

2024 年度卒業論文

ラドン検出器を用いた放射能測定

神戸大学理学部物理学科粒子物理学研究室

研究者：青山真也、西上真央、稲葉有哉、番原大登

指導教員：竹内康雄、鈴木州

目次

1.背景(青山)	1
1.1 本研究の目的	1
1.2 身の回りの放射線	1
1.3 自然放射能のウラン系列とトリウム系列	2
2.装置(青山)	3
2.1 80L 検出器	3
2.2 6L 検出器	6
2.3 セットアップ	9
2.4 電場シミュレーション	10
2.5 放射平衡	13
3.校正試験(番原)	15
3.1 ラドン検出器の依存性について	15
3.2 各依存性について	16
3.3 校正試験のまとめ	25
参考文献	26
4.放射能測定①(稲葉)	27
4.1 バックグラウンド測定	27
4.2 放射能測定	30
4.3 まとめ	37
5.ラドン検出器を用いた放射能測定 2 (西上)	38
5.1 本章の概要	38
5.2 ランタンマンツルの放射能測定	38
5.3 ピッチブレンドの放射能測定	47
5.4 まとめ	58
5.5 参考文献	60

6.全体のまとめ.....	61
---------------	----

担当: 青山真也

1 背景

1.1 本研究の目的

1. 地下実験において主要なバックグラウンド (BG) となる自然放射能について学ぶ。特に Rn-222(ラドン) が深刻な BG になっている
2. 6L のラドン検出器を製作して、測定感度を最適化 (較正) する。
3. 鉱物標本のなどのラドン放射能を測定する。

1.2 身の回りの放射線

私たちの身の回りには、人工的に作られる放射線（人工放射線）と自然に発生する放射線（自然放射線）が存在し、それらの放射線によって被曝している。図 1.1 には、放射線の種類と被曝量が示されており、自然放射線による人の被曝は宇宙線、大地からの放射線、ラドン（Rn）などの吸入、食物などが主な原因となっていることが分かる。図 1.2 は、日本と世界の自然放射線による被曝量を比較したものであり、これを見ると、日本では食物からの被曝が最も大きく、1 年間で 2.1 ミリシーベルトの被曝があることが示されている。一方、世界平均ではラドンの吸入による被曝が最も大きく、1 年間で 2.4 ミリシーベルトの被曝があるという結果となっている。

このように、ラドンが自然放射線の主な原因となっているが、世界平均でラドンの大気中濃度はおよそ $1 \sim 10 \text{ Bq/m}^3$ である。またラドンは放射性貴ガスであり、地下実験においては主要なバックグラウンド (BG) 源となっている。スーパーカミオカンデ実験では、太陽ニュートリノの分析に要請される低いバックグラウンドレベルを達成するために、ラドン濃度 1 mBq/m^3 未満に抑えることが求められている [1]。

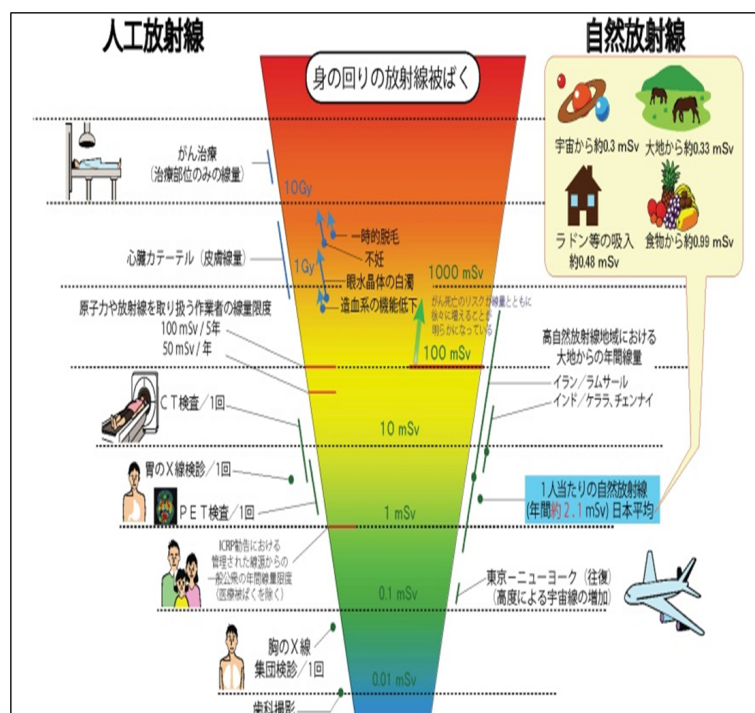


図 1.1: 人工放射線と自然放射線 (出典: [2])

ミリシーベルト/年	宇宙等から	大地等から	ラドンなどの吸入	食物から
2.4 (世界)	0.39	0.48	1.26	0.29
2.1 (日本)	0.31	0.33	0.47	0.99

図 1.2: 自然放射線による被曝量 (出典: [3])

1.3 自然放射能のウラン系列とトリウム系列

自然放射線の主な原因となるラドンは、ウラン系列の Rn-222 とトリウム系列の Rn-220 が挙げられる。図 1.3 は、ウラン系列とトリウム系列の崩壊図である。U-238 と Th-232 は地下環境において、それぞれ 1～10ppm の濃度で存在しており、半減期が非常に長く (U-238 が 4.5 億年、Th-232 が 14 億年)、地球上に残り続ける。

一方、スーパーカミオカンデ実験では、ラドン濃度を 1mBq/m³ 未満に抑えることが求められている。この

要請を満たすためには、1g の Ra-226 の原子核の個数は 2.66×10^{21} 個あり、放射能が 37GBq であることから、1mBq/m³ 未満にするには、ラドン濃度を ppt レベルまで下げる必要がある。また、ラドンは貴ガスであるため、化学反応を起こさずに拡散する特性を持っている。

トリウム系列の Rn-220 は半減期が約 55 秒と比較的短いため、崩壊する前に実験装置には届かない。しかし、ウラン系列の Rn-222 は半減期が約 3.8 日と長く、崩壊するまでに実験装置に到達し、実験装置内で崩壊を繰り返しバックグラウンド (BG) となる。このため、ウラン系列の Rn-222 が地下実験におけるノイズの原因となっている。特に、スーパーカミオカンデ実験では、Rn-222 の崩壊過程で生成される Bi-214 の β 崩壊エネルギーが太陽ニュートリノのエネルギーと重なり、ノイズを引き起こす原因となっている。

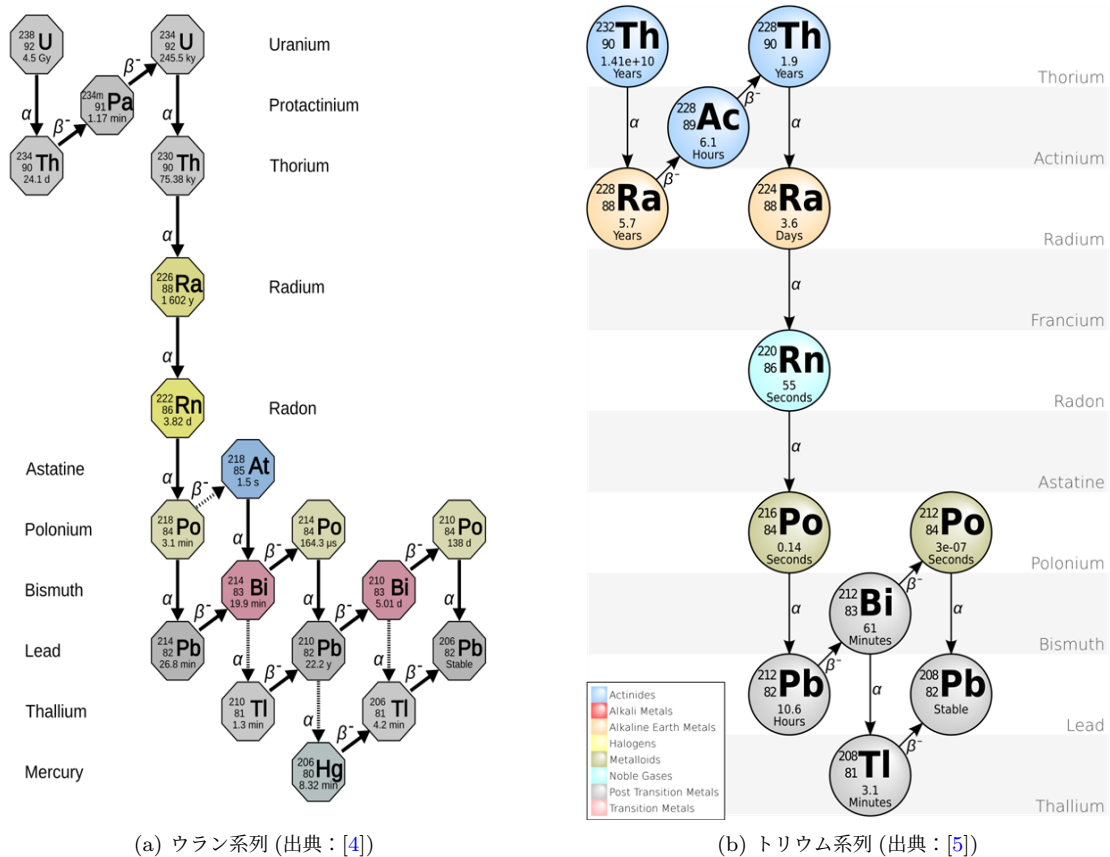


図 1.3: 自然放射能の崩壊図

2 装置

2.1 80L 検出器

図 2.1 は、主にスーパーカミオカンデ実験用に作られた静電電捕集型ラドン検出器 (80L 検出器) である。

ステンレス製容器、18mm $\times$ 18mmPIN フォトダイオード、高電圧分圧機、増幅回路、フィードスルーから構成されている。内容積は約 80L であり、ラドンバックグラウンド削減のため、真空技術を応用し、内面は

電解複合研磨をかけている。

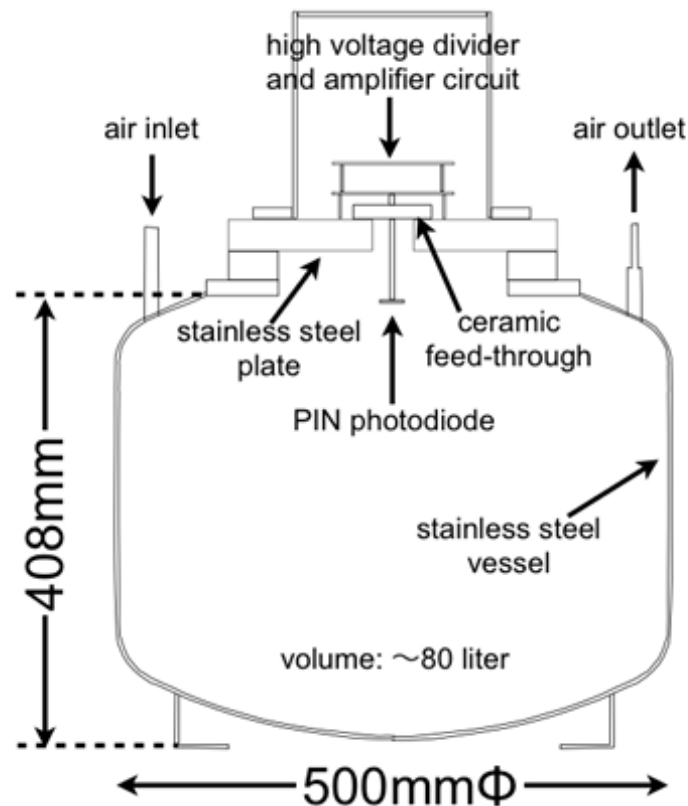


図 2.1: 80L 検出器の概略図 (出典：[6])

検出原理はフォトダイオードに負の高電圧をかけることにより、静電場を作りイオン化したラドン子孫核をフォトダイオード表面に集める。フォトダイオード表面で子孫核が崩壊したときの α 崩壊のエネルギーを測定し、カウントする。

図 2.2 が Rn-222 の子孫核種の典型的なエネルギースペクトルの ADC 分布である。図 2.3 ウラン系列の子孫核種とトリウム系列の子孫核種を同時に計測した ADC 分布と各子孫核種の半減期である。Po-212 のみ鋭いピークではなく、テールを引いているような見た目になっているのは、Po-212 の半減期は 3e-7s とあまりに早いため、直前の Bi-212 の β 崩壊のエネルギーも同時に観測されるからである。

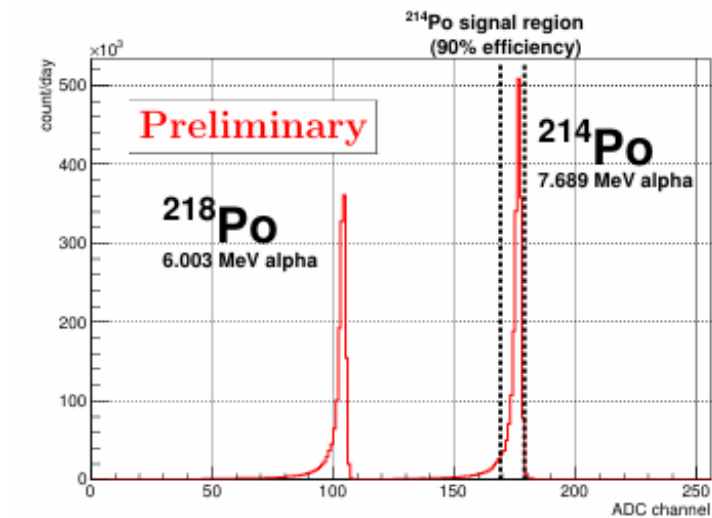


図 2.2: Rn-222 の子孫核種の典型的なエネルギースペクトル (出典：[6])

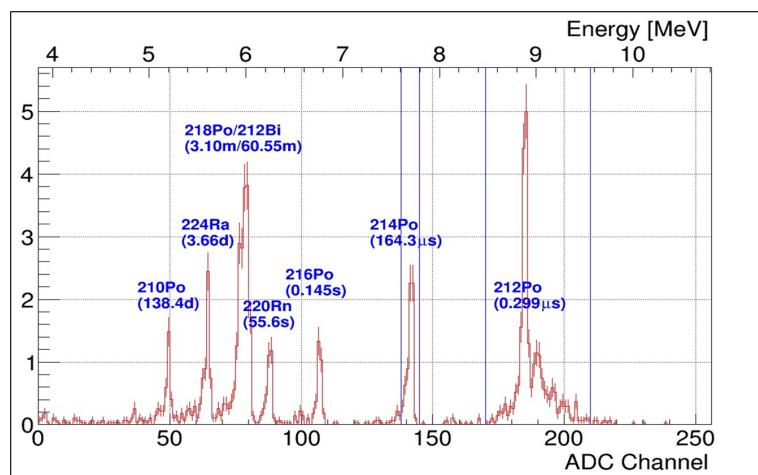


図 2.3: 80L 検出器の ADC 分布 (出典：[6])

2.2 6L 検出器

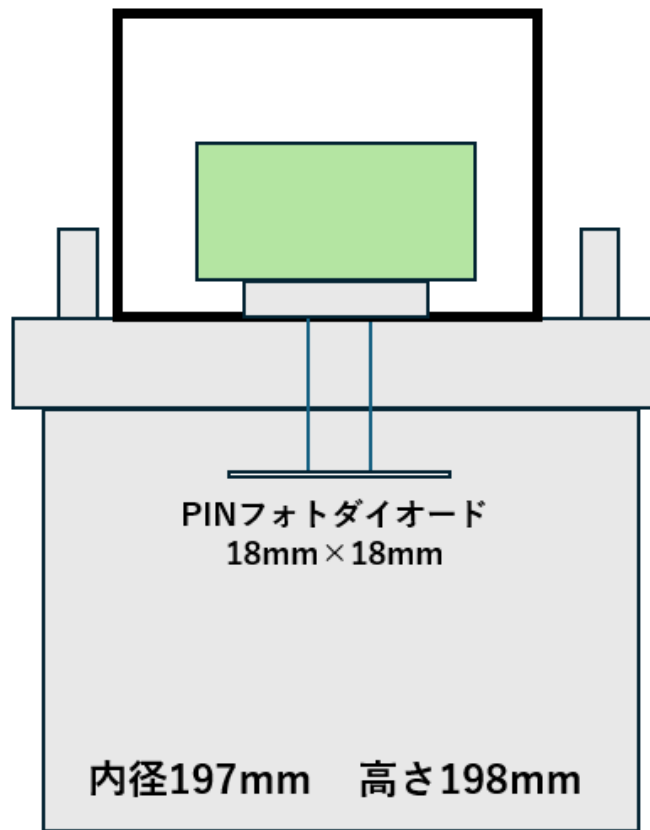


図 2.4: 6L 検出器の概略図

80L 静電捕集型ラドン検出器を参考に 6L 静電捕集型ラドン検出器 (図 2.4) を製作した。

上から順番に 5537 型電荷増幅器 (図 2.5) をフィードスルー (図 2.6) を用いてつなげた。容器は ICF253/70 ゼロレンクス変換フランジにタップ穴加工をしたもの (図 2.7) と ICF253 ハーフニップル L=203 (図 2.8) を用いており、内径 197mm 高さ 198 mmより内容積は約 6L である。

また、5537 型電荷増幅器が外部からの電磁波による影響でノイズが多かったため、静電シールド (図 2.9) を 3D プリンターを用いて自作をした。PIN フォトダイオードは 18mm × 18mm のものを使用している。



図 2.7: ICF253/70 ゼロレングス変換フランジ+タップ穴加工



図 2.8: ICF253 ハーフニップル L=203

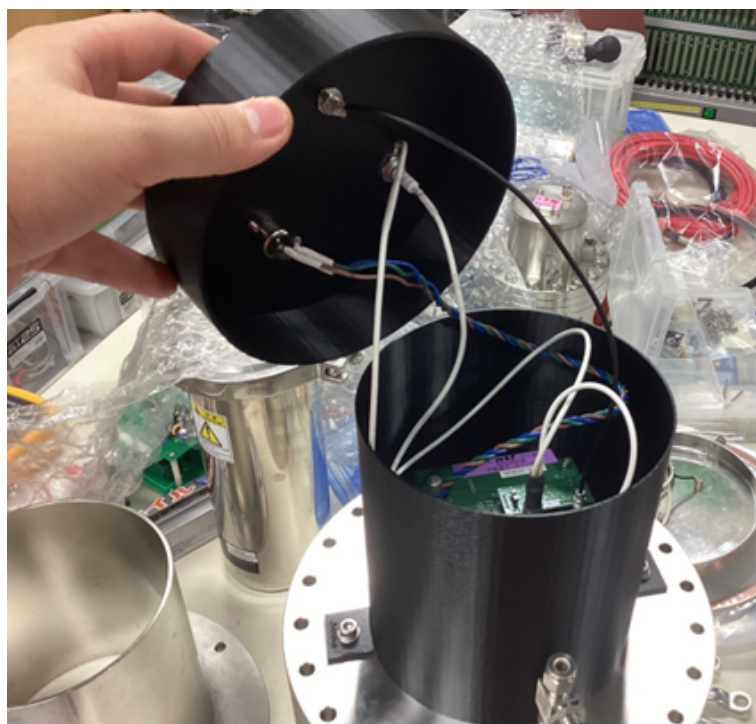


図 2.9: 静電シールド

2.3 セットアップ

セットアップの構成を図 2.10 に示す。まず、E.M.P 社のポンプ MX-808ST-S により気流を生成し、KOFLOC 社のマスフローコントローラー MODEL3660SERIES を用いて流量を制御する。長野計器社の圧力計 ZT67-2L6 は外圧との差を測定し、ガス漏れの検出などに利用した。

次に、サンプル容器またはラドン線源を設置し、バイパス用切り替え弁を用いることで、ラドン線源を通過しない流路も選択可能とした。さらに、冷凍機を通過させることで露点を調整できるようにした。

その後、バイサラ社製の露点計 DMT152 を通過させたのち、6L ラドン検出器に導入する。6L 検出器の出口にはテクネ社製の露点計 TK-100 を設置し、さらに 80L ラドン検出器へ送気した。80L 検出器の出口にもテクネ社製の露点計 TK-100 を配置した。

露点計を 3 つ装着しているのは、各検出器、露点計直後の露点温度を調べることでより最適な較正をできるようにするためや、内部での水分量を確認するためである。

また、各検出器の前には Swagelok 社の微粒子フィルター SC-11 を付けてあるのは、検出器内部で崩壊した子孫核種のみを静電捕集するためである。

データは各検出器のクリアパルス社の 5537 型電荷増幅器からクリアパルス社の 4429 型 8-CH. 波形整形増幅器を通し、Interface 社のサンプリング ADC LPC-320910 を LINUX 上で使い、DAQ 計算機を用いて収集した。

図 2.11 は、実際のセットアップの様子である。

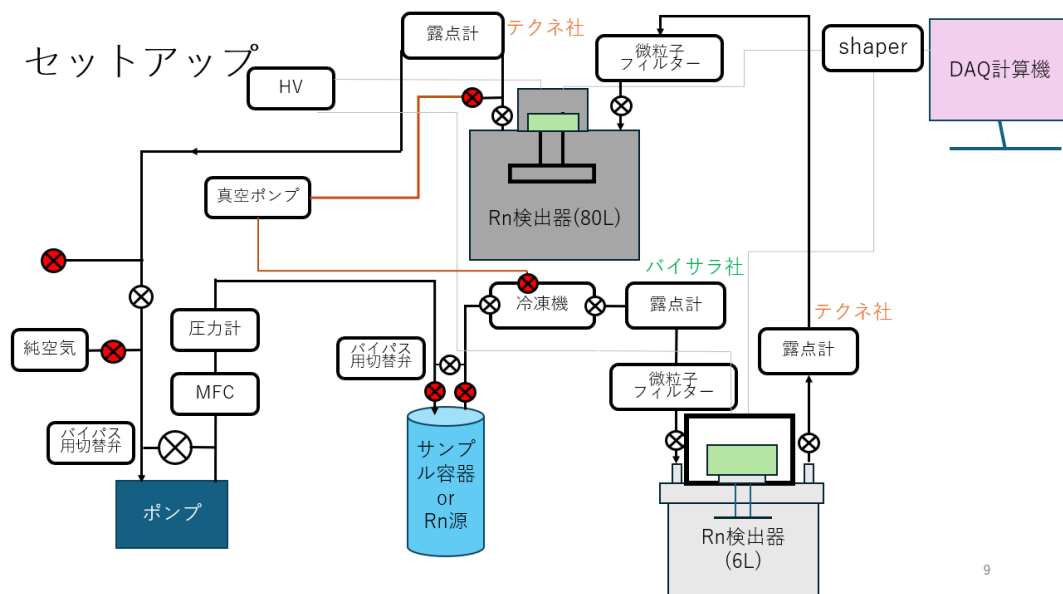


図 2.10: セットアップ

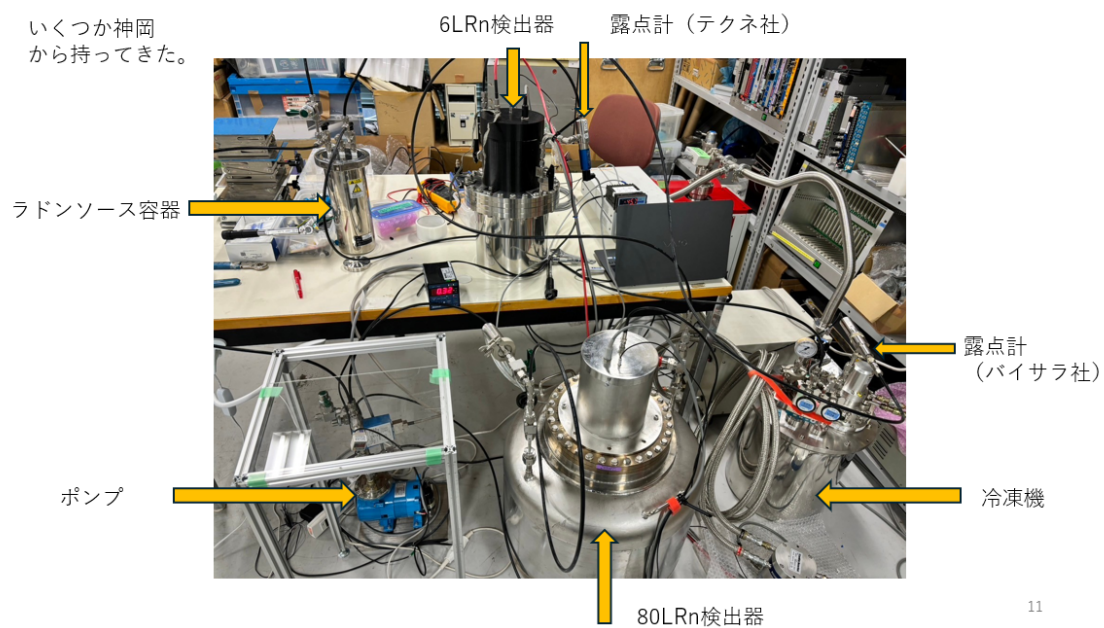


図 2.11: セットアップ写真

2.4 電場シミュレーション

6L 検出器内部の電場分布を評価するため、シミュレーションを実施した。本シミュレーションでは、検出器の回転対称性を考慮し、有限要素法を用いて 2 次元平面上での静電場を再現した。

電場シミュレーションを用いることで、ラドンの子孫核種を効率的に PIN フォトダイオードへ集積させるためのフィードスルーの長さおよび印加電圧を評価し、検出器作成時の設計指針とした。

ここでフィードスルー長は図 2.7 の ICF253/70 ゼロリングス変換フランジ下面からの変位とし、下方向を正とする。

ここでフィードスルー長は 6L 検出器の蓋上面からの変位とし、上面より下の場合は+の値をとるものとした。

図 2.12 に、フィードスルーの長さを 3 mm、印加電圧を - 300 V に設定した場合のシミュレーション結果を示す。この結果を基に、HV の値およびフィードスルーの長さを変更し、それぞれの条件における全セル数と基準を満たすセル数の割合を評価することで、最適な HV およびフィードスルーの値を検討した。

図 2.13 は、HV と基準を満たすセル割合の関係を示している。ここで基準として、子孫核種を捕集可能な電位を - 1 V、- 5 V、- 10 V と仮定した。図 2.13 より、- 1 V および - 5 V の基準を満たすセル割合は、HV が - 300 V 付近で安定する傾向が見られる。HV の絶対値を過度に大きくすると放電が発生し、正確な測定が困難となることを考慮し、本研究では HV を - 300 V に設定するのが適切であると判断した。

次に、フィードスルーの長さ依存性を評価するため、HV を - 300 V に固定し、フィードスルーの長さを変化させたシミュレーションを行った。図 2.14 および図 2.15 はその結果を示している。ただし、PIN フォトダイオードの表面で静電捕集された子孫核種による α 線は計測できないため、セル割合は「(基準を満たすセル割合) $\times$ (PIN フォトダイオードより下の体積割合)」で近似して算出した。

図 2.14 より、フィードスルー長が - 10 mm ~ 0 mm の範囲では、PIN フォトダイオード近傍に接地された金属が存在するため、局所的に電位が低下しやすいと考えられる。また、10 mm ~ 50 mm の範囲では、PIN フォトダイオードより下の体積割合が減少するため、基準を満たすセル割合も低下する傾向が確認された。

さらに、図 2.15 は、図 2.14 の - 5 mm ~ 10 mm の範囲を拡大したものである。この結果から、0 mm ~ 10 mm の範囲では、- 1 V 以下のセル割合に大きな変化がないことがわかった。

以上の結果から、6L 検出器の設計時に設定していたフィードスルー長 3 mm は適切であると判断し、この条件のまま較正実験を実施した。

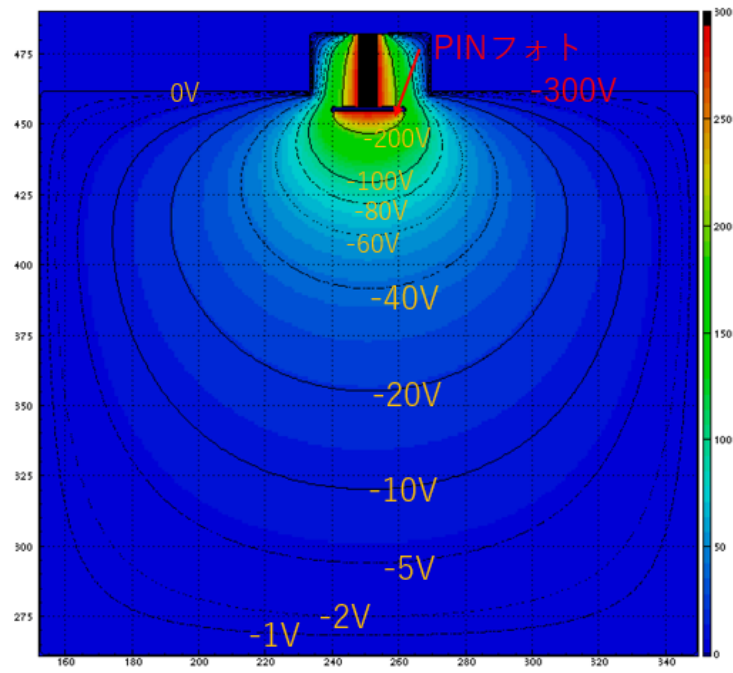


図 2.12: 電場シミュレーション (フィードスルー 3mm、HV-300V)

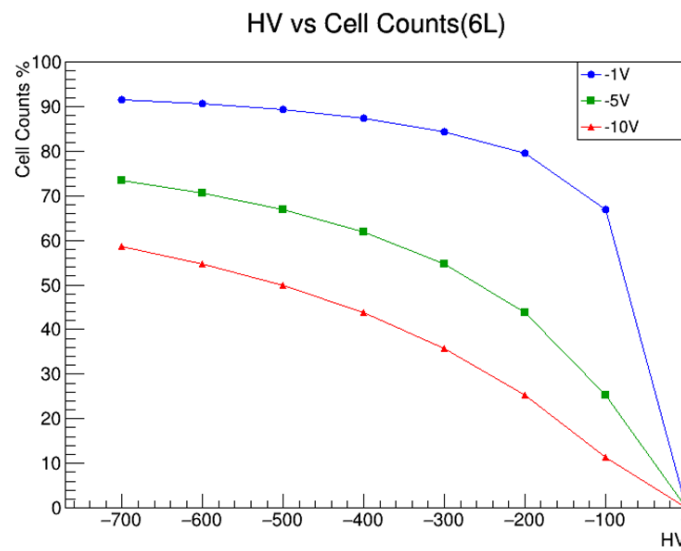


図 2.13: HV 依存性

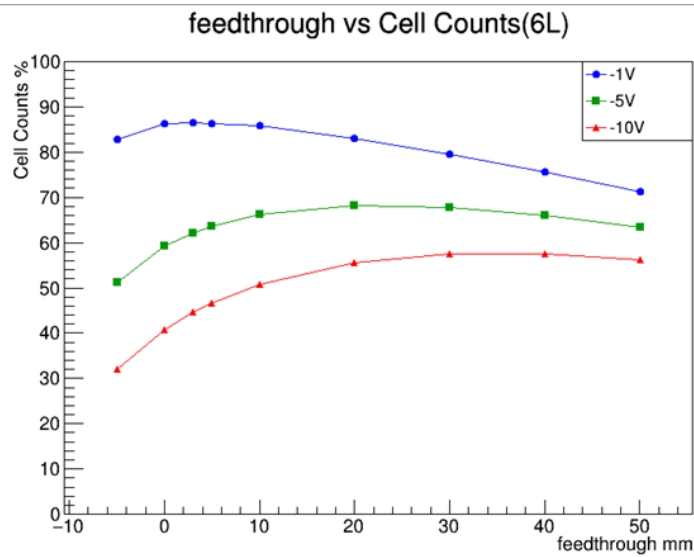


図 2.14: フィードスルー依存性 (-10mm~50mm)

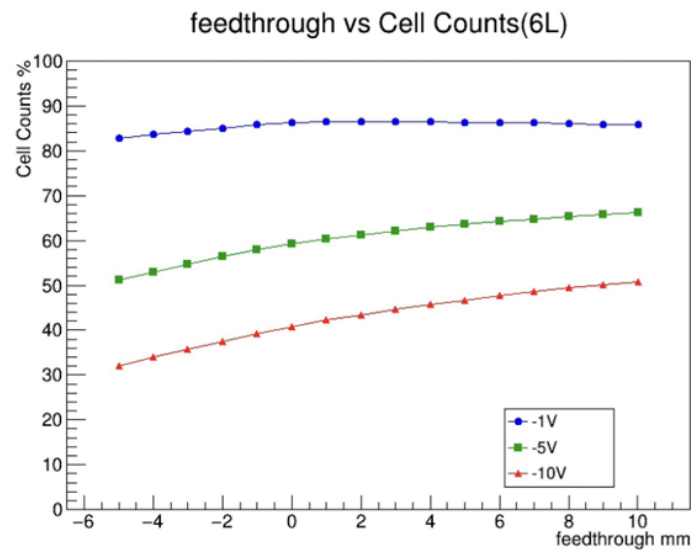


図 2.15: フィードスルー依存性 (-5mm~10mm)

2.5 放射平衡

放射能測定を行う際、サンプル内のラドンは放出と崩壊を繰り返し、時間とともに崩壊生成物のカウント率が一定の値に近づく。この現象を放射平衡という。

システム内のラドンの個数を N 、時間を t 、平衡時の Rn のカウント率を A 、ラドンの半減期 τ とすると、時間変化は以下の式で表される。

$$\frac{dN}{dt} = A \left(1 - 2^{-\frac{t}{\tau}} \right) \quad (2.1)$$

図 2.16 は半減期 τ を 3.82day としたものである。

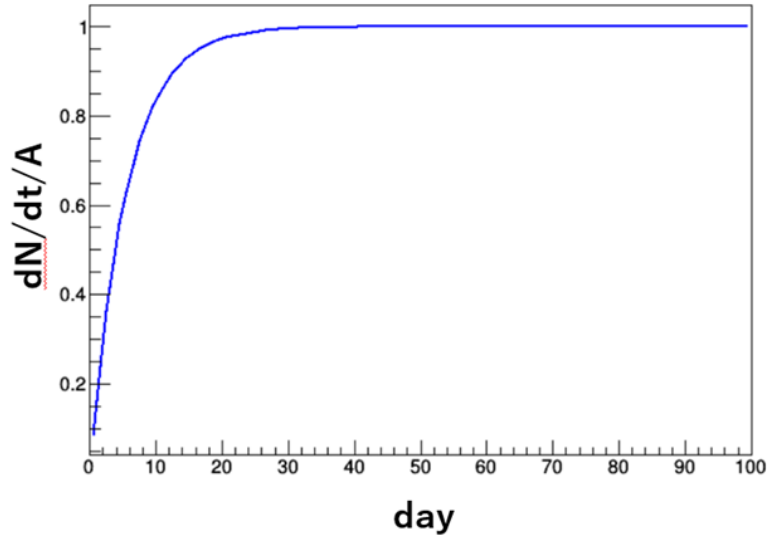


図 2.16: $\tau = 3.82\text{day}$ (Rn-222 の半減期) での放射平衡式

References

- [1] Y.Nakano et al. “Measurement of radon concentration in Super-Kamiokande’ s buffer gas”. In: *Nucl. Instrum. Meth. A* 867 (2017), pp. 1–258. DOI: [10.1016/j.nima.2017.04.037](https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.04.037). arXiv: [1704.06886](https://arxiv.org/abs/1704.06886).
- [2] 富岡放射線教育センター. URL: <https://tomioka-radiation.jp/2018/02/13/natural-radiation-artificial-radiation.html>.
- [3] 日本原子力文化財団. URL: <https://www.jaero.or.jp/sogo/detail/cat-03-06.html>.
- [4] ウラン系列図. URL: <https://ja.wikipedia.org/wiki/%E3%82%A6%E3%83%A9%E3%83%B3%E7%B3%BB%E5%88%97>.
- [5] トリウム系列図. URL: <https://ja.wikipedia.org/wiki/%E3%83%88%E3%83%AA%E3%82%A6%E3%83%A0%E7%B3%BB%E5%88%97>.
- [6] K.Hosokawa et al. “Development of a high-sensitivity 80 L radon detector for purified gases”. In: *PTEP* 2015.3 (2015), 033H01. DOI: [10.1093/ptep/ptv018](https://doi.org/10.1093/ptep/ptv018).

3.校正試験(番原)

3.1 ラドン検出器の依存性について

我々が製作した 6L ラドン検出器の検出効率を決めるため Rn 濃度がわかっている空気を測定し、 ^{214}Po のカウント数を元に校正係数 $[\frac{\text{count/day}}{\text{Bq/m}^3}]$ を求める。実験のセットアップは図 3-1 のように設定した。本実験では装置全体の体積を 6L,80L ラドン検出器、サンプル容器、配管などの体積を考慮し 87L(0.087m^3)とした。また、強度のわかっている Rn 源として 78.3Bq(誤差 4%)の ^{226}Ra を使用した(図 3-2)。

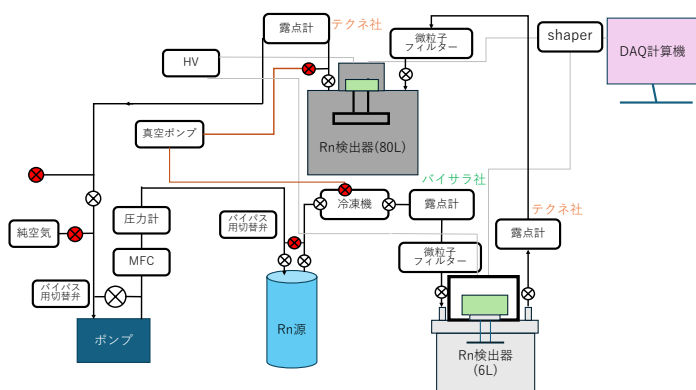


図 3-1：本実験のセットアップ

図 3-2：Rn 源(^{226}Ra)

Rn 強度がわかっている Rn 源(図 3-2)をつなぎ、以下の 3 つの条件を変えたときに count/day がどのように変化するかを観測する。

- ① PIN フォトにかける電圧
- ②流量
- ③絶対湿度

以下に 78.3Bq の Rn 源(^{226}Ra)をセットアップに繋いだときにみられる ADC 分布を示す(図 3-3)。

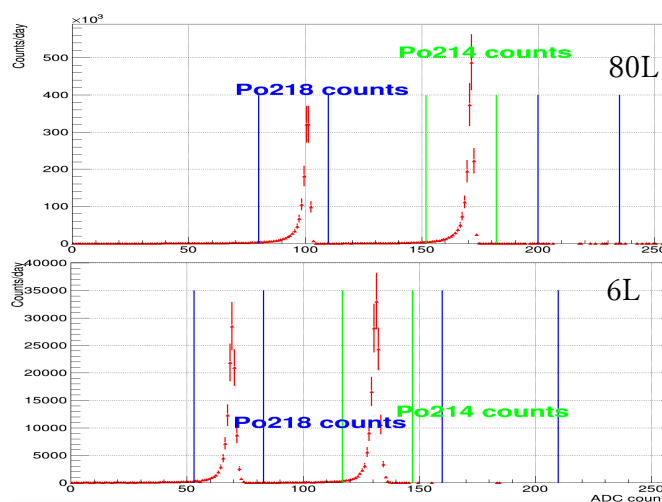


図 3-3：Rn 源(78.3Bq) を用いた測定で得られた ADC 分布 (上：80L 下：6L)

図 3-3 のように,80L ラドン検出器の ADC 範囲を ^{218}Po :80~110、 ^{214}Po :152~182、6L ラドン検出器の ADC 範囲を ^{218}Po :53~83、 ^{214}Po :117~147 と決め、その範囲の計数率を求める。

3.2 各依存性について

3.2.1 PIN フォトにかける電圧

先行研究[1]よりラドン検出器は PIN フォトにかける電圧によって検出効率が変わることが知られている。そのため、今回我々が製作した 6L ラドン検出器の検出効率が PIN フォトにかける電圧によってどのように変化するかを測定していく。また同時に、この 6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧の適切な値を求め決定することを目的とする。

・測定条件

6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧 : -500V~-100V

80L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧 : -2000V

露点温度 : -23°C程度

流量 : 0.3L/min

上記のように 6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧以外の条件は固定し、6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧による計数率の変化を確認できるようにする。

・測定方法

[例]-100V

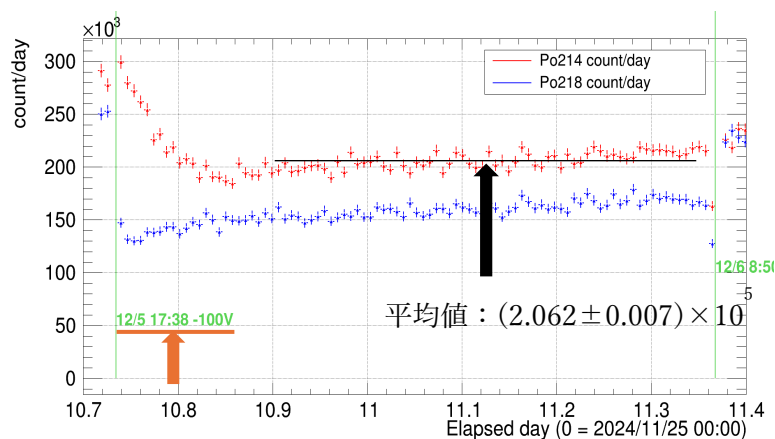


図 3-4 : PIN フォト電圧依存性の測定方法の例(-100V)

図 3-4 は、図 3-3 で決定した ^{218}Po 、 ^{214}Po それぞれの ADC 範囲内での値を積分した計数率を経過日数で表した図である。赤が ^{214}Po 、青が ^{218}Po を表している。今回は ^{214}Po の計数率を用いるため赤の点に注目する。

78.3Bq の ^{226}Ra を測定し、計数率が安定した（放射平衡に達した）後、6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧を元々設定していた-300V から-100V に変更（橙矢印）し、計数率が変化することを確認する。その後、改めて計数率が安定するのを待ち、安定した点でフィットすることにより計数率の平均値を求める。この平均値から較正係数 $\left[\frac{\text{count/day}}{\text{Bq/m}^3}\right]$ を求める。このような解析を図 3-4 の-100V 時の他に-200,-300,-400,-500V に変更したときにも行い 6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧による依存性を確認する。

・ 測定結果

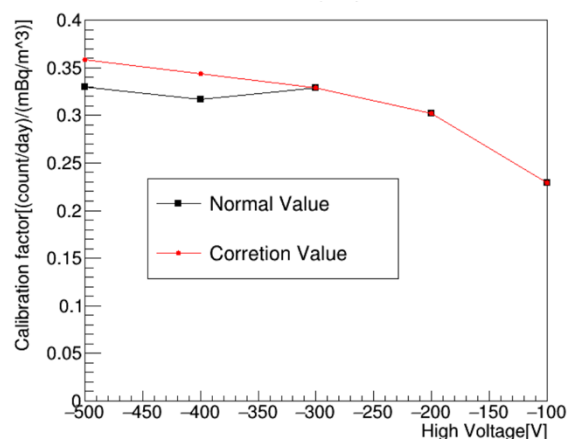


図 3-5：6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧と較正係数の関係

図 3-5 は 6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧と較正係数の関係を表したものである。今回、-300V で測定中に測定期間が長くなりすぎたため途中で計数率の平均値が変化（減少）してしまった。そのため、-300V 後に測定した条件（-400,-500V）の測定値は補正を行っている（*）。

* 測定値の補正について

測定値の補正について以下で述べていく。

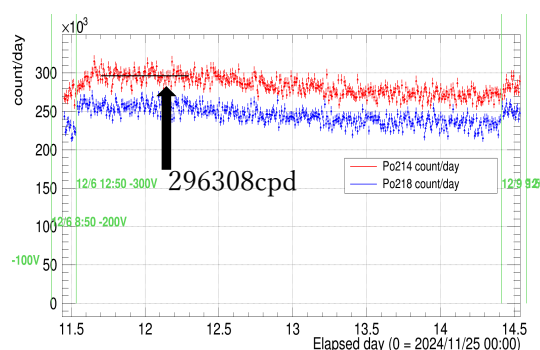


図 3-6：-300V 設定時の 6L ラドン検出器の計数率
（平均値変化前のフィット）

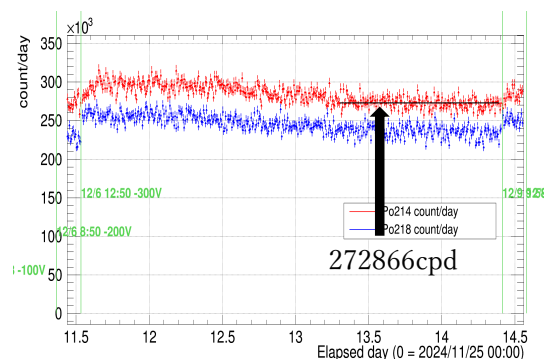


図 3-7：-300V 設定時の 6L ラドン検出器の計数率
（平均値変化後のフィット）

図 3-6,3-7 のように-300V に設定している測定の中で平均値が減少してしまった。そのため、-300V 設定より後に行った測定値(-400V,-500V 設定時の結果)は得られた値に-300V 設定時に変化した平均値の割合 $\frac{296308}{272866}$ をかけることで値の補正を行った。すなわち、図 3-5 の-400V,-500V の較正係数の値は、黒点が測定値そのまま、赤点が測定値に $\frac{296308}{272866}$ をかけた値であるということである。

・考察、まとめ

ラドン検出器は PIN フォトにかける電圧の絶対値が大きすぎると放電が発生し検出器が壊れてしまい、小さすぎると図 3-5 が示すように効率良く静電捕集ができない。そのため、十分に静電捕集ができるが一方でラドン検出器が壊れない程度の大きさの電圧が適正電圧といえる。以上を考慮して、今回我々が製作した 6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧は-300V が適切であると評価した。図 3-5 の測定結果をみると、6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧が-400V,-500V と変化するにつれてまだ較正係数が大きくなっている途中であるが、かける電圧が-300V のときと比べて較正係数が 6~9%程度しか変化しないため-300V でも十分な静電捕集ができていると判断した。

3.2.2 流量

流量依存性については、6L,80L 検出器共に適切な計数率が得られる流量を見つけることが目的である。理由として以下のような懸念点があるためである。

・流量が大きすぎる場合

ラドン検出器は Rn が崩壊することでできた子孫核種を PIN フォトに集めてその崩壊のエネルギーを観測している。そのため流量が大きすぎると流れが速すぎて Rn が崩壊後静電捕集される前に検出器外に出ていってしまい本来得られるはずの計数率より小さい計数率が測定されてしまう。

・流量が小さすぎる場合

今回用いた 6L,80L ラドン検出器は図 3-8,3-9 の**橙矢印**で示した場所に入出口がついているため流量が小さいと検出器の底の方でガスが淀んでしまうことで上手く流れを作り出すことができない。今回の実験はポンプ、Rn 源、6L ラドン検出器、80L ラドン検出器の順で繋いでいる。そのため、流量が小さすぎると上手く流れができていない影響で 80L ラドン検出器に十分な量の Rn が流れてこず 80L ラドン検出器の計数率が本来得られるはずの値より小さくなってしまいう問題が起こる。

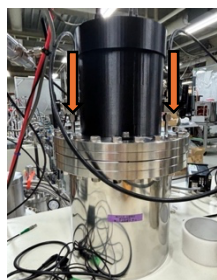


図 3-8 : 6L 検出器



図 3-9 : 80L 検出器

・測定条件

6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧	: -300V
80L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧	: -2000V
露点温度	: -20°C程度
流量	: 0.3L/min~3.0L/min

・測定方法

本実験では 2 回に分けて流量依存性について調べた。

- ① 実験のセットアップから Rn 源を切り離し（切替弁を閉めバイパスし Rn 源を通過しないようにし）、放射線崩壊を観測した。その測定途中で流量を 3.0→2.0→1.0→0.5→0.3L/min の順で変化させ計数率がどのように変化するか観測した。
- ② 実験のセットアップに Rn 源をセットアップにつなぎ（切替弁を開け Rn 源を通過するようにし）、放射平衡に至るまでの過程を観測した。その測定途中で流量を 0.5→0.3→1.0L/min の順で変化させ計数率がどのように変化するか観測した。
→6L,80L ラドン検出器共に適切な計数率が得られる流量を測定結果を元に決定する。

・測定結果

- ① 放射線崩壊測定時

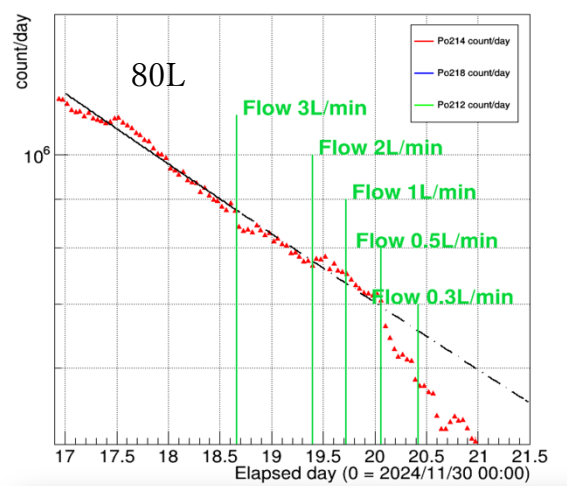


図 3-10：放射性崩壊測定時の 80L ラドン検出器の ^{214}Po の計数率

図 3-10 は Rn 源(^{226}Ra :78.3Bq)を実験のセットアップから切り離したときに観測された放射性崩壊の過程で流量を変化させたときの 80L ラドン検出器の ^{214}Po の計数率（赤点）の変化を横軸経過日数で表したものである。黒線は ^{222}Rn の崩壊曲線である。緑の線はそれぞれの流量に変化させた時点を表している。図 3-10 をみると流量が 3.0~1.0L/min のときは崩壊曲線に沿っているが 0.5L/min から大きく崩壊曲線から外れることが確認できる。

② 放射平衡測定時

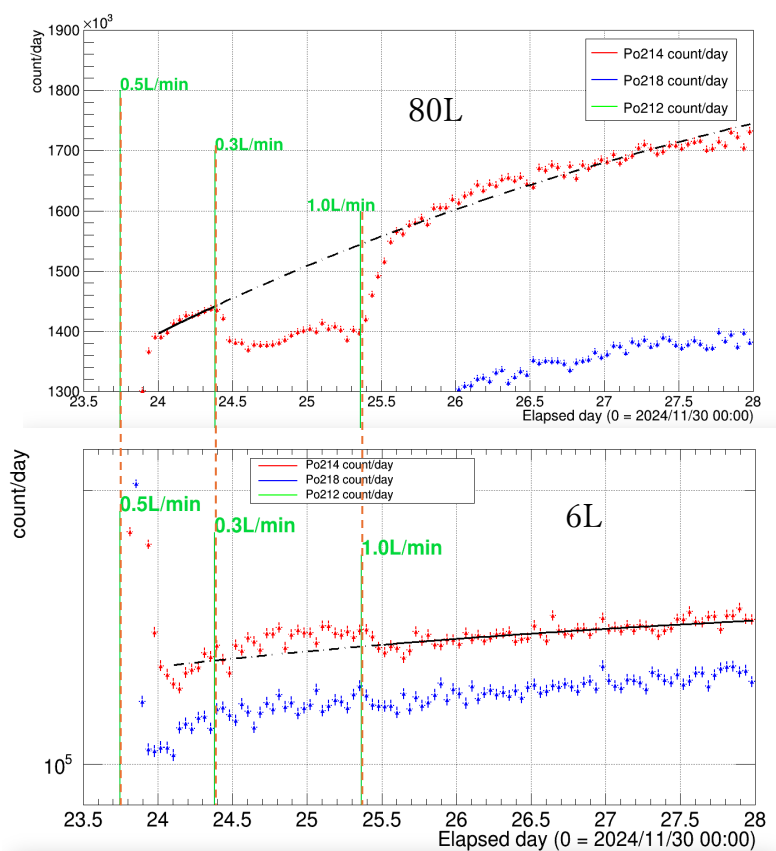


図 3-11：放射平衡測定時の 6,80L ラドン検出器の ^{214}Po の計数率

図 3-11 は Rn 源(^{226}Ra :78.3Bq)を実験のセットアップに繋いだときに観測された放射平衡の過程で流量を変化させたときの 6L,80L ラドン検出器の ^{214}Po の計数率（赤点）の変化を横軸経過日数（上下図で共通）で表したものである（青点は ^{218}Po ）。黒線は ^{222}Rn の放射平衡曲線である。緑の線はそれぞれの流量に変化させた点を表している。図 3-11 をみると、80L ラドン検出器は流量が 0.5L/min,1.0L/min のときは放射平衡曲線にのっているが 0.3L/min のときは大きく放射平衡曲線から外れてしまう。6L ラドン検出器は流量が 1.0L/min のときは放射平衡曲線にのっているが 0.3L/min のときは大きく放射平衡曲線から外れてしまう。

・考察、まとめ

測定結果より、流量が 0.3L/min,0.5L/min のときはガスの循環がうまくいかず 6L ラドン検出器でガスが淀んでしまっている影響で適切な計数率が得られていない。したがって、本実験の適正流量は 1.0L/min と決定づけた。

3.2.3 絶対湿度

先行研究[1]より、 ^{222}Rn の子孫核種イオンが空気中の水分子によって中性化されることで静電捕集の効率が下がってしまうことが知られている。そのため、 ^{214}Po の計数率は絶対湿度によって変化する。そのため、我々が製作した6Lラドン検出器の絶対湿度依存性について本実験で確認していく。今回は実験装置内の露点温度を測定することで絶対湿度を下記の式から計算する。

露点温度と絶対湿度の関係式[2]

$$P = \exp\left(-\frac{6024.5282}{T_{dew}} + 29.3271 + 0.0106139 T_{dew} + 0.0000132 T_{dew}^2 - 0.4938258 \ln T_{dew}\right)$$

$$AH = \frac{0.00794 P}{1 + 0.00366 T_{air}}$$

$P[\text{kPa}]$: 飽和水蒸気圧 $AH[\frac{\text{g}}{\text{m}^3}]$: 絶対湿度	$T_{dew}[\text{K}]$: 露点温度 $T_{air}[^\circ\text{C}]$: 室温
--	--

しかし、今回冷凍機の不調のため限られた範囲でしか較正係数が得られなかった。較正計数が得られた露点温度は -19°C 、 -17.5°C 、 -15.5°C 、 -15°C である。これらの露点温度に対応する絶対湿度は $4.6\text{g}/\text{m}^3$ 、 $5.2\text{g}/\text{m}^3$ 、 $6.7\text{g}/\text{m}^3$ 、 $7.0\text{g}/\text{m}^3$ である

・測定条件

6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧	: -300V
80L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧	: -2000V
露点温度	: -19°C 、 -17.5°C 、 -15.5°C 、 -15°C
流量	: $1.0\text{L}/\text{min}$
室温	: 21°C

・測定方法

[例]露点温度：-19℃（80L ラドン検出器）

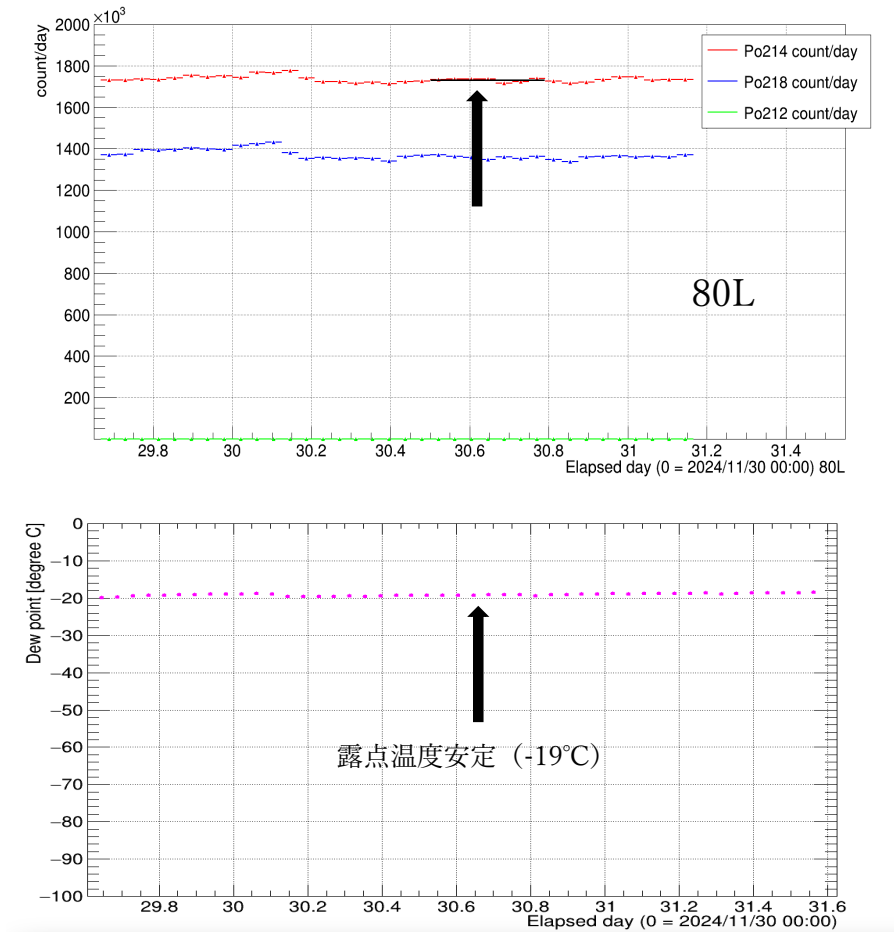


図 3-12：絶対湿度依存性の測定方法の例（80L 検出器、露点温度：-19℃）

図 3-12 は上が 80L ラドン検出器の ^{214}Po （赤点）の計数率を横軸経過日数で表したもので、下は上の図と同じ時刻での実験装置内の露点温度を表した図である。今回は、冷凍機の設定温度を調節し露点温度が安定したとき（[例]ならば-19℃で安定したとき）の ^{214}Po の計数率の平均値を上図のようにフィットすることで読み取り、そこから校正係数を導き出す。この解析を上記の露点温度-19℃、-17.5℃、-15.5℃、-15℃の 4 点で 6L, 80L ラドン検出器のどちらでも行い、絶対湿度依存性を確かめる。

・測定結果

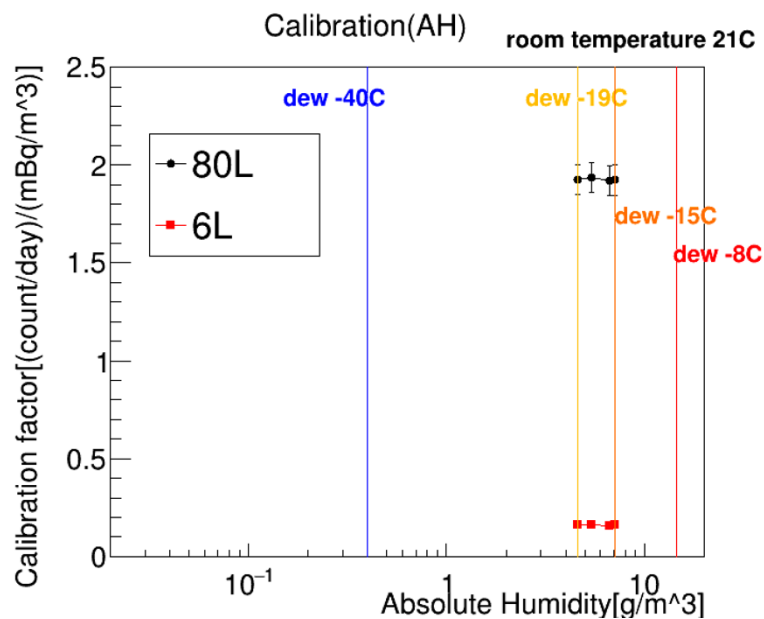


図 3-13：6L,80L ラドン検出器の絶対湿度と校正係数の関係

(黒：80L 赤：6L)

(色付きの縦線はそれぞれの絶対湿度に対応する露点温度を示している)

図 3-13 は 6L,80L ラドン検出器の絶対湿度と校正係数の関係を表したものである。この絶対湿度と校正計数の関係を具体的な数字で表に記したのが下記の表 3-1 である。

露点温度	-19℃	-17.5℃	-15.5℃	-15℃
絶対湿度	4.6g/m³	5.2g/m³	6.7g/m³	7.0g/m³
80L検出器	1.924 ± 0.077	1.935 ± 0.077	1.919 ± 0.077	1.923 ± 0.077
6L検出器	0.163 ± 0.007	0.164 ± 0.007	0.157 ± 0.006	0.161 ± 0.006

単位： $\left[\frac{\text{count/day}}{\text{mBq/m}^3} \right]$

表 3-1：6L,80L ラドン検出器の絶対湿度と校正係数の関係

6L,80L ラドン検出器の絶対湿度依存性は図 3-13、表 3-1 のようになった。この結果から、今回測定した絶対湿度（露点温度）の範囲では 6L,80L ラドン検出器共にほとんど絶対湿度依存性はないといえる。

* 80L ラドン検出器における絶対湿度依存性の測定値と文献値の違い

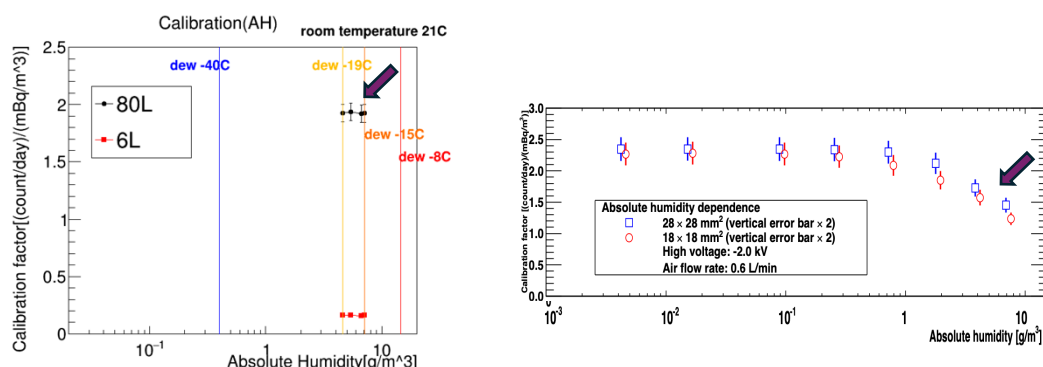


図 3-14：80L ラドン検出器における絶対湿度依存性の測定値と文献値

左図 測定値（図 3-13 と同様）

右図 文献値[3]

図 3-14 において、左図は 80L ラドン検出器の絶対湿度と較正係数の関係の測定値、右図は文献値である。図 3-14 での二つの紫矢印はどちらも絶対湿度が 5.0 g/m^3 あたりをさしている。しかし、測定値と文献値では同じ 5.0 g/m^3 の湿度でも $0.3 \text{ (count/day)/(mBq/m}^3\text{)}$ ほど較正係数に差がみられる。先行研究[1]より、80L ラドン検出器の器体差は 10%程度であることがわかっているが、この $0.3 \text{ (count/day)/(mBq/m}^3\text{)}$ の差は 15%程度の差に値する。この差より、今回使用した 80L ラドン検出器はやや大きめの器体差がある可能性がある。

・考察、まとめ

図 3-13 は ^{222}Rn の濃度に対する較正係数を表している。ここではラドン検出器内の ^{222}Rn の放射能に対する較正係数を評価していく。6L, 80L ラドン検出器の較正係数の中央値 $0.161 \text{ (count/day)/(mBq/m}^3\text{)}$ 、 $1.925 \text{ (count/day)/(mBq/m}^3\text{)}$ 、をそれぞれの検出器の体積（6L ラドン検出器： $6\text{L}=0.0060\text{m}^3$ 、80L ラドン検出器： $80\text{L}=0.080\text{m}^3$ ）で割ることで放射能に対する較正係数に変換する。この計算を行うと 6L, 80L ラドン検出器の放射能に対する較正係数はそれぞれ $26 \text{ (count/day)/mBq}$ 、 $24 \text{ (count/day)/mBq}$ となった。この結果より 6L ラドン検出器の方が 80L ラドン検出器より 9%程度検出器内の放射能に対する検出効率が良いことがわかった。これは、容量が小さい 6L ラドン検出器の方が PIN フォトまでの距離が短い分 ^{222}Rn の子孫核種イオンが中性化される割合が小さくなり静電捕集の効率が良くなるためだと考えられる。

80L ラドン検出器は 1mBq/m^3 程度の濃度まで測定することが可能である。今回我々が製作した 6L ラドン検出器の測定感度はそれぞれの較正係数の比を計算することにより見積

もると、 $1.925 \div 0.161 = 11.956\dots$ 、つまり約 12 mBq/m^3 程度の濃度まで測定できると評価できる。

以上述べたように 6L, 80L ラドン検出器の体積には差があるため濃度測定の感度の限界に関しては 80L ラドン検出器の方がより小さい濃度まで測定できる。このような理由で、より小さい Rn 濃度を測定されることが求められる地下実験などでは体積が大きいラドン検出器が利用される。しかし、放射能測定においては、6L ラドン検出器は 80L ラドン検出器と比較して実験装置内の Rn 濃度が濃くなるので同等の検出効率をもつ。サンプル容器が十分に小さければ 6L ラドン検出器の方が放射能に対する検出効率は良いということがわかった。

3.3 較正試験のまとめ

我々が製作した 6L ラドン検出器の較正試験について述べてきた。試験の結果、この 6L ラドン検出器の PIN フォトにかける電圧は -300V が適切であると決定づけた。また、流量に関しては適切な計数率が得られる適正流量を 1.0 L/min とした。今回の実験では冷凍機の不調により広い範囲での絶対湿度依存性は測定できなかったが、測定ができた露点温度の範囲 -19°C , -17.5°C , -15.5°C , -15°C (絶対湿度: 4.6 g/m^3 , 5.2 g/m^3 , 6.7 g/m^3 , 7.0 g/m^3) ではほとんど絶対湿度依存性はないことが確認できた。また、6L ラドン検出器は 80L ラドン検出器に比べて体積が小さい分、 ^{222}Rn の子孫核種イオンが水分子によって中性化される割合が小さくなるため放射能に対する検出効率が良いということがわかった。一方で、80L ラドン検出器は 1 mBq/m^3 の Rn 濃度を測定することができるが、6L ラドン検出器は 12 mBq/m^3 程度の Rn 濃度までしか感度を持たない。

これらの較正試験により 6L ラドン検出器の主要な特性を評価することができた。

参考文献

- [1] K. Hosokawa, A. Murata, Y. Nakano, Y. Onishi, H. Sekiya, Y. Takeuchi, and S. Tasaka. Development of a high-sensitivity 80 L radon detector for purified gases. *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, Vol.2015, No.3,p.033H01,03 2015.
<https://academic.oup.com/ptep/article/2015/3/033H01/1585981>
- [2] Daiichi Kagaku Inc. Humidity Calculation 1.
<https://www.daiichi-kagaku.co.jp/situdo/note/arekore08/> ,date last accessed May 1, 2021.
- [3] K. Okamoto, Y. Nakano, G. Pronost, H. Sekiya, Y. Takeuchi, and M. Nakahata. Improvement of radon detector performance by using a large-sized PIN-photodiode.
<https://arxiv.org/pdf/2112.06614>

4 章 放射能測定 1

4.1 バックグラウンド測定

サンプルを除いたときの測定系内から生じるラドン放射能がどれほどなのか調べるために、バックグラウンド測定を行った。手順は以下の通りである(図 4.1 はその時の回路図)。

手順

- ・ サンプル容器内を空気が通らないようにバイパスに切り替える。
- ・ 真空引き + 純空気入れ替えを行う。
- ・ 安定したときの count 率を測定。

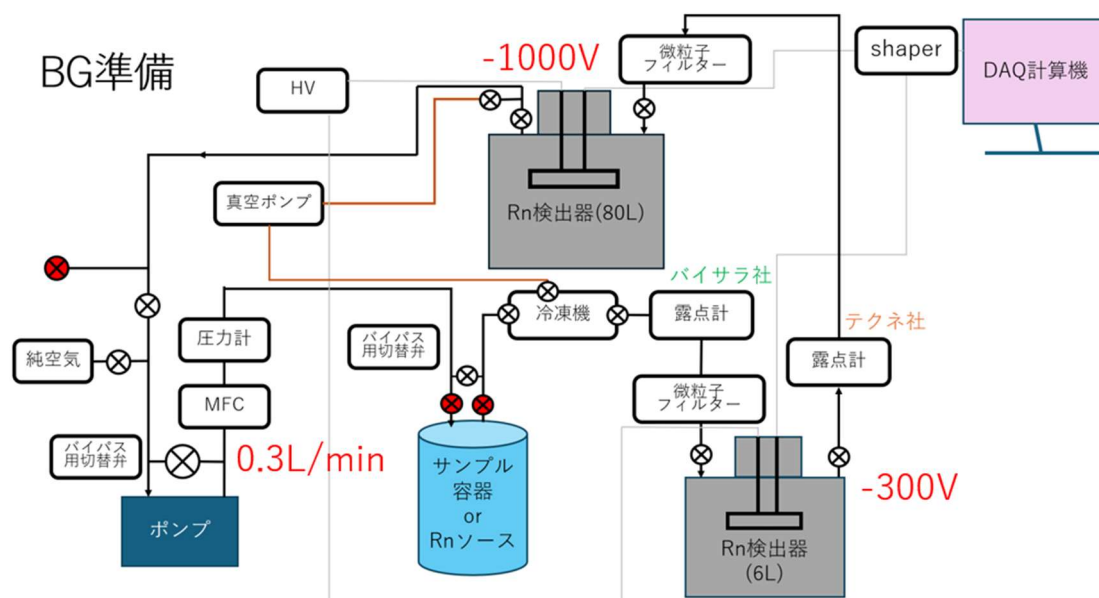


図 4.1 BG 測定の回路図

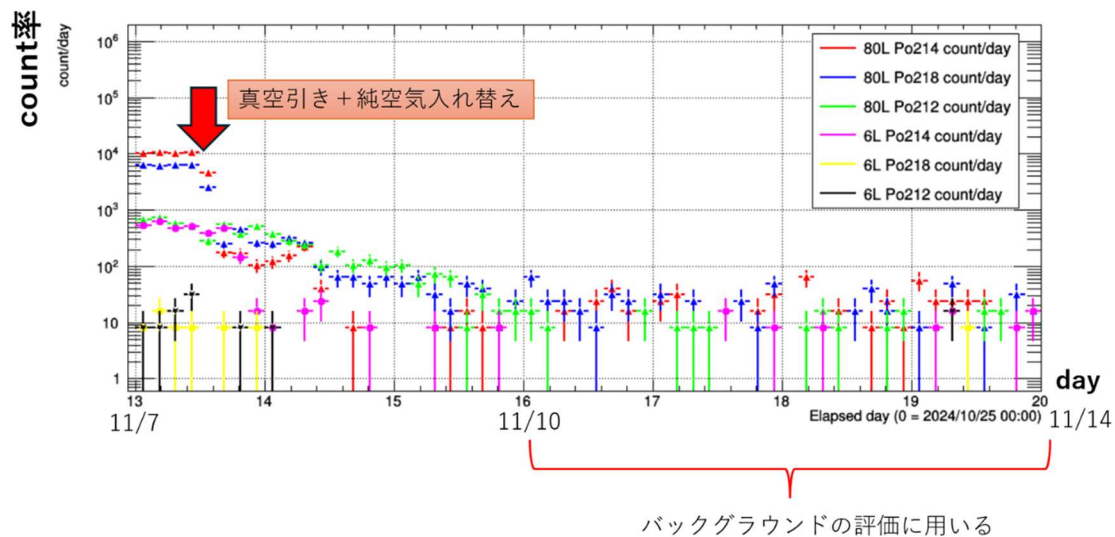


図 4.12 BG 測定期間の count 率の変化

図 4.12 は BG 測定期間の一日当たりの count 数(count 率)の変化を表したもので、真空引きと純空気入れ替えを行って測定を開始してから count 率が下がってきているのがわかる。今回、count 数が安定した 2024 年 11 月 10 日~11 月 14 日のデータをバックグラウンド測定の評価に用いた。

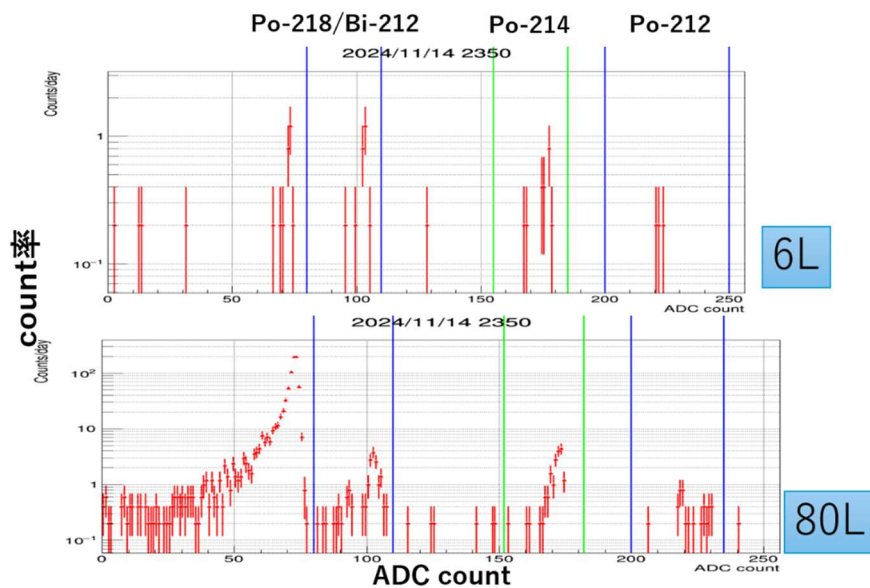


図 4.13 11/10~11/14 のスペクトル(ADC 分布)

図 4.13 はバックグラウンド評価期間のスペクトルである。それぞれの色線(青、緑)で仕切られた区間のスペクトルがラドンの子孫核種の count 率であり、左から Po-218+Bi-212, Po-214, Po-212 である。

※Po-218 と Bi-212 の α 線のエネルギーが同程度なので、区別することが難しく、合計の count 率となっている。

下の表 4.1 はバックグラウンド評価期間のそれぞれの count 率(count/day, cpd)である。

	6L の count 率	80L の count 率
Po-218+Bi-212	2.6 ± 0.7 cpd	17.7 ± 1.9 cpd
Po-214	2.2 ± 0.7 cpd	17.3 ± 1.9 cpd
Po-212	0.6 ± 0.3 cpd	4.4 ± 0.9 cpd

表 4.1 BG 評価期間の Po-218+Bi-212, Po-214, Po-212 の count 率

較正測定の count 率は $\sim 10^5$ cpd であるので、表 4.1 のデータからバックグラウンドは無視できるほど小さいことがわかった。

4.2 放射能測定

神戸大学に保管してある各種サンプルのラドン count 率を測定し、校正係数を基にそのサンプルのラドン放射能を求める。下の表 4.21 は神戸大学保有のガイガーカウンターでサンプルの放射線を測ってまとめたものである。(10 μ シーベルト/h が測定器の上限値。)



表 4.21 神戸大学に保管してある各種サンプルの放射線強度についての Tier 表

今回はそのうちのラジウムセラミックボール、ランタンマントル①、ピッチブレンドのラドン放射能を検出器で測定する。

測定手順は以下の通りである。

手順

- ・ サンプルを容器に入れる。
- ・ 真空引き + 純空気入れ替えを行う。
- ・ 一定の流量で純空気を循環させて、放射平衡を測定。

・ラジウムセラミックボール(1000g)

用途

- ・ 温浴
- ・ 空気のイオン化や触媒
などの工業目的
- ・ 霧箱などの理科実験

測定期間 1/7 12:28~1/9 14:47

流量： 1.0L/min

HV： -300V(6L) -2000V(80L)

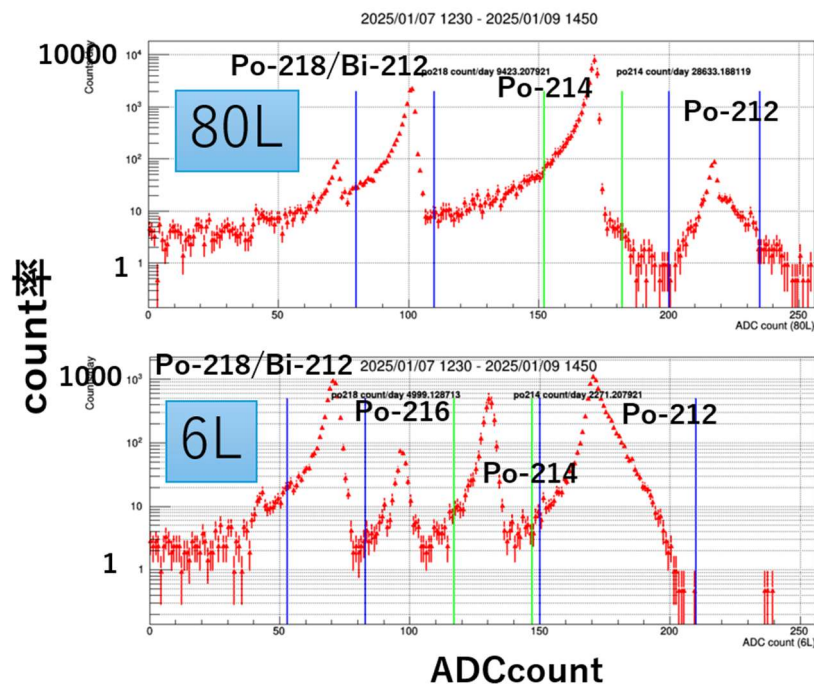


図 4.21 測定期間のスペクトル

図 4.21 はラジウムセラミックボールの測定期間のスペクトルである。Po-216 や Po-212 といったトリウム系列が多く見えているのが特徴である。

また、ラジウムセラミックボールの測定期間の露点温度の変化が下の図 4.22 である。

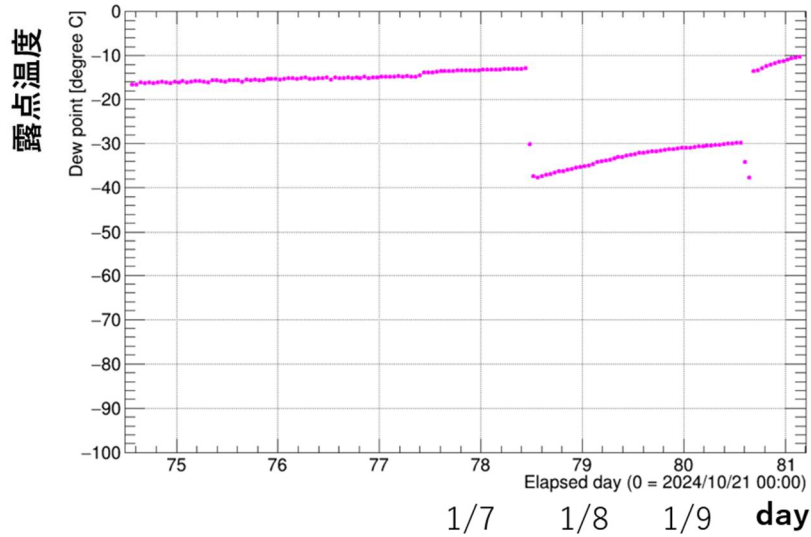


図 4.22 ラジウムセラミックボールの測定期間の露点温度変化

図 4.22 より、ラジウムセラミックボールの測定期間の露点温度は $-38^{\circ}\text{C} \sim -30^{\circ}\text{C}$ であるが、較正測定で得られた較正係数は $-20^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲であるため、今回は $-20^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の較正係数の平均をとってそれを放射能の計算に用いることにした。平均をとると、6L : 0.16 80L : 1.93 である。

しかし、下の図 4.23 の露点依存性において、 -20°C : 約 1.8 -40°C : 約 2.2 であるのを参考にとすると、Rn 濃度の測定値(=放射能の測定値)に約+22%の系統誤差が見込まれる。[1]

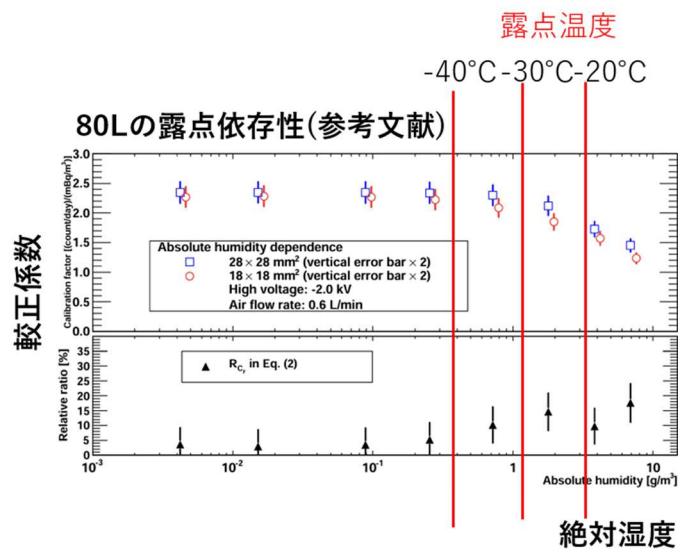


図 4.23 較正係数の露点依存性(80L) [1]

- Rn-222(ウラン系列)の放射能

Rn-222(半減期 3.82 日)の count 率の変化を放射平衡フィッティングした様子が下の図 4.24, 4.25 である。

※Po-218 の count 率には Bi-212 も含まれており、正しく測定できないため、Po-214 のフィッティングから放射能を求める。

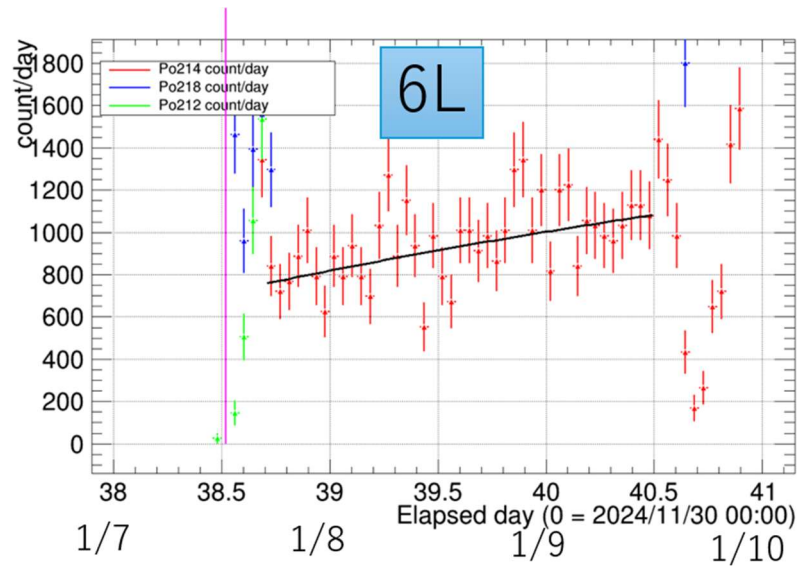


図 4.24 6L における Rn-222 の放射平衡フィッティング

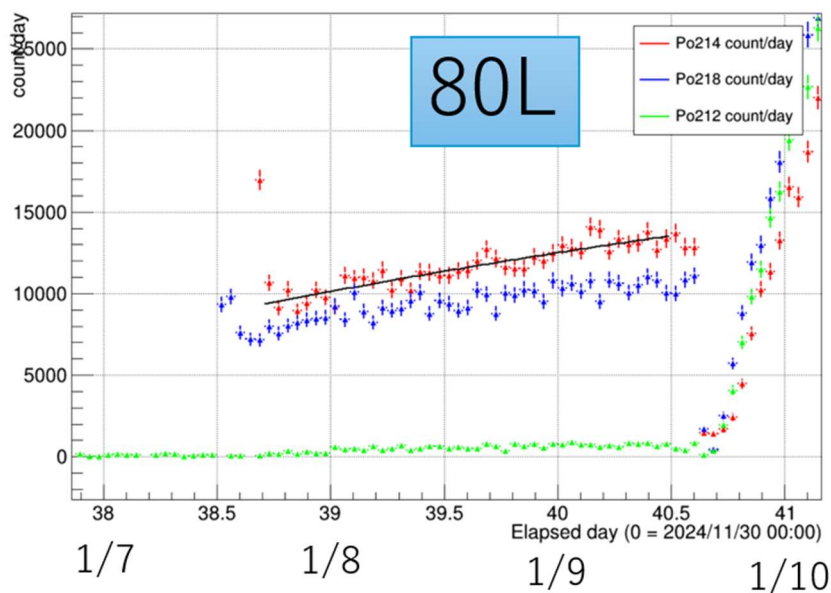


図 4.25 80L における Rn-222 の放射平衡フィッティング

フィッティングから得られた Rn-222 の平衡時の count 率(cpd)が下の表 4.22 である。

	6L	80L
count 率(平衡時)	$1930 \pm 245 \text{cpd}$	$24469 \pm 863 \text{cpd}$

表 4.22 Rn-222 の平衡時の count 率

よって放射能は
6 L について

$$\text{最確値} \quad \frac{1930}{0.16} \times 0.087 \approx 1049 \text{ mBq/kg}$$

$$\text{誤差} \quad \frac{245}{0.16} \times 0.087 \approx 133 \text{ mBq/kg}$$

80L について

$$\text{最確値} \quad \frac{24469}{0.16} \times 0.087 \approx 1103 \text{ mBq/kg}$$

$$\text{誤差} \quad \frac{863}{0.16} \times 0.087 \approx 39 \text{ mBq/kg}$$

まとめると、(下表 4.23)

	6L	80L
放射能	$1049 \pm 133 \text{mBq/kg}$	$1103 \pm 39 \text{mBq/kg}$

表 4.23 Rn-222 の平衡時の放射能

表 4.23 より、6 L と 80L で放射能の値はほぼ consistent になり、これは 6L で正しく放射能測定ができたといえる。

・ Rn-220(トリウム系列)の放射能

Rn-220 の count 率の変化を放射平衡フィッティングした様子が下の図 4.26, 4.27 である。

※Rn-220 は半減期が 55 秒ととても短く、放射平衡には Rn-220 の崩壊後の Pb-212 の半減期 10.6 時間(0.44 日)が効いてくるので、それをフィッティングの式に使用する。

フィッティング式 (A,B: フィッティング変数 t : 日)

$$A(1 - 2^{-\frac{t-B}{0.44}})$$

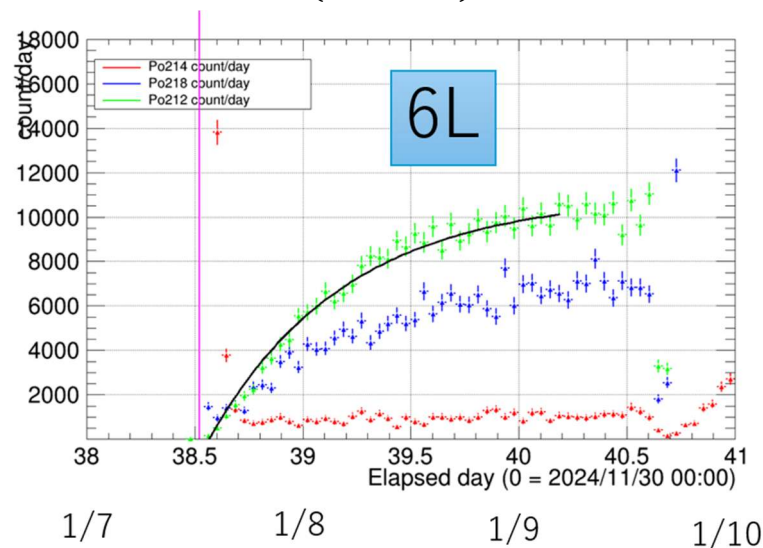


図 4.26 6L における Rn-220 の放射平衡フィッティング

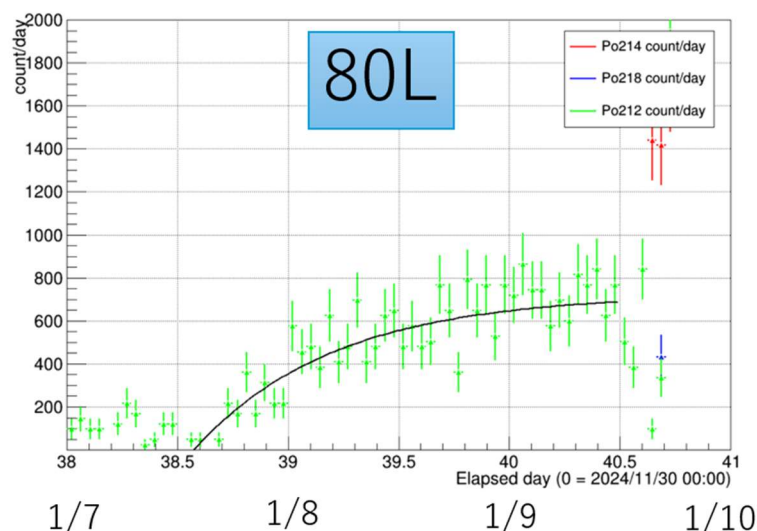


図 4.27 6L における Rn-220 の放射平衡フィッティング

フィッティングから得られた Rn-222 の平衡時の count 率(cpd)が下の表 4.24 である。

※Po-214 と Po-212 の校正係数が同じと仮定する。

	6L	80L
count 率(平衡時)	10966±106cpd	723±25cpd

表 4.24 Rn-222 の平衡時の count 率

よって放射能は
6 L について

$$\text{最確値} \quad \frac{10996}{0.16 \times 0.64} \times 0.087 \approx 9317 \text{ mBq/kg}$$

$$\text{誤差} \quad \frac{106}{0.16 \times 0.64} \times 0.087 \approx 90 \text{ mBq/kg}$$

80L について

$$\text{最確値} \quad \frac{723}{0.16 \times 0.64} \times 0.087 \approx 60 \text{ mBq/kg}$$

$$\text{誤差} \quad \frac{25}{0.16 \times 0.64} \times 0.087 \approx 2 \text{ mBq/kg}$$

※分母の 0.64 は分岐比(Bi-212→ Po212)

まとめると、(下表 4.25)

	6L	80L
放射能	9317±90mBq/kg	60±2mBq/kg

表 4.25 Rn-222 の平衡時の放射能

表 4.25 より、6 L→80L にかけて約 1/155 倍の違いがあることがわかった。

この違いの原因を以下のように考察する。

Rn-220 の半減期は 55 秒、流量は 1L/min。仮に空気循環効率が 100%だとすると、6 L 検出器を Rn-220 が充満するのに約 6 分かかる。6L から 80L に向かう間に Rn-220 が崩壊して $1/2^6=1/64$ ほど減少するはずである。実際、循環効率はもう少し悪いので、80L に到達するまでに 6 分以上はかかるはずである。つまり、 $1/155$ ほど減少していてもおかしくはない。

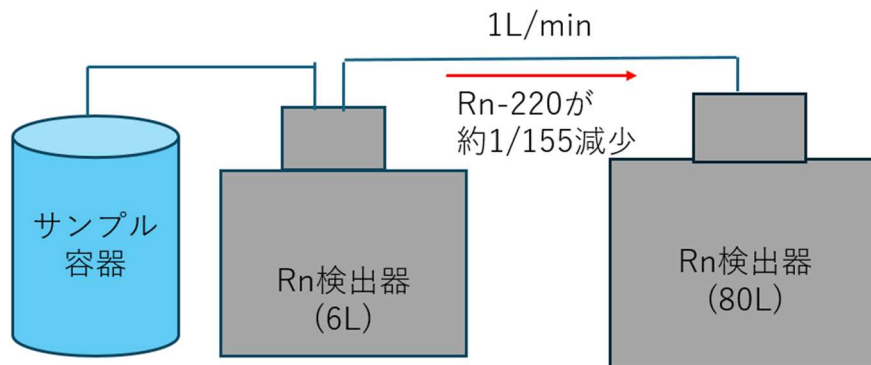


図 4.28 空気循環の概略図

4.3 まとめ

バックグラウンド測定では測定期間の count 率がとても小さく、校正測定の count 率($\sim 10^5$ cpd)に比べて無視できるほど小さいことがわかった。また、ラジウムセラミックボールの放射能測定では、Rn-222(ウラン系列)の放射能は 6L と 80L で consistent になり、6L で正しく放射能測定ができたことがわかった。一方で、Rn-220(トリウム系列)の放射能は 6L $\rightarrow$ 80L にかけて $1/155$ 倍の違いがあり、それは Rn-220 の半減期が短いことによって 6L から 80L に移動する間に崩壊してしまっていることが原因であると考えられる。

参考文献

- [1] K. Okamoto, Y. Nakano, G. Pronost, H. Sekiya, S. Tasaka, Y. Takeuchi, M. Nakahata, Improvement of radon detector performance by using a large-sized PIN-photodiode, arXiv:2112.06614

5 ラドン検出器を用いた放射能測定2 (担当:西上)

5.1 本章の概要

今回作成した6L検出器が80L検出器と同じように放射能を測定できるかどうかを確認するために、崩壊過程においてRn-222を出すウラン系列の子孫核種を含むサンプルを用意し、2つの検出器で放射能をそれぞれ測定した。用いたサンプルは、ランタンマントルとピッチブレンドの2種類である。本章では、その結果を示す。

5.2 ランタンマントルの放射能測定

5.2.1 ランタンマントルとは

金属硝酸塩が染み込んでいる布のことである。ランタンを光らせるために用いる。マントルが光る仕組みは、布が燃える時の熱が発光塗料と反応するためである[1]。今回の実験では、この発光塗料として酸化トリウムが用いられていると思われるマントルを使用した。図5.1を合計9枚、図5.2を合計12枚用いた。図5.3が実際に測定容器に入れたランタンマントルである。合計で42.06gのランタンマントルを用いた。



図5.1 [UNIFLAME] フォールディングランタン専用マントル



図5.2 [CAPTAIN STAG] ガスランタン専用マントル

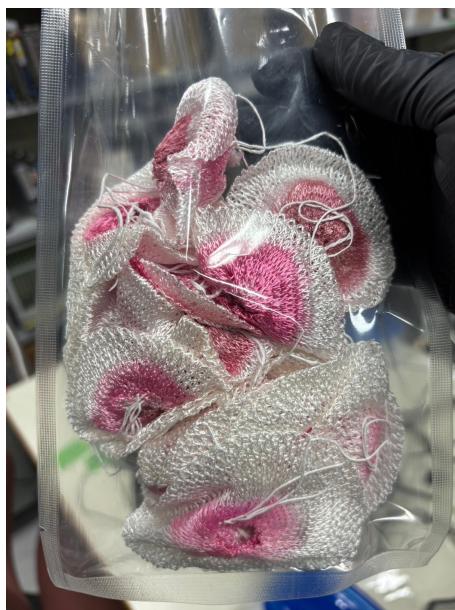


図5.3 実際に測定容器に入れたランタンマントル

5.2.2 測定期間と露点温度

測定期間は 2025年1月9日 16:13 ~ 1月14日 10:40 であった。
この時の装置の流量は1.0 L/min、HVは6Lで-300 V, 80Lで-2000 Vであった。

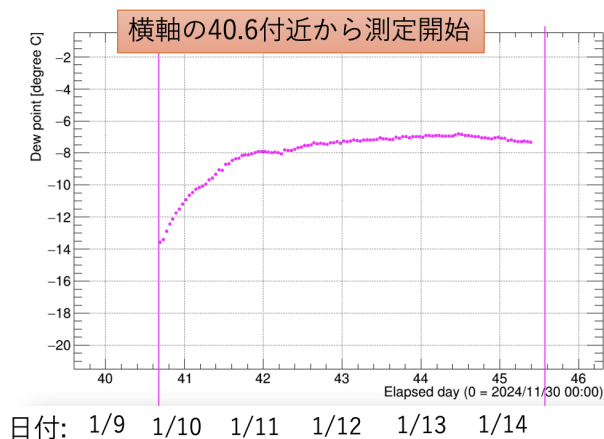


図5.4 測定期間の露点温度の変化

図5.4は測定期間の露点温度の変化のグラフである。これを見ると、露点温度が安定し

た時は $-8^{\circ}\text{C} \sim -7^{\circ}\text{C}$ であることがわかる。これを絶対湿度に換算すると、室温が 21°C の場合 $14.6 \sim 16.2 \text{ g/m}^3$ である。

絶対湿度依存性の測定で求めた較正係数は、露点温度が $-19^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲であった。

ここで、70L検出器開発論文[2]の中の図5.5を見ると、絶対湿度が 2 g/m^3 程度より大きい場合は較正係数がほぼ一定であることがわかる。よって、放射能を求める際は、図5.6の4点の平均を用いることとする。

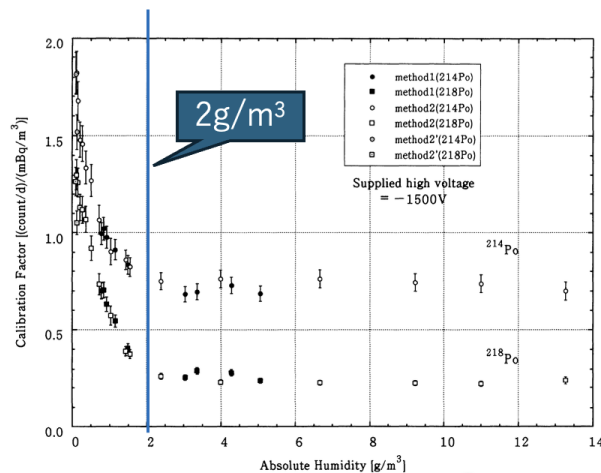


図5.5 70L検出器の絶対湿度依存性 [2]

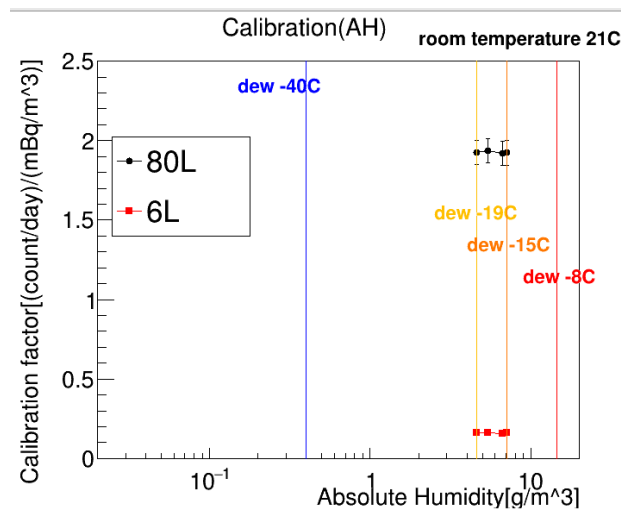


図5.6 較正試験で得られた6Lと80Lの絶対湿度依存性

5.2.3 スペクトル

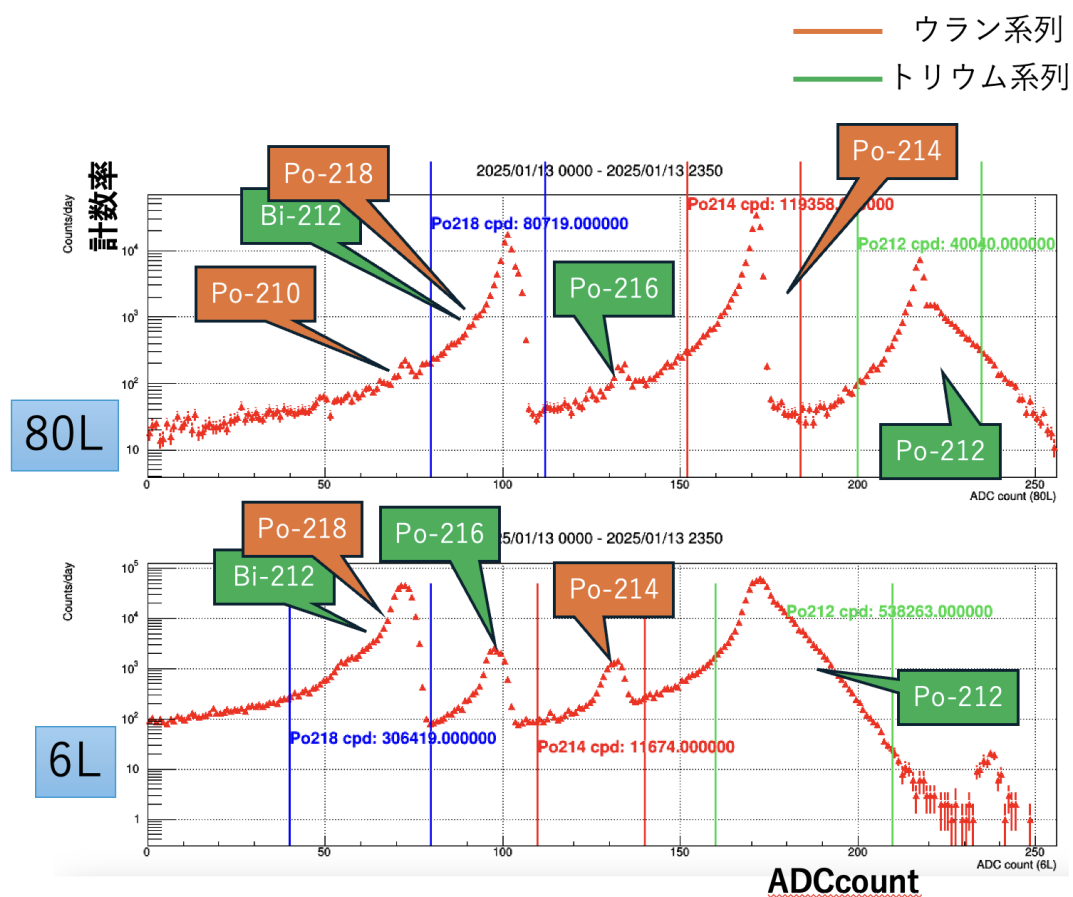


図5.7 2025/1/13のADC分布

測定開始から4日目のスペクトルは図5.7であった。80L検出器で主に見えているのはウラン系列のPo-214, Po-218で、トリウム系列ではPo-212である。一方6L検出器では、トリウム系列のPo-212が一番多く見えており、次に同じ系列のPo-216、ウラン系列ではPo-218, Po-214が主である。

ここで、6LのPo-214のスペクトルに注目すると、Po-212のテール部分によって計数率が上乗せされていることがわかる。

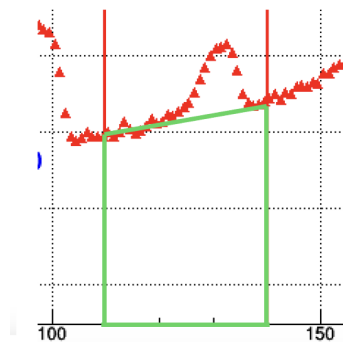


図5.8 2025/1/13のADC分布 6LのPo-214

この影響を見積もるため、図5.8のように、Po-214のうちPo-212によって上乗せされている部分を、台形の面積を求めることで大まかに見積もったカウント数は約5,550count/dayであった。よって、この日のPo-214の計数率のうち47.5%ほどPo-212によって上乗せされていることが分かった。これは測定開始から4日目の時点での値なので、最終的にはもう少し減ると予想される。

この上乗せされている影響を考慮し解析をしていく。

5.2.4 Rn-222の放射能と評価

Po-214の計数率を放射平衡の式でフィッティングをし、平衡時のcount/day(cpd)を求める。

まず6L検出器の測定結果について述べる。

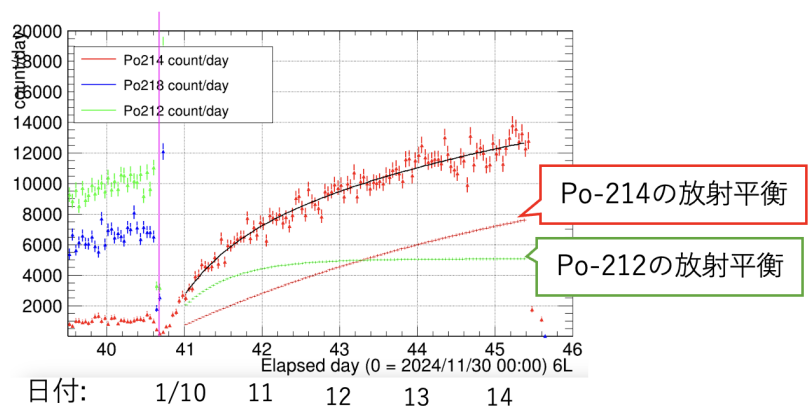


図5.9 6L検出器測定日と計数率の関係

図5.9の赤い点が、測定日ごとのPo-214の計数率の値である。それを放射平衡の式でフィットしたのが黒線である。

ここで、Po-214のカウント数はPo-212によって上乘せされていることがスペクトルの結果によって分かったので、フィットする式として

$$P_0 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{3.8235}}\right) + P_2 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{0.4417}}\right) \quad (5.1)$$

を用いた。 P_0 はウラン系列のPo-214が放射平衡になった時の計数率、 P_1 は放射平衡が始まった時刻、 P_2 はトリウム系列のPo-212が放射平衡になった時の計数率を表す。これらがフィットによって求めるパラメータである。ここで3.8235日はRn-222からPo-214までの崩壊にかかる時間、0.4417日はRn-220からPo-212までの崩壊にかかる時間である。図5.9のうち、「Po-214の放射平衡」を表す赤色の曲線が、式5.1の第1項である

$$P_0 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{3.8235}}\right)$$

の要素である。フィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $13279 \pm 587 \text{cpd}$ であった。ここから、校正係数 $C_F = \left[\frac{\text{counts/day}}{\text{mBq/m}^3}\right]$ を用いて平衡時のRn-222の放射能を求めると、

$$\frac{P_0[\text{count/day}] \times \text{体積}[\text{m}^3]}{C_F\left[\frac{\text{counts/day}}{\text{mBq/m}^3}\right] \times \text{質量}[\text{kg}]} \div 1000 = \frac{13279 \times 0.087}{0.161 \times 0.042} \div 1000 \simeq 170 \pm 8 \text{Bq/kg} \quad (5.2)$$

次に80L検出器の測定結果について述べる。

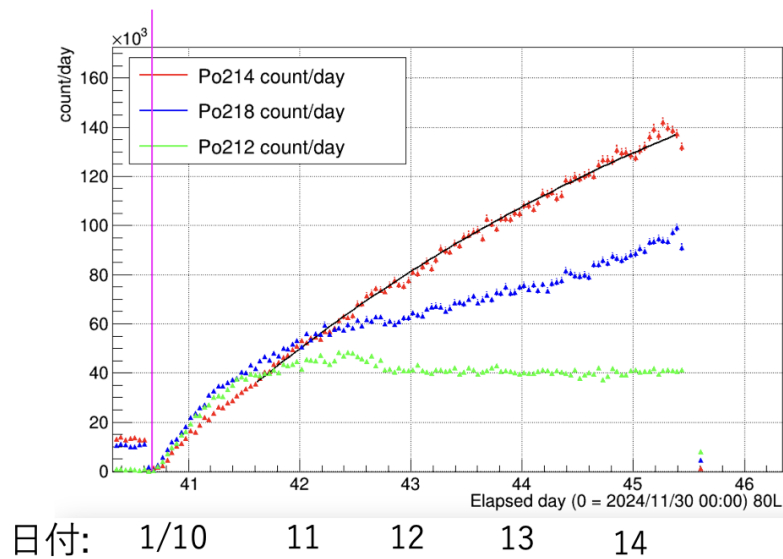


図5.10 80L検出器測定日と計数率の関係

図5.10の赤い点が、測定日ごとのPo-214の計数率の値である。それを放射平衡の式でフィットしたのが黒線である。

フィットする式として

$$P_0 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{3.8235}}\right) \quad (5.3)$$

を用いた。フィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $236964 \pm 578\text{cpd}$ であった。先ほどと同様にして平衡時のRn-222の放射能を求めると、

$$\frac{236964 \times 0.087}{1.93 \times 0.042} \div 1000 \simeq 254.5 \pm 0.6\text{Bq/kg} \quad (5.4)$$

これらより、6Lと80Lで測定値の差は1.5倍程度であることが分かった。セラミックボール測定の結果と異なり2つの検出器の結果で大きな差が生じたが、原因は不明である。

5.2.5 Rn-220の放射能と評価

図5.7より、トリウム系列の計数率も多く測定されていたので、Rn-220の放射能も求めてみる。

Po-212の計数率を放射平衡の式でフィッティングをし、平衡時のcount/day(cpd)を求める。フィットする式として、

$$P_0 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{0.4417}}\right) \quad (5.5)$$

を用いた。ここで0.4417日はRn-220からPo-212までの崩壊にかかる時間である。

まず6L検出器の測定結果について述べる。

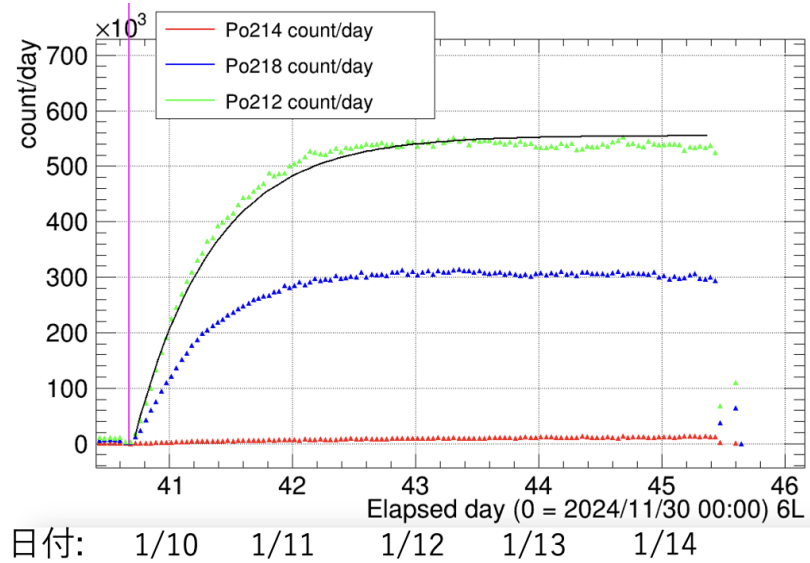


図5.11 6L検出器測定日と計数率の関係

図5.11の緑色の点が、測定日ごとのPo-212の計数率の値である。それを放射平衡の式でフィットしたのが黒線である。

フィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $555019 \pm 377\text{cpd}$ であった。校正試験の時に求めた校正係数はPo-214の計数率を用いる時のみだったので、Po-214とPo-212の校正係数が同じと仮定して、平衡時のRn-220の放射能を求めると、

$$\frac{555019 \times 0.087}{0.161 \times 0.64 \times 0.042} \div 1000 \simeq 11119 \pm 8\text{Bq/kg} \quad (5.6)$$

ここで、分母に出てくる0.64はBi-212からPo-212への崩壊の分岐比である。

次に80L検出器の測定結果について述べる。

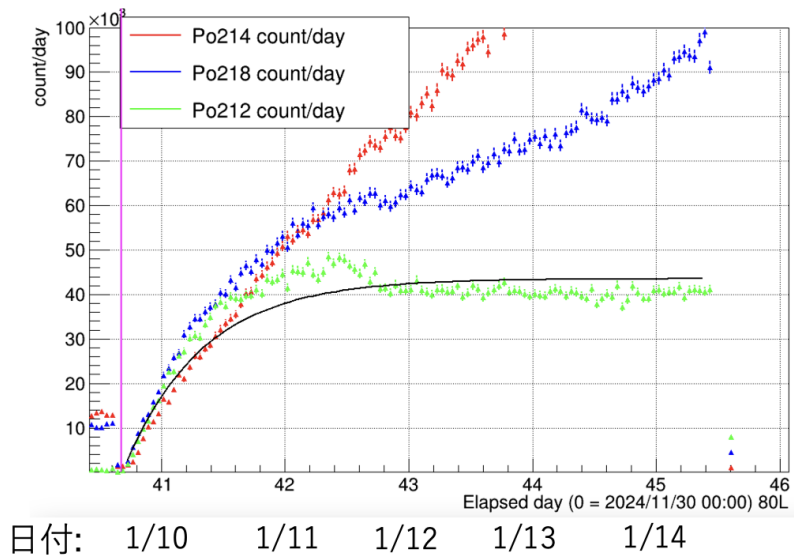


図5.12 80L検出器測定日と計数率の関係

図5.12の緑色の点が、測定日ごとのPo-212の計数率の値である。それを放射平衡の式でフィットしたのが黒線である。

フィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $43556 \pm 106\text{cpd}$ であった。

先ほどと同様にして平衡時のRn-220の放射能を求めると、

$$\frac{43556 \times 0.087}{1.93 \times 0.64 \times 0.042} \div 1000 \simeq 73.1 \pm 0.2\text{Bq/kg} \quad (5.7)$$

これらより、6Lと80Lで測定値の差に約1/152倍の違いがあることが分かった。セラミックボールの測定結果では、この減少率は1/155倍だったので、同じ理由により生じた差だと考えられる。よって、サンプルを変えてもトリウム系列の6Lから80Lでの減少量が同じ値をとっており、それは本測定装置・測定手順の固有の特性であることを意味するので、再現性が確認できた。

5.3 ピッチブレンドの放射能測定

5.3.1 ピッチブレンドとは

二酸化ウラン(UO_2)からなる鉱物「閃ウラン鉱」の亜種で、非晶質である [3]。以下の左側にある鉱物だけを容器に入れて測定した。質量は26.73g であった。

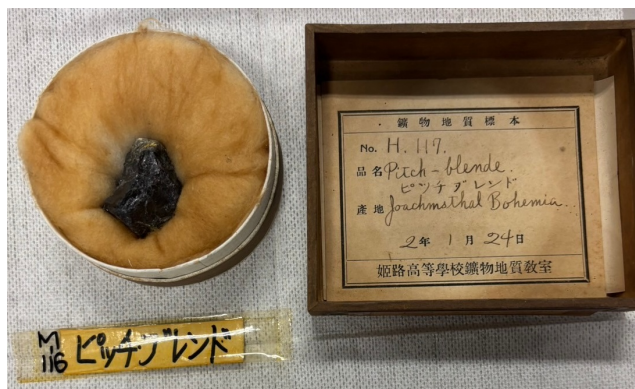


図5.13 測定で使用したピッチブレンド(神戸大学大学教養推進機構から拝借)

5.3.2 測定期間と露点温度

測定期間は 2025年1月29日 18:38 ~ 2月3日10:00 であった。
この時の装置の流量は1.0L/min、HVは6Lで-300V, 80Lで-2000Vであった。

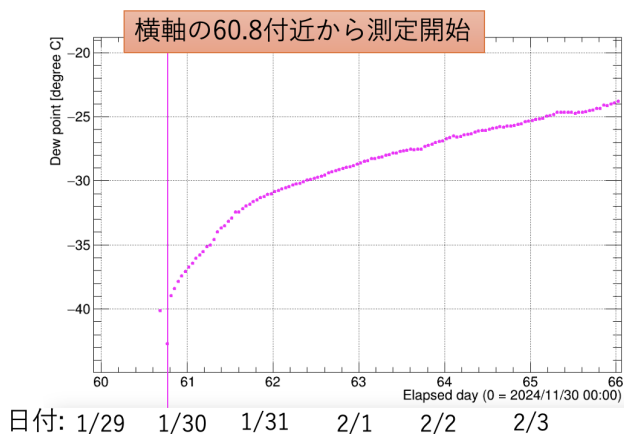


図5.14 測定期間の露点温度の変化

図5.14は測定期間の露点温度の変化のグラフである。これを見ると、露点温度が安定した時の温度は-30℃ ～ -25℃ であることがわかる。これを絶対湿度に換算すると、室温が21℃の場合 1.33 ～ 2.37 g/m³ である。

放射能を求める際は較正試験で得られた較正係数である図5.6の4点の平均を用いた。

5.3.3 スペクトル

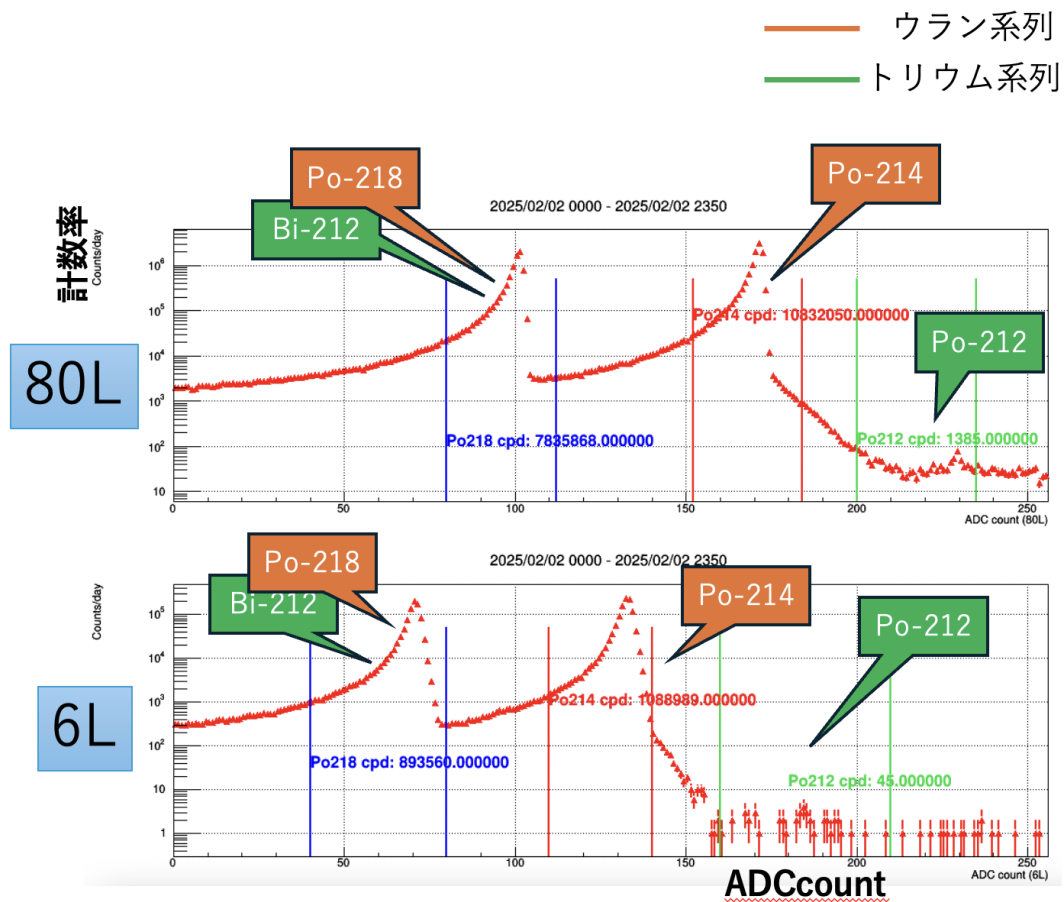


図5.15 2025/2/2のADC分布

測定開始から3日目のスペクトルは図5.15であった。80L,6L検出器ともにウラン系列のPo-214, Po-218が顕著に見えている。トリウム系列はほぼ見えない。

5.3.4 Rn-222の放射能

Po-214の計数率を放射平衡の式でフィッティングをし、平衡時のcount/day(cpd)を求める。6L,80Lともにフィットする式として、

$$P_0 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{3.8235}}\right) \quad (5.8)$$

を用いた。まず6L検出器の測定結果について述べる。

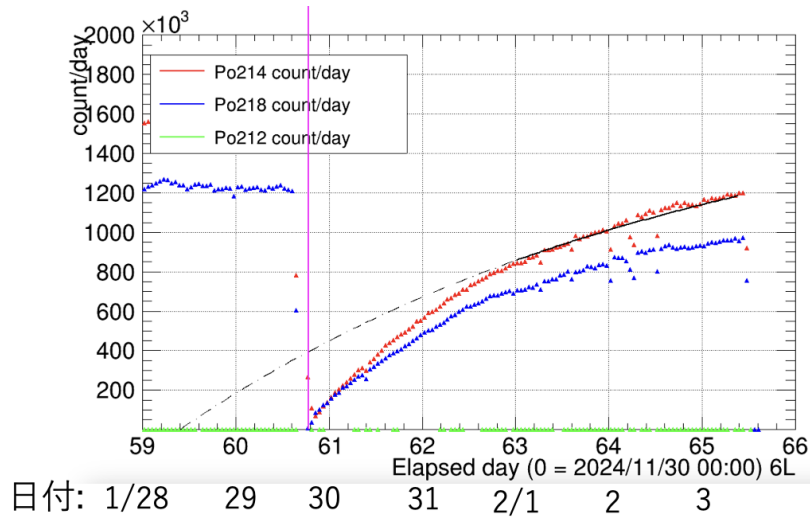


図5.16 6L検出器測定日と計数率の関係

図5.16の赤い点が、測定日ごとのPo-214の計数率の値である。それを放射平衡の式でフィットした範囲が実線の黒線で、その式の表示範囲を伸ばしたのが点線である。フィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $1788420 \pm 1131\text{cpd}$ であった。ランタノマントルでの解析と同様にして平衡時のRn-222の放射能を求めると、

$$\frac{1788420 \times 0.087}{0.161 \times 0.027} \div 1000 \simeq 36082 \pm 23\text{Bq/kg} \quad (5.9)$$

次に80L検出器の測定結果について述べる。

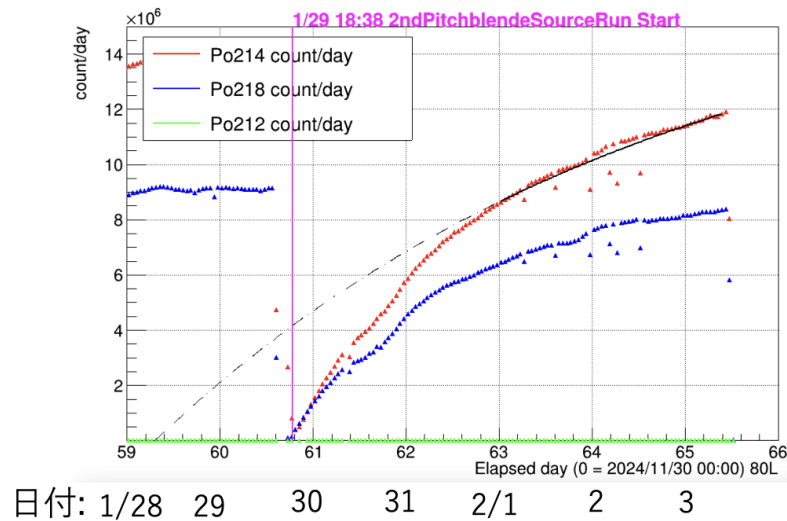


図5.17 80L検出器測定日と計数率の関係

図5.17の赤い点が、測定日ごとのPo-214の計数率の値である。それを放射平衡の式でフィットしたのが黒線である。

フィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $17698500 \pm 16570\text{cpd}$ であった。先ほどと同様にして平衡時のRn-222の放射能を求めると、

$$\frac{17698500 \times 0.087}{1.93 \times 0.027} \div 1000 \simeq 29916 \pm 28\text{Bq/kg} \quad (5.10)$$

6Lと80Lで測定値の差は0.83倍程度であることが分かった。

6L,80Lともに計数率がランタンマンツルの時より大幅に増えており、ピッチブレンドの放射能が強力であることがわかる。図5.16図5.17でフィットの始まりの点を見ると、実際に測定を開始した時刻より大幅に早くなっている。これは、計数率が無らかな理由により抑えられていた可能性がある。実際、計数率が多すぎて計数漏れが生じていた。次節で計数漏れの評価について述べる。

5.3.5 計数漏れの評価

レートが高いとCPUの使用率が高くなる。その状態で6L,80Lの2チャンネルを同時に測定していると尚更である。これにより、DAQ計算機で計数漏れが生じていることが考えられる。

検出器のシグナルをDAQ計算機を介さずにスケーラーで測定した。図5.18がスケーラー計測の回路図である。

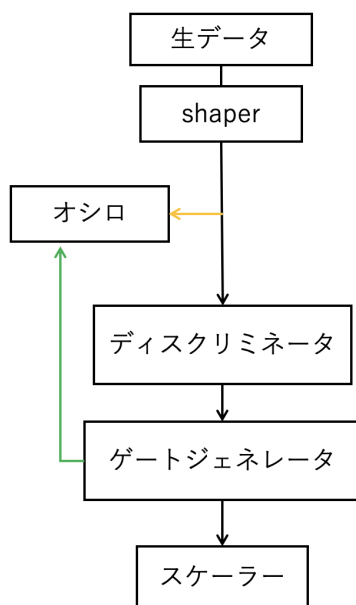


図5.18 スケーラー計測の回路図

ディスクリミネータは、指定した閾値の値を超えた入力信号に対してのみ矩形波を出力する。

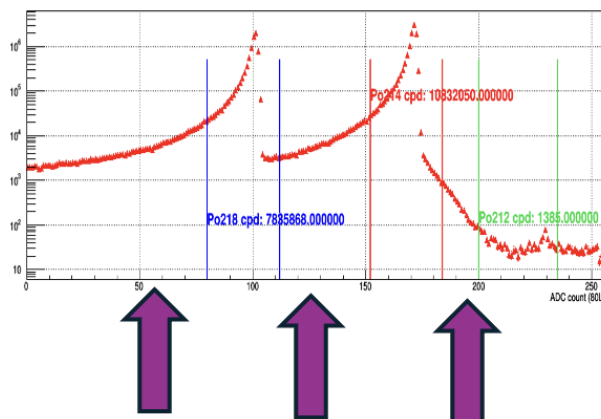


図5.19 ディスクリミネータの閾値設定 3箇所

図5.19の紫色の矢印がある3箇所に閾値を設定し、それぞれ計数率を測定した。計測した3つの値は閾値の低い順に、Po-218+Po-214+ノイズ、Po-214+ノイズ、ノイズの計数である。それぞれ1分間、計数が低いためノイズのみ5分間計測した。ゲートジェネレータでは、ラドン検出器からのシグナルが1つ来るごとに1つの矩形波を出力するよう調節した。



図5.20 オシロスコープで見た信号

閾値をPo-214+ノイズが見えるよう設定した時、図5.18のオシロスコープで見た信号は図5.20である。shaperを通した生信号が黄色、ゲートジェネレータを通った後の信号が緑色である。生信号のうち左の大きい波形がPo-214で、右がPo-218である。今、デ

ィスクリミネータでPo-214の波形が来た時のみ信号が出るように設定しているので、Po-214の信号でのみ矩形波(緑)が出力されている。この矩形波の数をスケーラーでカウントする。

設定した閾値でそれぞれカウントして求めた計数率は、表5.1のようになった。

表5.1 スケーラー計測で求めた閾値ごとの計数率

スケーラー	6L(Hz)	80L(Hz)
Po-214+Po-218+ノイズ	27.37	265.65
Po-214+ノイズ	15.42	161.77
Po-218	11.95	103.88
ノイズ	0.08	1.14

DAQ計算機を介して求めた値の計数率を、スケーラー計測を行った日に出力された値を元に表にまとめると、表5.2のようになった。

表5.2 DAQ計算機から出力された計数率

DAQ	6L(Hz)	80L(Hz)
Po-214	13.89	136.57
Po-218	11.34	97.22

表5.1と表5.2から、スケーラー計測で求めた計数率(Hz)とDAQ計算機を介して求めた値を比較した結果、表5.3のようになった。

表5.3 DAQ計算機とスケーラー計測でのPo-214の計数率の比較

Po-214の計数率	6L(Hz)	80L(Hz)
DAQ	13.89	136.57
スケーラー	15.34	160.77

DAQ計算機を通した結果はスケーラーでの値より、6Lで-10.4%、80Lで-17.7%の計数漏れがあることが分かった。ここで、ディスクリミネータでの閾値設定による誤差も含まれるため、計数漏れの値は大まかな評価である。

この計数漏れの値を信用して先ほどの放射能の結果を補正すると、

表5.4 補正したRn-222の放射能

Rn-222の放射能	6L(Bq/kg)	80L(Bq/kg)	80L/6L
計数漏れの補正なし	36082	29916	0.83
補正あり	39835	35211	0.88

となり、6Lと80Lの測定値の差が縮まった。

5.3.6 計数漏れを無くしたRn-222の放射能と評価

図5.16図5.17のように、計数率が増えてくる後半の時期の値を用いてフィッティングを行うと、計数漏れの影響が生じる。よって、測定開始直後の値を用いて放射平衡フィッティングを行い、改めて放射能を求める。

まず6L検出器の測定結果について述べる。

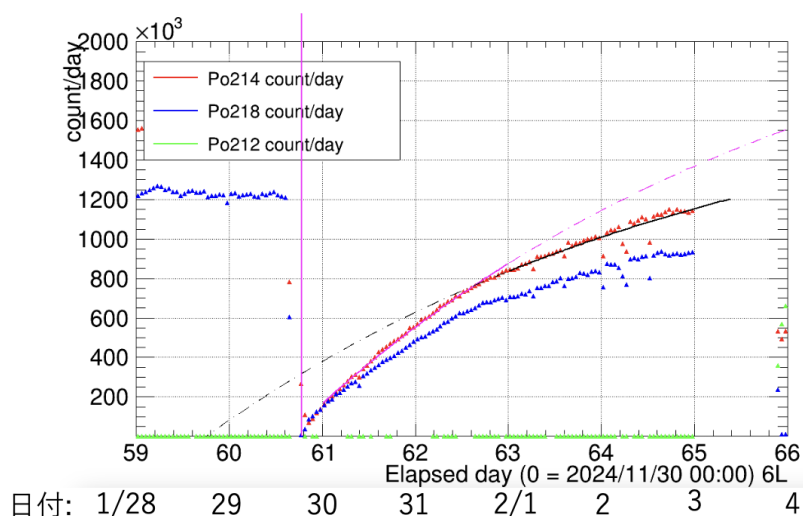


図5.21 6L検出器測定日と計数率の関係

図5.21の黒い曲線が後半の値を用いたフィット、ピンクの曲線が前半の値を用いたフィットの結果である。前半の値を用いてフィッティングを行った方が、平衡時の計数率が高いことがわかる。測定値であるPo-214のcpd（赤い点）と前半の値を用いたフィットの結果（ピンクの線）を比べると、 8×10^5 cpdあたりから計数漏れが生じていると考えられる。

ピンク色のフィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $2498510 \pm 4704\text{cpd}$ であった。この値を用いて改めて平衡時のRn-222の放射能を求めると、 $50408 \pm 95\text{Bq/kg}$ であった。

次に80L検出器の測定結果について述べる。

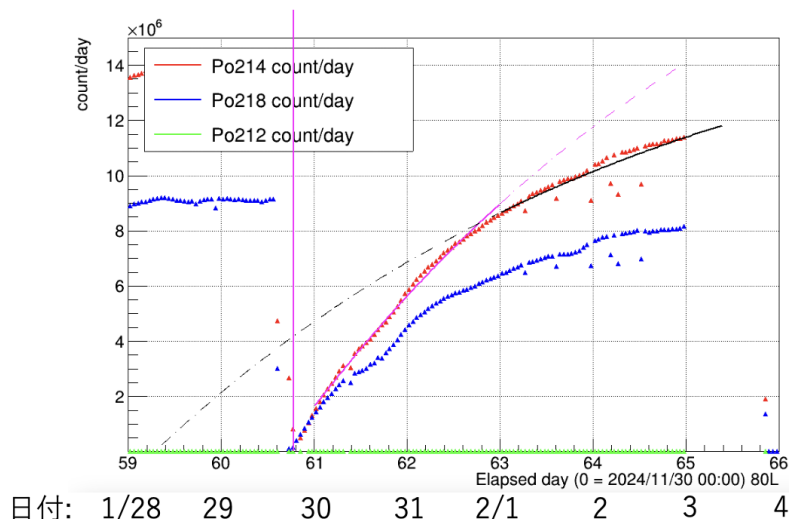


図5.22 80L検出器測定日と計数率の関係

図5.22の黒い曲線が後半の値を用いたフィット、ピンクの曲線が前半の値を用いたフィットの結果である。6L検出器の結果と同様、前半の値を用いてフィッティングを行った方が、平衡時の計数率が大きいことがわかる。80L検出器はPo-214のcpdが $8 \times 10^6\text{cpd}$ あたりから計数漏れが生じていると考えられる。

ピンク色のフィットで求めた平衡時の計数率 P_0 の値の結果は $25806300 \pm 15052\text{cpd}$ であった。この値を用いて改めて平衡時のRn-222の放射能を求めると、 $43620 \pm 25\text{Bq/kg}$ であった。

6Lと80Lで測定値の差は0.87倍程度となり、計数漏れの評価なしの時の値と比べて測定値の差が縮まった。

5.3.7 6L検出器での計数漏れを無くした計数率の再評価

1台の計算機で80Lと6Lの両方のシグナルを処理していたが、80L検出器のシグナルをADCの入力から外して、6Lのデータのみ収集した。これによりCPUの使用率は6Lの

みになるので、80L検出器の影響による計数漏れを排除したわけである。そのデータを用いて放射平衡フィッティングを行った結果を図5.23に示す。

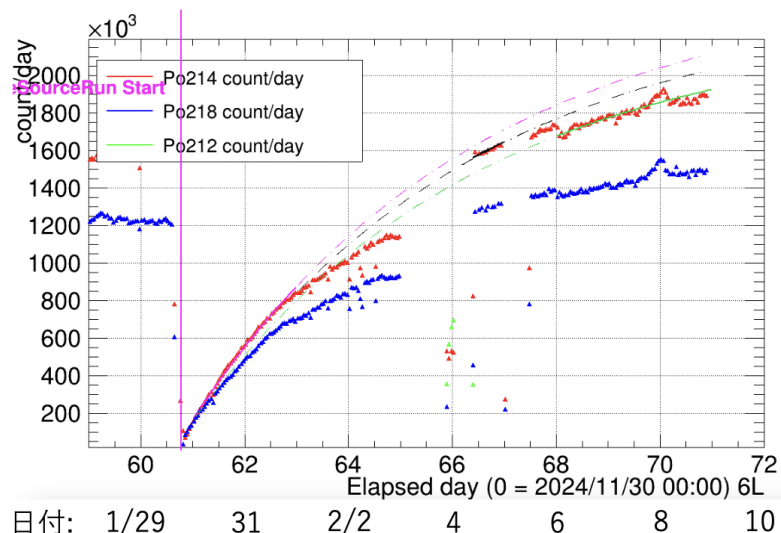


図5.23 6L検出器測定日と計数率の関係

図5.23のうち、2月4日以降が6Lのデータのみ収集した計数漏れなしのデータである。放射平衡曲線を考慮して計数率の値を見ると2月4日以前と比べて増えているので、以前は計数漏れがあったことを表している。

フィット範囲を3つの期間で設定し、放射平衡フィットを行った。期間とそれぞれのフィッティング曲線は1/30～2/1がピンク、2/4 9:30～2/5が黒、2/6～2/9が緑である。フィットする式として、

$$P_0 \times \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{x-P_1}{3.8235}}\right) \quad (5.11)$$

を用いた。2/4 9:30～2/5と2/6～2/9をフィットする際の、放射平衡曲線が開始した日時を示す P_1 の値は、1/30～2/1の範囲でのフィッティング結果（ピンクの線）の値で固定した。

3つの放射平衡フィッティングを行った結果を表にして表5.5に示す。

表5.5 3つの期間で放射平衡フィッティングを行い求めた P_0 の値

6L	1/30~2/1	2/4 9:30~ 2/5	2/6~2/9
露点温度(°C)	-32	-23	-21
絶対湿度(g/m ³)	1.05	2.97	3.70
平衡時の計数率(count/day)	2498510 ± 4704	2399120 ± 2573	2270110 ± 988

3つの放射平衡時の計数率に差があるが、それぞれの期間で露点温度は異なるため、較正係数の絶対湿度依存性が影響している可能性がある。較正試験で求めた絶対湿度依存性の較正係数は図5.6であり、測定したうち一番低い温度は-19°Cであった。上の表のうち一番近い温度である-21°Cをこの較正係数の値と同じである、そして他2つの露点温度での較正係数が上記の平衡時計数率の比で変化すると仮定した結果、較正係数の絶対湿度依存性は図5.24,5.25のようになった。

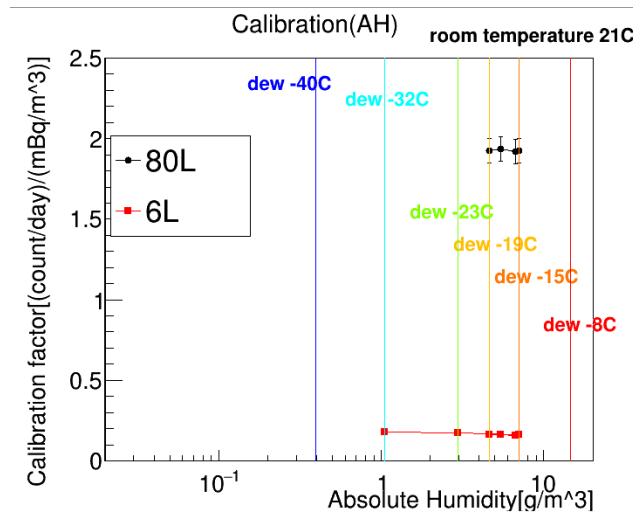


図5.24 較正試験で得られた絶対湿度依存性の6Lに2点を追加

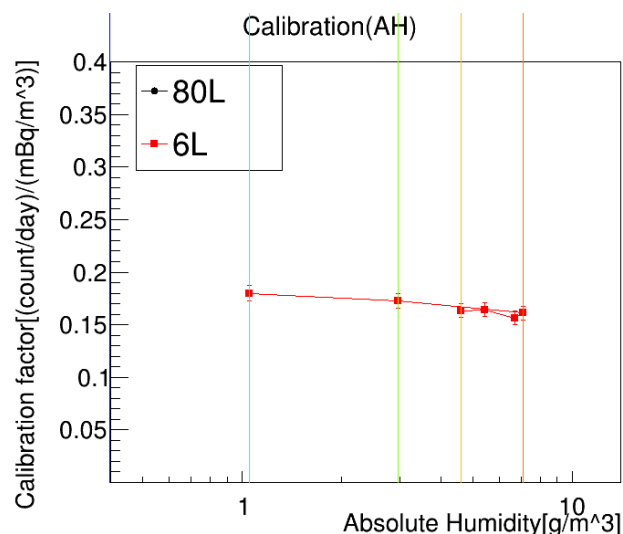


図5.25 図5.24のy軸を拡大

表5.6 絶対湿度依存性の較正係数の値（赤い数字が追加した値）

露点温度(°C)	-32	-23	-19	-17.5	-15.5	15
絶対湿度(室温21°C)(g/m³)	1.05	2.97	4.61	5.42	6.71	7.08
80L較正係数($\frac{\text{counts/day}}{\text{mBq/m}^3}$)			1.924	1.935	1.919	1.924
6L較正係数($\frac{\text{counts/day}}{\text{mBq/m}^3}$)	0.180	0.173	0.163	0.164	0.157	0.161

図5.25の6Lうち左から2点が追加した値である。追加した結果、絶対湿度が小さくなるにつれて較正係数が大きくなっている。この傾向は先行研究[4]にある絶対湿度依存性の較正係数の結果と一致している。

5.4 まとめ

この章では、ランタンマントル、ピッチブレンドの放射能を6L,80L検出器で測定した。Po-214の計数率の測定によって得られたRn-222の放射能の結果を、4章で測定したセラミックボールの結果も加えて表5.7に示す。

表5.7 測定したサンプルごとのRn-222の放射能

Rn-222の放射能	6L(Bq/kg)	80L(Bq/kg)
セラミックボール	1.0 ± 0.1	1.10 ± 0.04
ランタンマントル	170 ± 8	254.5 ± 0.6
ピッチブレンド	50408 ± 95	43620 ± 25

ピッチブレンドの値は計数漏れの影響を無くして求めた値である。

3つとも80Lより6L検出器の方が統計誤差が大きいのは、2つの検出器を同時に装置を組んでおり、検出器の大きさと比べて測定装置全体の体積が相対的に大きくなる影響である。セラミックボールの放射能は2つの検出器でほぼ一致するが、残り2つのサンプルは測定値の差が大きい。ランタンマントルで測定値の差が大きい理由は現時点では分からない。ピッチブレンドのように計数率が大きいとDAQ計算機で計数漏れが生じることが分かったため、CPU使用率にも注目しながら測定を行う必要がある。

地下環境のラドン濃度について、神岡鉱山の至る所でラドン濃度を測定した結果を示す論文[5]によると、季節変動はあるものの、神岡鉱山内でのラドン濃度は最大で 1740Bq/m^3 程度らしい。図5.21図5.22より、6L検出器では計数率が $8 \times 10^5\text{cpd}$ から、80L検出器では $8 \times 10^6\text{cpd}$ から計数漏れが生じると見積もられた。それぞれの計数率の値をラドン濃度に換算すると、6Lで

$$\frac{\text{計数率}[\text{count/day}]}{C_F[\frac{\text{counts/day}}{\text{mBq/m}^3}]} \div 1000 = \frac{8 \times 10^5}{0.161} \div 1000 \simeq 4969\text{Bq/m}^3 \quad (5.12)$$

80Lも同様に計算すると、約 4145Bq/m^3 となった。よって、実験を行う通常の地下環境におけるラドン濃度測定では計数漏れの心配はなさそうだ。

これらより、小型で性能の良いラドン検出器を製作するという当初の目的は達成されたとと言える。

5.5 参考文献

- [1]ランタンマントルとは <https://ja.wikipedia.org/wiki/%E3%82%AC%E3%82%B9%E3%83%9E%E3%83%B3%E3%83%88%E3%83%AB>
- [2]根本真知子,田阪茂樹,堀秀充,奥村公宏,梶田隆章,竹内康雄. 静電捕集型超好感度空气中ラドン検出器の開発 *RADIOISOTOPES*,**46**,710-719 (1997)
- [3]ピッチブレンドとは https://atomica.jaea.go.jp/dic/detail/dic_detail_640.html
- [4]K. Hosokawa, A. Murata, Y. Nakano, Y. Onishi, H. Sekiya, Y. Takeuchi, S. Tasaka. Development of a high-sensitivity 80L radon detector for purified gases. *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2015**, 033H01 (2015)
- [5]G. Pronost, M. Ikeda, T. Nakamura, H. Sekiya, S. Tasaka. Development of new radon monitoring systems in the Kamioka mine. *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2019**, 093H01 (2018)

6 全体のまとめ (担当:西上)

今回の実験では6Lのラドン検出器を製作し、測定感度を最適化してサンプルのラドン放射能を測定した。

校正試験において、フォトダイオードにかかる電圧, 流量, 絶対湿度の3つの要素で校正を行った。結果、測定で適正な電圧は6L:-300V、流量1.0L/minであった。冷凍機が不調だったため、測定で求めることができた絶対湿度の校正係数は絶対湿度が $4.6\text{g/m}^3 \sim 7.0\text{g/m}^3$ （室温が 21°C の時）の範囲の4点のみであった。ピッチブレンドの測定において、6Lは絶対湿度が 1.0g/m^3 程度までの校正係数の見積もりも行った。

最適化した装置を用いてサンプルの放射能測定を行った。計数率が大きいとDAQ計算機で計数漏れが生じることが分かったため、CPU使用率にも注目しながら測定を行う必要がある。