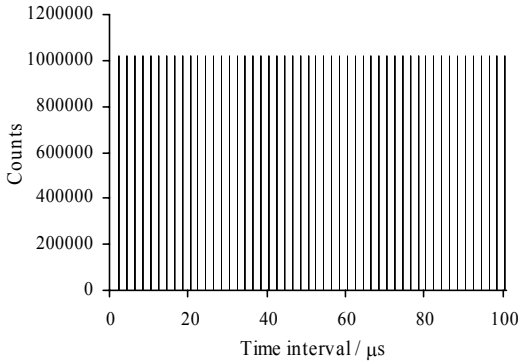


Fig. 4 TIA spectrum of regular pulse input using a pulse generator.
Pulse frequency: 0.5 MHz
(corresponding to time intervals of 2 μs)
Pulse width: 0.5 μs　measurement time: 2 sec.

本装置の性能試験として，パルス発生器（Aloka，MXG111）により，0.5 MHz（パルス間隔 : 2 μs）のパルスを発生させ，本装置で解析した結果を Fig. 4 に示す． ここでは，入力は 1 チャンネルのみとした．50 万 Bq の放射線に相当するパルスでも，問題なく解析・表示することができた．

2. 3　ダスト放射能の測定

Fig. 5 に当県のダストモニタの概要を示す. 本モニタは, 11 局のモニタリングポストのうち柏崎市街局, 刈羽局, 西山局の 3 局に設置した. 装置の動作は，テレメータシステムによりリモート自動制御とした.

なお, システムは 2008 年 3 月に更新したものであり，より詳細な情報は前報 [1)]にて報告したところであるが，概要を Table 1 に示す.

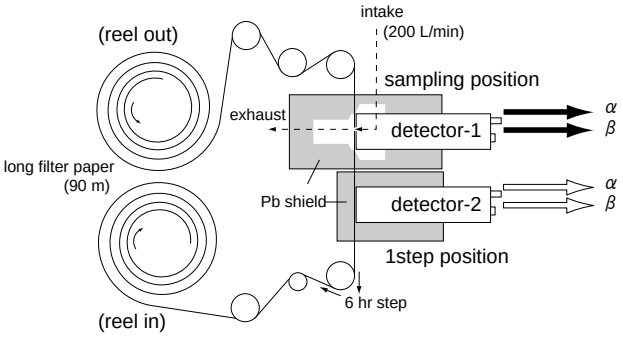


Fig. 5 Schematic diagram of the dust monitor.

Fig. 5 中の detector-1 は，ダストの集じん位置に設置してあり，ろ紙上に蓄積されるダストからの放射能を直接測定し，得られた全α線と全β線のパルスを常時後段の計数装置へ転送している. この転送ケーブルを T 型コネクタで分岐し，α線とβ線の検出パルスを，Fig. 3 に示すように，それぞれ TIA 装置の入力チャンネルに導入した.

Table 1 Outline of sampling and measurement for radioactive airborne dust.

方式	6 時間ごとの間欠集じん・測定方式
集じん時間帯	0～6 時，6～12 時，12～18 時，18～24 時の 1 日 4 回固定
吸引流量	約 200 l/min
ろ紙	長尺セルロース・ガラス繊維ろ紙（ADVANTEC，HE-40T）
検出器	ZnS (Ag) 薄膜＋プラスチックシンチレータ式検出器 （Ohyo Koken Kogyo，S-2416S）
検出位置	集じん位置及び 1 ステップ送り位置
検出器計数効率	α：約 26 %（^{241}Am），β：約 22 %（^{36}Cl）
測定時間	2 分測定を連続
α／β弁別方式	波形弁別（Ohyo Koken Kogyo，S-2823RHC）
出力パルス波形	TTL レベル（幅 1 μs，波高 5 V）
時間間隔解析	β－α の連続解析（U 系列中の ^{214}Bi－^{214}Po を対象）

ろ紙上に捕集されたダストには自然放射性核種が含まれており，中でも U 系列中の

$$^{214}\mathrm{Pb}\ (T_{1/2}=26.8\ \mathrm{m}) \rightarrow {}^{214}\mathrm{Bi}\ (T_{1/2}=19.9\ \mathrm{m}) \rightarrow {}^{214}\mathrm{Po}\ (T_{1/2}=164\ \mu\mathrm{s}) \rightarrow \cdots (3)$$

の寄与が大きく，人工核種検出のための妨害放射線となる．本 TIA 装置により，この自然核種寄与分を評価し, 全放射能から差引くことで, 人工核種に由来する放射線のみを検出することが目標である.

3　結 果 と 考 察

3. 1　相関事象測定結果

本 TIA 装置により得られた，集じん中のβ－α相関事象の MTA スペクトル（時間間隔頻度分布）を Fig. 6 に，またその相関事象の計数トレンド（2 分値）を全α及び全β計数とともに Fig.7 に示す.

Fig. 6 では，ろ紙上に集じんされたダストからの相関事象の計数が指数関数成分として，水平なバックグラウンド事象の上に現れていることがわかる．データを計数誤差で重み付けして指数関数によりフィッティングしたところ，半減期として 163.1±0.6 μ 秒を得ることができ，^{214}Po の半減期によく一致してことから，^{214}Bi－^{214}Po 由来の壊変であることを確認できた.

なお，Fig. 6 からわかるように，MTA スペクトル上では 5 μ s よりも短い時間間隔における計数が低くなった．パルス発生器を用いた測定では，この現象は生じなかった（FIg. 4）ことから，この計数低下は TIA 装置ではなく，検出器等の測定系に起因する不感時間によるものと考えられる．ただし，こ

の不感時間による計数の低下は，相関事象計数全体の 3 %以下であると見積もられ，測定値に与える影響は少ないと考えた．また，ダストからのβ－α相関事象としては，U 系列のほかに Th 系列の ^{212}Bi（β）－^{212}Po（α）があるが，^{212}Po の半減期が 0.299μs とパルス幅の 1μs よりも短いうえに，この検出器の不感時間に重なるため，測定されなかった．

Fig. 6 において，水平成分を差し引いた部分の面積が相関事象（すなわち，^{214}Bi 及び ^{214}Po に由来の）の計数である．測定プログラムにより，この計数率を 2 分ごとに算出し，全α，全β計数とともに監視センターへ伝送し，Fig. 7 のように，それらの比とともにモニタすることができた．またこの測定をシステム導入の 2008 年 3 月以来，約 2 年間大きな問題なく連続運用できている．

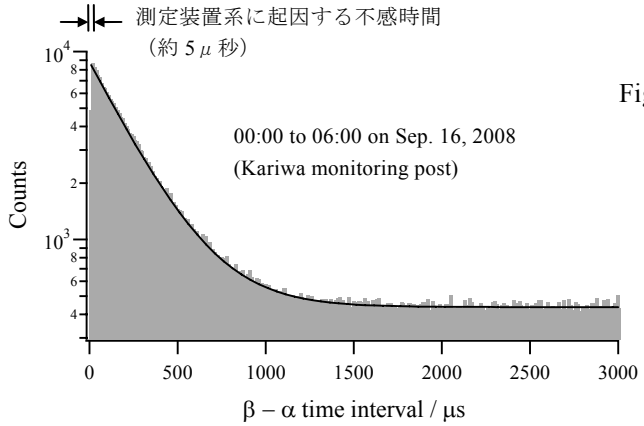


Fig.6 Typical TIA spectrum due to β-α correlated events from airborne dust sampled on the filter paper.
Measurement was conducted during sampling. A curved line indicates a fitting of
$A(t) = k_1\exp(-\lambda_i t)+k_0$,
from which λ_i was estimated as 163.1±0.6 μs.
Sampling and measurement time: 6 hours.

Fig. 7 では，集じん時間帯によって測定値に大きな変動が認められたものの，全α及び全βのトレンドは, TIA によって得られた相関事象計数の変動傾向によく一致し, 比もほぼ一定であることから，それらの変動が天然由来であることを示している．2008 年 8 月 13 日の 05:58 及び 06:00 には，全β計数について 2008 年度中の最高値である 5639 cpm（刈羽局における）を記録したが，相関事象との比には変化が無いことから自然放射線によるものであると考えられた．なお，Fig. 7 の結果も含め，2009 年 12 月までの全データについて，人工核種が認められないことを，集じん後 1 ステップ送り位置での測定結果，及びろ紙回収後のγ線スペクトロメトリにより確認した．

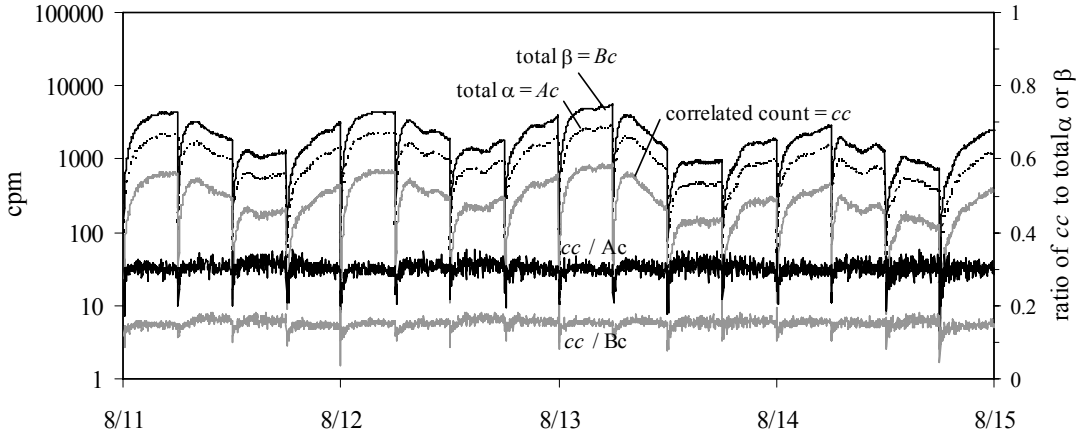


Fig. 7 Results of continuous measurement for total alpha, beta, correlated counts and their ratios during sampling of airborne dust at Kariwa monitoring post (Aug. 11 to 15, 2008).
Sampling and measurement time: 6hours (four times per one day).
Air suction rate: about 200 l/min.
Note that any artificial radioactivities were not recognized from those samples.

3. 2　相関事象を使用した人工放射能の評価

Fig. 7 に示したように，全計数と相関事象計数の比をモニタすることにより，自然放射線の寄与を評価することができたが，さらに詳細な評価を試みた．

ダストモニタより得られる全α計数，全β計数を *Ac*，*Bc*，測定効率を e_A，e_B とすると，ダスト中放射能との関係は以下の式で表される．

Ac ＝ （ダスト中の全α放射能）×e_A　　・・・(4)

Bc ＝ （ダスト中の全β放射能）×e_B　　・・・(5)

一方，相関事象については，その計数を *cc*（correlated count）と表す．ターゲットとしているのは式(2)の ^{214}Bi（β）－^{214}Po（α）相関であり，Fig. 1(e)に示したように，β線とα線両方を測定することから，相関事象の測定効率はそれぞれの効率の積となる．

cc ＝ （ダスト中の ^{214}Bi ＝ ^{214}Po 放射能）×$e_{\mathrm{Bi214(\beta)}}$×$e_{\mathrm{Po214(\alpha)}}$　　・・・(6)

ここで，測定効率 e とは

e ＝ 検出効率（ε）×ろ紙面からの発現効率（ξ）×ろ紙上への捕集効率（η）・・・(7)

であり[9, 10]，ダスト中の放射能に対する見かけ上の効率を意味する．

式(6)より，もし $e_{\mathrm{Bi214(\beta)}}$及び $e_{\mathrm{Po214(\alpha)}}$を知ることができれば，それらで式(6)を除することにより，以下のように

^{214}Po 由来のα計数＝cc / $e_{\mathrm{Bi214(\beta)}}$ ＝ac_{Po214}　　・・・(8)

^{214}Bi 由来のβ計数＝cc / $e_{\mathrm{Po214(\alpha)}}$ ＝bc_{Bi214}　　・・・(9)

を知ることができ，それぞれ式(4)及び(5)の次元とそろえることができる．

以上により，ダストモニタの測定において，人工放射能検出のために ^{214}Po 及び ^{214}Bi の寄与を除去するには，以下の式を評価対象とすればよいことがわかる．

評価対象α計数＝ $Ac - ac_{\mathrm{Po214}}$　　・・・(10)

評価対象β計数＝ $Bc - bc_{\mathrm{Bi214}}$　　・・・(11)

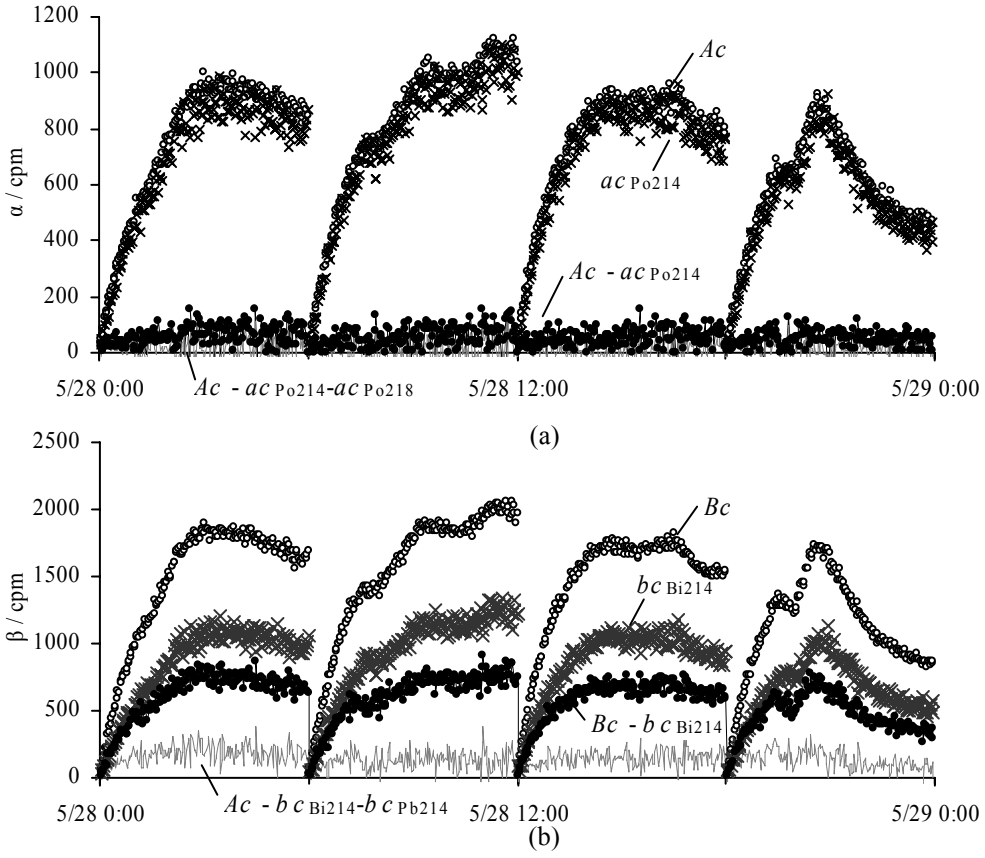


Fig. 8 Results of continuous analysis using present TIA method.
(a) Alpha counts. (b) Beta counts.
Those data were collected at Kariwa monitoring post (May, 28, 2008).

なお，$e_{Bi214(\beta)}$及び$e_{Po214(\alpha)}$を求める方法については，島田ら（1997）[11]は集じんろ紙と検出器の距離を変える等の手法を用いているが，ここでは測定値のシミュレーションにより推定した．シミュレーションのステップは別稿[2]に示したとおりであり，集じん中のろ紙上の核種のうち，

U 系列： $U_1 = {}^{218}Po$，　$U_2 = {}^{214}Pb$，　$U_3 = {}^{214}Bi$（$= {}^{214}Po$）

Th 系列：$Th_1 = {}^{212}Pb$，$Th_2 = {}^{212}Bi$（${}^{212}Po = 0.64 \times {}^{212}Bi$），$Th_3 = {}^{208}Tl$（分岐比 0.36 を考慮する）

について核種 U_i または Th_i の原子数を

$$\frac{dN_i}{dt} = P_i + \lambda_{i-1}N_{i-1} - \lambda_i N_i \qquad (P_i \text{ は核種 } i \text{ の単位時間当たりに捕集される原子数})$$

として表し，Bateman の式を利用して解析解を得た．そのうえで，系の放射能として

$$[\text{全 } \alpha \text{ 放射能}] = \lambda_{U1} N_{U1}(t) + \lambda_{U3} N_{U3}(t) + R\,\lambda_{Th2} N_{Th2}(t)$$

$$[\text{全 } \beta \text{ 放射能}] = \lambda_{U2} N_{U2}(t) + \lambda_{U3} N_{U3}(t) + R\left\{\lambda_{Th1} N_{Th1}(t) + 0.64\,\lambda_{Th2} N_{Th2}(t) + \lambda_{Th3} N_{Th3}(t)\right\}.$$

（R は Th と U 系列の放射能比）

のように表して実測値との重回帰計算を行い，右辺各項の偏回帰係数として P_i と各核種の効率を求めた．その結果，刈羽局装置における測定効率としてそれぞれ $e_{Bi214(\beta)}$＝33 %，$e_{Po214(\alpha)}$＝27 %を得ることができた．

この測定効率値及び実測の Ac，Bc，cc を用いて式 (8)から(11)を算出した結果を Fig. 8 に示す．Fig. 8(a)は，α線についての解析結果であり，式(8)により推定した ${}^{214}Po$ 由来の α 計数が Ac の約 93 %と大部分を占めた．これを差引くことにより，評価対象とすべき α 計数（Ac-ac_{Po214}）を得ることができた．評価対象 α 計数の平均値と標準偏差は 51±35 cpm であった．また同様に，Fig. 8(b)では式(9)により推定した ${}^{214}Bi$ 由来の計数が，Bc の約 62 %を占め，これを差引くことにより，評価対象の β 計数（Bc-bc_{Bi214}）として 566±180 cpm を得ることができた．

このようにして，α線，β線それぞれについて ${}^{214}Po$ または ${}^{214}Bi$ の寄与を除去することができたが，Fig. 8 から明らかなように，結果として得られた残差の評価対象計数には，なお残りの天然核種に由来する計数が含まれているため，ゼロにはなっていない．特に，β線では ${}^{214}Bi$ と並ぶ主要な天然核種の ${}^{214}Pb$ が存在するために，約 38 %の残分が生じた．

これら残りの天然核種については，相関事象から直接定量できないため，何らかの推定をする必要がある．そこで，α線については，U 系列中の ${}^{218}Po$ と ${}^{214}Po$ の平衡を，またβ線については同じく ${}^{214}Pb$ と ${}^{214}Bi$ の平衡を仮定して，評価対象計数から差引くことを検討した．

平衡比についても前述のシミュレーション結果から得ることができ，以下の結果となった．

平衡を仮定した場合の ${}^{218}Po$ のα計数＝${}^{214}Po$ のα計数×0.06

平衡を仮定した場合の ${}^{214}Pb$ のβ計数＝${}^{214}Bi$ のβ計数×0.51

Table 2. Results of subtracting natural α or β counts estimated by the present method.

評価対象計数	平均値±標準偏差*
（TIA による ${}^{214}Po$ 及び ${}^{214}Bi$ の実測値のみを考慮した場合）	
α線について：$Ac - ac_{Po214}$	51±35 cpm
β線について：$Bc - bc_{Bi214}$	566±180 cpm
（上記に加えて平衡状態を仮定した ${}^{218}Po$，${}^{214}Pb$ の計数を差引いた場合）	
α線について：$Ac - ac_{Po214} \times 1.06$	10±34 cpm
β線について：$Bc - bc_{Bi214} \times 1.51$	142±73 cpm

* Fig. 8 のデータに基づく

この値を用いて式(10)及び(11)を修正した結果，全α計数の 99 %及び全β計数の 92 %を占める天然核種の寄与を削除することができた．得られた評価対象計数を Fig. 8 に，その平均値及び標準偏差を Table 2 に示す．なお，ここで平衡を仮定した根拠は，Fig. 7 に示したように，全α及び全β計数に対する相関事象計数の比がほぼ一定であることによる．

モニタリングにおける異常値判定基準としては，Table 2 に示した結果の平均値＋3σをとること等が考えられるが，現在，蓄積したデータの集計をすすめている段階である．Fig. 8 に示したデータは，ダストの計数が平均的な日をサンプルに用いたものであるが，一方で Fig. 7 のように，夏季には時間帯によってしばしば高い計数が出現することがわかっている．例として，最高値を記録した 2008 年 8 月 13 日のデータについてのβ計数の解析例を Fig. 9 に示す．午前中の風速が弱く，大気安定度が D 型で落ち着く時間帯には計数が上昇し，^{214}Bi や ^{214}Pb 由来のβ計数を減算しても，なお残りの自然核種由来の計数が 500 cpm を超えて存在していた．これについては，Th 系列核種の寄与があることが推定されるが，その評価方法については検討中である．

そのほか，平衡を仮定した放射能比についても，実際にはこまかい変動があると考えられるため，^{214}Pb / ^{214}Bi 比等に関しても実測を行い，確認あるいは修正を行う必要がある．

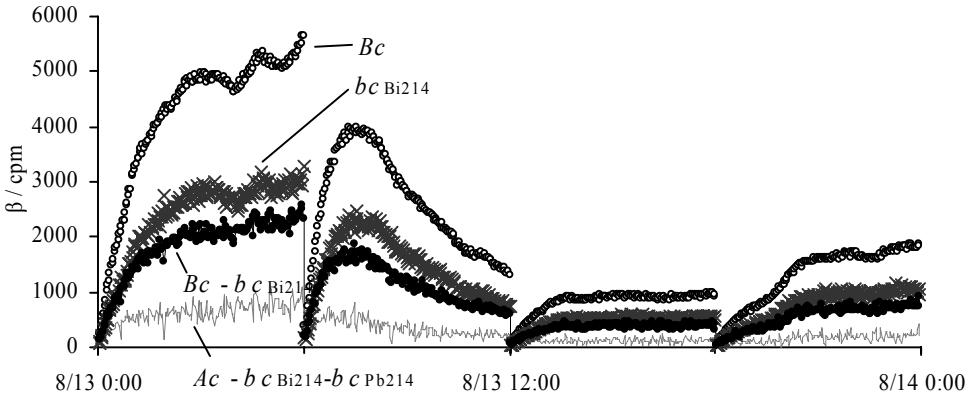


Fig. 9 Results of continuous analysis using present TIA method.
Those data were collected at Kariwa monitoring post (Aug., 13, 2008).

最終的な人工放射能の検出限界については，実際に線源を用いて評価する必要があり，今後実施する予定である．

4 ま　と　め

2008 年 3 月にダストモニタの解析用として導入した時間間隔解析（TIA）について，解析法及び装置の概略について述べるとともに，約 2 年の運用を経て得られた知見を紹介した．

全β及び全α測定では，放射線のエネルギーによる解析が困難であるが，相関事象と呼ぶ連続壊変する核種対に着目すると，放射線の時間差を解析することにより核種の定量が可能となる．この理論に基づいて稼働する測定装置を作製することができ，実際に集じんろ紙面からの ^{214}Bi－^{214}Poに基づくμ秒単位の壊変事象を捉え，連続解析を行なうことができた．これにより，ダスト中放射能の大部分を占める ^{214}Bi及び ^{214}Poの寄与を評価することができ，全α及び全β計数との比がほぼ一定であることから，それらの変動が自然放射能の変動に由来することを確認できた．

さらに，得られた全α，全β，相関事象計数から人工核種を検出するための解析法を検討することとし，モニタリングにおける評価対象の計数として，全α及び全β計数からTIAにより得た自然放射性核種の寄与を削減することを試みた．

まず，シミュレーションから推定した ^{214}Po及び ^{214}Biの測定効率を用いて，相関事象計数から ^{214}Po 由来のα計数，^{214}Bi由来のβ計数を得ることができた．これらを全α，全β計数から減ずることにより，全α計数の 93 %及びβ計数の 62 %を削減することができた．

また，残りの計数については ^{218}Po（α線）及び ^{214}Pb（β線）について注目し，どちらも系列中での平衡状態が成立していることを仮定して差引いたところ，さらに計数を削減することができた．今後，人工線源等を用いて異常値判定基準の妥当性を評価するほか，^{218}Po及び ^{214}Pbとの比，またTh系列の評価方法についても検討する必要がある．

謝　　辞

時間間隔解析システムの設計・導入にあたり，橋本哲夫新潟大学名誉教授のご指導をいただきました．深く感謝いたします．また，同システムについて，ハード・ソフトウェアの開発から連続モニタリングへの運用に至るまで,(株)ゼットコスモスの伊藤成樹社長には多大なご尽力をいただきました．ここに謝意を表します．

参　考　文　献

1) 石山央存，藤巻広司，丸田文之：新潟県放射線監視センター年報，6，23-31 (2008).
2) 石山央存，土田智宏，黒崎裕人，藤巻広司，山﨑興樹：平成 20 年度放射能分析確認調査技術検討会資料，173-183 (2009)
3) 橋本哲夫，野口雅美，植頭康裕，山本論香，鷲尾秀樹：環境ラドン（'91 ラドンシンポジウム論文集），下道国，辻本忠編，電子科学研究所, 438-450 (1992).
4) Hashimoto, T., Sato, K., Yoneyama, Y. and Fukuyama, N. : *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*., 222, 109-116 (1997).
5) Hashimoto, T., Sanada, Y. and Uezu, Y.：*Anal. Bioanal. Chem.*，379，227-233 (2004).
6) 八幡崇，坂上央存，伊藤成樹，橋本哲夫：日本原子力学会和文論文誌，5，221-228 (2006).
7) Sakaue, H., Fujimaki, H., Tonouchi, S., Itou, S. and Hashimoto, T. : *J. Radioanal. Nucl. Chem*., 274, 449-445 (2007).
8) 橋本哲夫，石山央存，伊藤成樹：*Radioisotopes*，57，679-694 (2008).
9) 伊藤登，神崎亮，早川博信：福井県原子力環境監視センター所報，9，37-63 (2002).
10) 島田秀志，西水重康：福井県原子力環境監視センター所報，11，51-61 (2004).
11) 島田秀志，高山裕美，早川博信：福井県原子力環境監視センター所報，4，61-68 (1997).