

らそれぞれのミリ秒, マイクロ秒オーダの相関事象を抽出するとともに多重時間間隔解析(Multiple time interval analysis : MTA) 結果をリアルタイムでCRT 上に表示できる迅速測定システムを開発することにした。

その結果, 弁別された α や $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスを含む複数の高速入射パルスのチャンネルデータおよび時間情報をすべて記録し, 測定中もこれらのデータを順次 MTA 法で時間間隔処理を行い, α - α または β - α 相関事象をリアルタイムで CRT 上へ表示可能なハードウェアならびにソフトウェアの開発に成功した。これら今回新しく開発できた複数入力に対応した高速パルス時間間隔データ処理およびリアルタイム表示システムの概要と LSC からの $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスをを用いた性能評価を行った結果を以下に述べる。

II. 多重時間間隔解析 (Multiple time interval analysis : MTA) 法の原理

α, β 線放出核種からの入射パルスの時間間隔データは, Fig. 1 に示すような MTA 法を用いて解析される^{6,7)}。検出・記録されたパルス発生時間を基に, 多重時間間隔解析幅 (fixed time T_f) 内に検出されたすべてのパルス間隔に対して a-b, a-c, a-d, a-e, ... のように計数を行う。計数時間が T_f となった場合は, スタートパルスを b に変更し, b-c, b-d, b-e, ... の時間間隔計数を行い, 次々と引き続くパルスを同様に処理し, 測定終了時間に相当する最後の入力パルスまで繰り返す。おのおののスタートパルス由来の時間間隔を基に, $T_f/1,000$ を単位とする時間幅 (= dt) 軸でデータ点をリアルタイムに加算することで横軸 $T_f (= \sum_{dt}^{1,000} dt)$ に対する時間間隔分布図を得ることができる。

MTA 法における相関事象とは, Fig. 2 に示す壊変系列において $t=0$ で親核種 A が壊変し, t 時間後の微小時間 dt に娘核種 B が壊変する連続壊変事象として定義できる。そのため, 娘核種 B が微小時間 dt に壊変する割合 $P_i(t)dt$ は

$$P_i(t)dt = W_i[\exp(-\lambda_i \cdot t) - \exp\{-\lambda_i \cdot (t+dt)\}] = W_i\{1 - \exp(-\lambda_i \cdot dt)\} \exp(-\lambda_i \cdot t) \quad (1)$$

となる。ここで, W_i は任意の親核種の壊変が $t=0$ で生じる割合, λ_i は娘核種 B の壊変定数である。さらに, dt が $T_{1/2} (= \ln 2/\lambda_i)$ の 1/10 以下の場合, $1 - \exp(-\lambda_i \cdot dt) \approx \lambda_i \cdot dt$ と近似できるため (1) 式は

$$P_i(t)dt \approx W_i \cdot \lambda_i \cdot \exp(-\lambda_i \cdot t) dt \quad (2)$$

と簡略化できる。

一方, 壊変系列中の短時間の連続壊変事象を示さない α, β 線放出核種や宇宙線などは, 上記の相関関係を持たないためバックグラウンド(ランダム事象)として取り扱われる。相関事象の定義からランダム事象の生じる割合 $P_r(t)$ は, 微小時間 dt に検出されるランダム事象由来のパルス

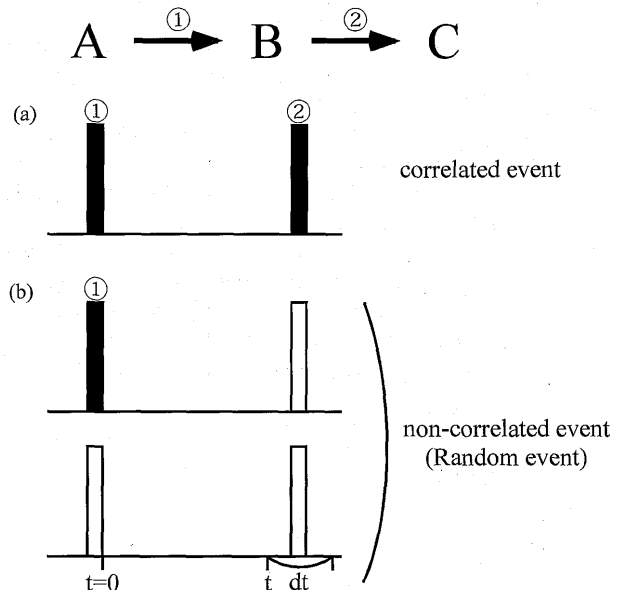


Fig. 2 Probability of MTA distribution; (a) correlated event, (b) non-correlated events

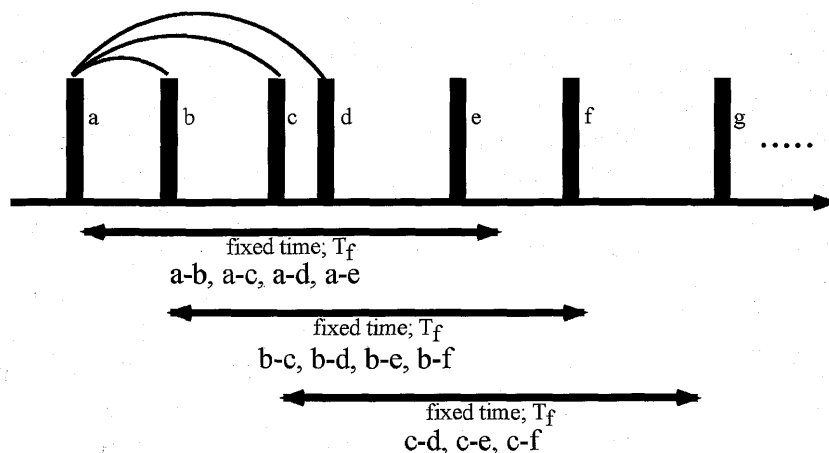


Fig. 1 Diagram for extraction protocol of multiple pulse time interval analysis (MTA)

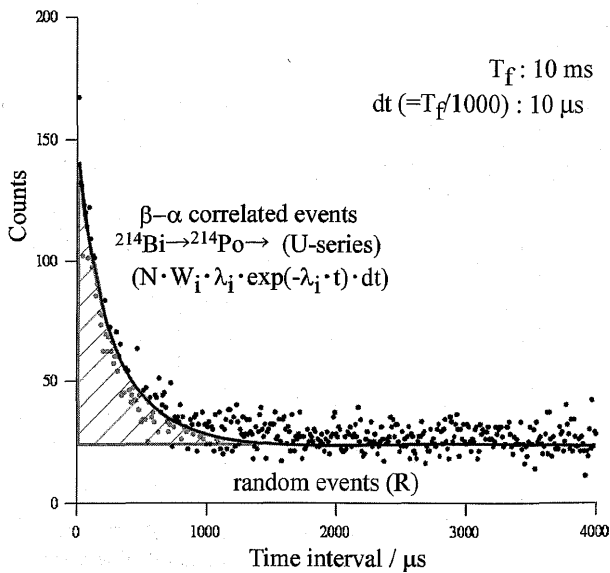


Fig. 3 Typical MTA distribution from natural sample (half-life of ^{214}Po was $164 \mu\text{s}$)

の生起割合と定義される。そのため単位時間当たりのランダムパルスの計数率を r とすると、

$$P_r(t)dt = r \cdot dt \quad (3)$$

となる^{6,8)}。

よって、MTA法における相関事象が生じる割合 $P(t)dt$ は(2)、(3)式の和として、以下の式で表現できる。

$$P(t)dt = P_i(t) + P_r(t) \\ = \{W_i \cdot \lambda_i \cdot \exp(-\lambda_i \cdot t) + r\}dt \quad (4)$$

MTA法における相関事象数は(4)式に全計数 N を乗じることによって得られる。

$$N \cdot P(t)dt = N \{W_i \cdot \lambda_i \cdot \exp(-\lambda_i \cdot t) + r\}dt \quad (5)$$

Fig. 3 に典型的な時間間隔分布図を示す。このグラフは、相関事象成分 $(N \cdot W \cdot \lambda \cdot \exp(-\lambda \cdot t))$ がランダム事象由来のバックグラウンドの水平成分 $R (= N \cdot r \cdot dt)$ の上に付加されたものであることが理解される。また(2)式から相関事象のデータには、複数の時間間隔を有する相関事象のパルスデータ(ミリ秒に対するマイクロ秒)が含まれている可能性があることがわかる。その場合、 dt 幅を変化させ異なる λ を持つ相関事象を浮かび上がらせることにより測定することができる。例えば、2つの相関事象が含まれている場合、 $(\lambda_1 > \lambda_2)$ 、 dt 幅を小さくすることで相対的に半減期の長い相関事象 λ_2 はランダム事象との区別がつかなくなる。さらに dt 幅に伴ってバックグラウンドが低下することから、その結果、相対的に半減期の短い相関事象 λ_1 がクローズアップされることになる。

III. 複数高速パルス時間間隔解析およびリアルタイム表示システムの特徴

マイクロ秒オーダの連続した高速入力パルスの時間間隔を測定でき、かつ時間間隔解析結果をリアルタイムで

Table 1 Specifications of original 32 bit PCI board (ZN-HTS2) with $1 \mu\text{s}$ resolution

Applied voltage (ZN-HTS)	5 V
Logic input ^{a)} (74LS14)	TTL (5 V)
Pulse minimum width	125 ns
Time resolution ^{a)}	$1 \mu\text{s}$
Continuous pulse input induced-error ^{a)} (125 ns ~ $1 \mu\text{s}$)	$1 \mu\text{s}$
Frequency stability of quartz oscillator	$\pm 100 \text{ ppm}$

^{a)} Channel A, B, C

CRT 上に表示可能なハードウェアとソフトウェアを独自に開発した。それぞれの特徴を次に示す。

1. 高速パルス測定ボード (ZN-HTS2)

最大3チャンネルからの異なるパルス時間間隔測定に対応しつつ、マイクロ秒オーダの連続パルスを識別するために、ゼットコスモス社製のオリジナルカスタム IC 使用の高速パルス測定ボード (ZN-HTS2) を搭載したハードウェアを使用した。高速パルス測定ボードの定格と仕様、ならびに入力部ハードウェア概略をそれぞれ Table 1 と Fig. 4 に示す。

3チャンネルからの入力パルスは、タイミングコントロール IC (HTS-A) とカウンタ IC (HTS-B) を組み込んだ 32 bit の非同期 PCI Bus を採用したカスタム IC に入力される。ここではデータ転送速度の観点から従来の ISA Bus ではなく、32 bit の非同期 PCI Bus を採用することとした。そのうち 28 bit をカウンタ IC からの入力パルスの時間データ(時間の桁上がり等の問題も考慮されている)、カウンタオーバーフローに 1 bit、残りの 3 bit をチャンネルデータとした 32 bit のデータが FIFO (First-In First-Out) RAM に最大 $1 \mu\text{s}$ ごとに書き込まれる。これらのデータは順次、DMA で CPU 側の Main RAM の 1 次バッファ (32MB, 800 万個のデータ保存が可能) に転送される。そこから Main RAM にデータを転送するソフトと MTA 法による時間間隔解析を行うソフトを同時に動かすことで MTA スペクトルがリアルタイムで表示できるようになっている。このシステムでは、1 回の測定で最大 5,000 万個分のデータ保存 (約 200 MB, Main RAM) が可能となっている。また TTL レベルの入力パルスであれば、放射線測定器のみならずいかなる測定器からの信号でも時間間隔測定が適用可能である。

本システムは、3チャンネルにパルスがそれぞれ $1 \mu\text{s}$ の速度間隔で入力されてもタイミングコントロール IC によって最大 $1 \mu\text{s}$ ごとにまとめてデータを読み取るように設計されている。そのため、パルス発生器を用いてそれぞれのチャンネルに様々な速さのパルスを入力した結果、 $1.6 \times 10^5 \text{ cps}$ までは数え落としなしに MTA スペクトルのリアルタイム表示が可能であった。また、 $1 \mu\text{s}$ よりも長いパルス間隔であればデータは記憶されており、測定後に

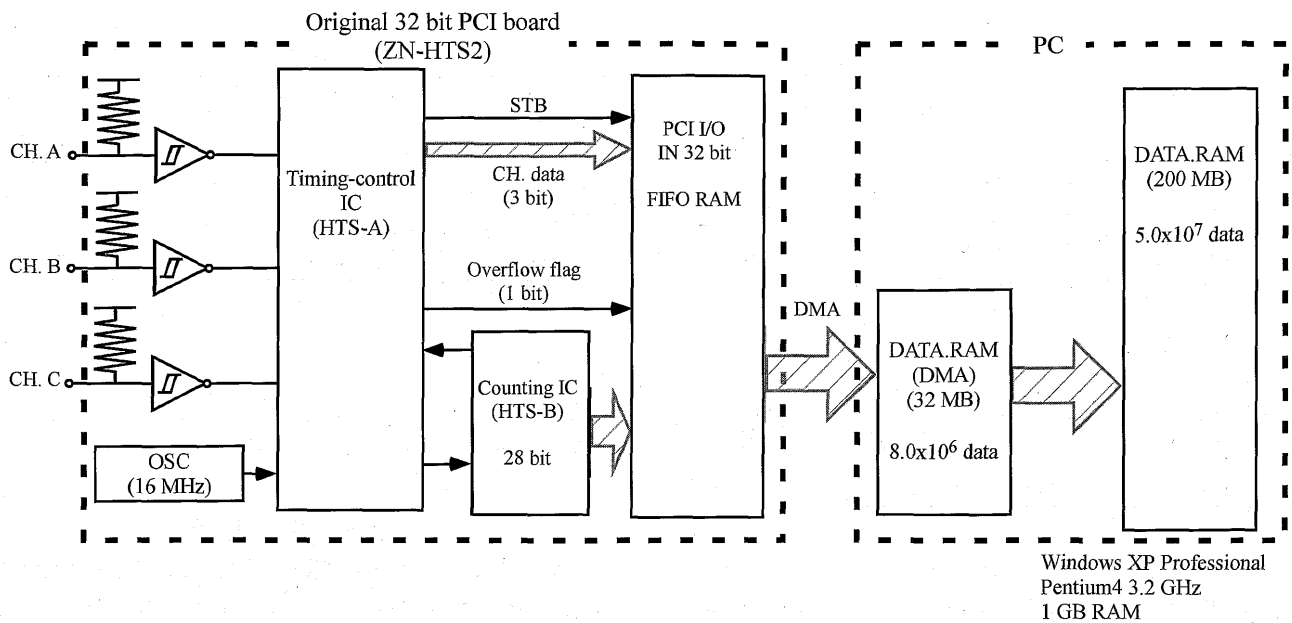
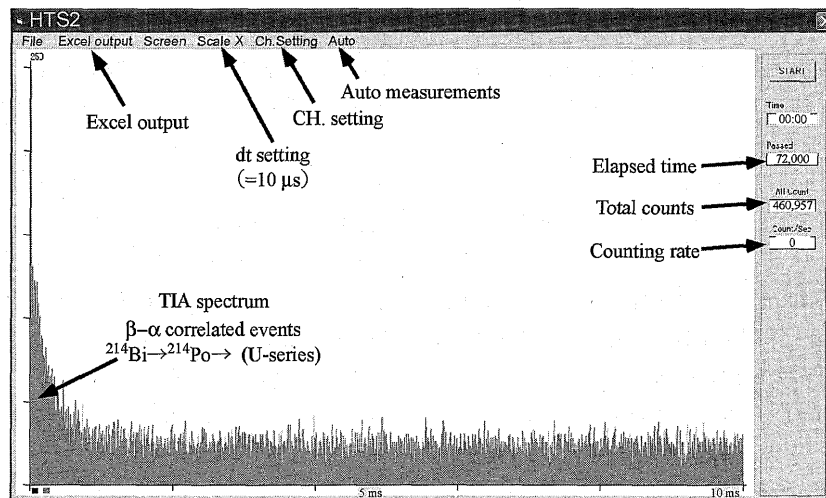


Fig. 4 Conceptual view of high-speed multiple pulse time data processing and real-time display system

Three input channels can provide simultaneously three different pulses and every data will be changed into pulse occurring times. All channel and pulse time data were transferred to FIFO RAM at $1 \mu\text{s}$ rate, followed to transfer into temporary CPU RAM (32 MB) by DMA. Two process, data registration (into main RAM (200 MB)) and calculation of pulse time intervals along with real-time TIA-distribution display simultaneously processed using two softwares.



Measuring time : 72000 s
 Input pulses : $\alpha/\beta(\gamma)$ from LSC
 dt : 10 μs

Fig. 5 Typical MTA distribution in real-time display on CRT using original software (HTS2)

The specifications of this software are as follows: (1) MTA distributions in real-time display from each three channel input, (2) the dt width (1, 10, 100 μs , 1, 5, 10 ms) and displayed channel can be varied for aimed correlated decay events, (3) total pulse counts and counting rates in real-time display, (4) auto measurements and data save, and (5) data output (MTA distribution and input pulse time data are outputted as Excel and text format, respectively)

MTA 解析を行うことも可能である。

2. 高速パルス間隔測定ソフトウェア (HTS2)

後に述べる天然試料中の Ra を抽出した試料からの $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスの時間間隔データを独自に開発したソフト

ウェア (HTS2) を用いて解析を行い, MTA スペクトルを CRT 上にリアルタイム表示した例を Fig. 5 に示す。このソフトウェアの特徴は以下のとおりである。

(1) すべてのチャンネルデータで MTA スペクトルのリアルタイム表示, (2) 2 チャンネル間の相関時間間隔解析

(一方のチャンネルからのパルスをゼロトリガとして、他方のチャンネルデータの時間間隔解析、両方のチャンネルからのパルスデータを1つのデータ列とみなして時間間隔解析)のリアルタイム表示、(3) dt 幅を 1, 10, 100 μ s, 1, 5, 10 ms に設定でき、リアルタイム表示中に変更した場合でも再計算結果が表示可能、(4)チャンネル、 dt 幅を変更することで任意の相関事象が測定可能、(6)全パルスデータに対する全計数値、計数率の表示、(7)自動測定(測定開始時間、測定時間、測定回数、測定間のインターバル時間の設定が任意で可能、測定結果の自動保存)、(8)時間間隔解析グラフ、任意の時間の時系列データをそれぞれ Excel 形式、テキスト形式で出力可能、(9)一度保存したデータは、測定後も解析可能。

IV. 実験

ウラン系列の ^{226}Ra をピッチブレンド溶液から抽出するために、クラウンエーテルを抽出剤とする RADEX 抽出

シンチレータを用いて Ra を単離した。化学分析のフローを Fig. 6 に示す。PERALS からの $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスと PSD 回路により α 線のみを弁別したパルスを本システムのチャンネル A, B にそれぞれ入力した。記録されたパルス入力時間データは HTS2 にて解析され、MTA スペクトルをリアルタイムで作成した。このように得られた結果とカウンタタイマーボードをインターフェースとして使用した前回の測定結果⁹⁾と比較検討した。

V. 結果および考察

開発したシステムとソフトウェアを用いて LSC からの $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルス(チャンネル A)を MTA 法で解析した。 dt 幅を 1 μ s から 1 ms へと変化させた際の MTA スペクトル変化を Fig. 7(a)~(d)に示す。この図から dt 幅をマイクロ秒(1, 10, 100 μ s)に設定することで Fig. 7(a)~(c)に示すように、時間分布スペクトルの短時間間隔部分にウラン系列のマイクロ秒オーダーの β - α 相関事象($^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$)

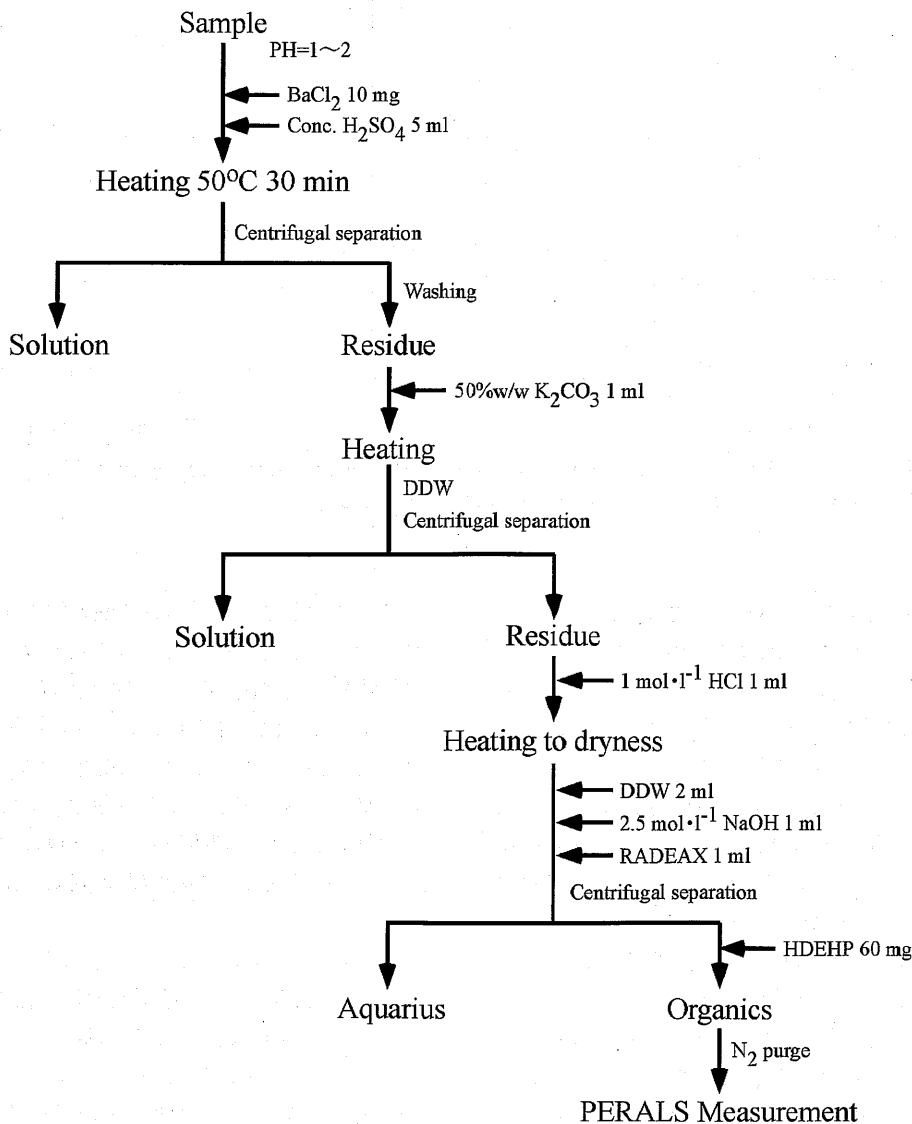


Fig. 6 Chemical Ra extraction procedure from natural samples

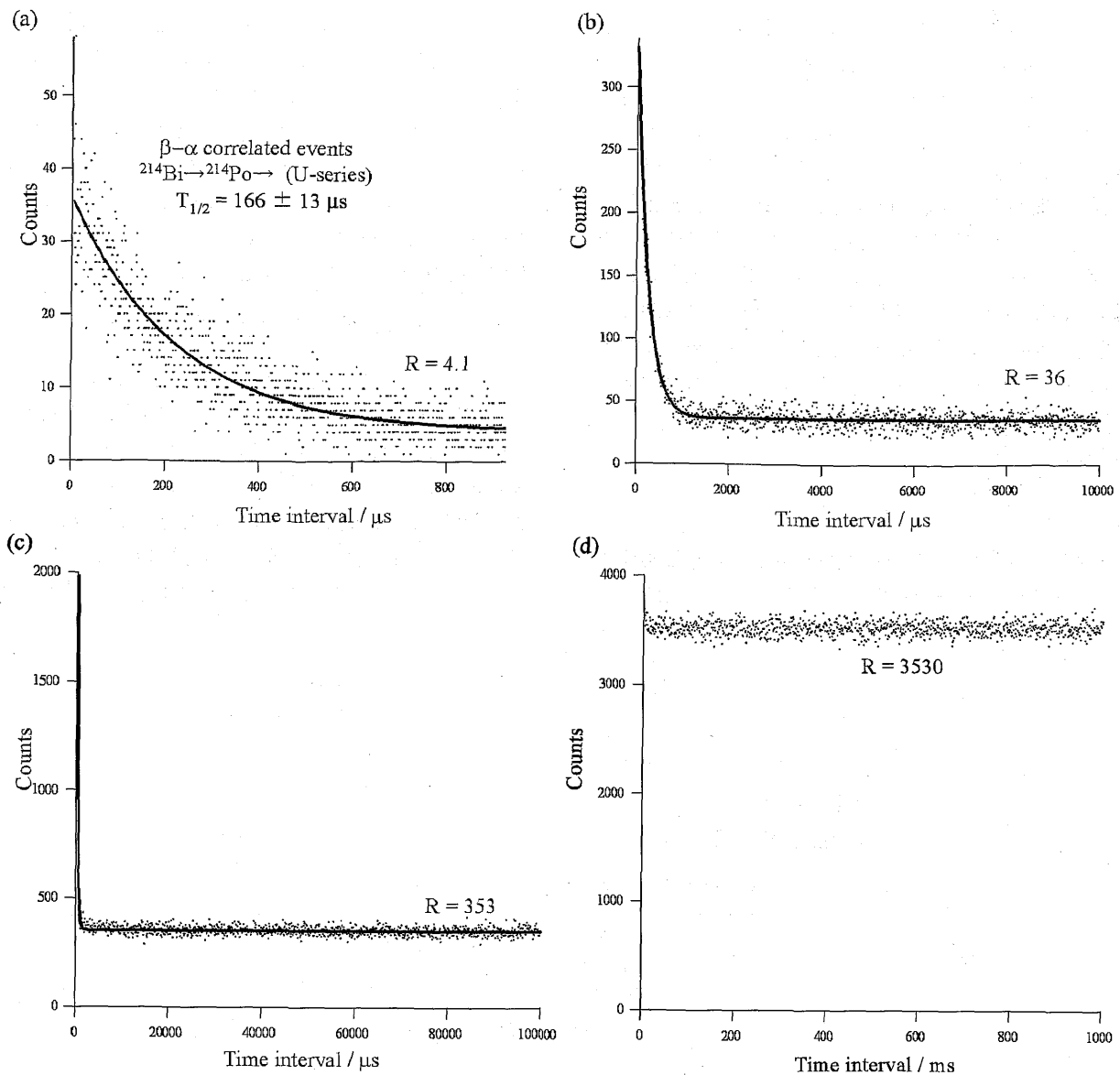


Fig. 7 Changes of MTA distributions from a radium fraction extracted from natural sample by applying different time intervals (dt)
 The dt width are applied to be (a) $1 \mu\text{s}$, (b) $10 \mu\text{s}$, (c) $100 \mu\text{s}$, (d) 1ms

(半減期 $164 \mu\text{s}$) \rightarrow)を観測でき、 dt 幅に比例したカウントを示す長時間間隔部分のランダム事象が引き続きスペクトルとなっている。Excel形式で出力したデータを基にフィッティングから β - α 相関事象成分の半減期は $166 \pm 13 \mu\text{s}$ と見積もられ、 ^{214}Po の理論半減期とよい一致を示した。また(3)式で示したように、 dt 幅に検出されるランダムパルスが減少するため、 dt 幅が小さくなるにつれてバックグラウンドの減少が観測される。その結果、相関事象率(相関事象数/バックグラウンド)が増加することでマイクロ秒オーダの β - α 相関事象が顕著に観測することができることを確認できた(Fig. 7(a))。つまり、 λ_i に対して dt 幅を大きく設定するほど相関事象率が低下するためマイクロ秒オーダの相関事象の測定に適していないことがわかった。特に dt 幅が $100 \mu\text{s}$ の場合、 ^{214}Po の半減期に対して大きな値のため(2)式の近似が成り立たなくなることに

いての注意も必要となる。今回の結果からサブミリ秒オーダの時間分解能を有したシステムでは、マイクロ秒オーダの相関事象を検出することができず、そのような相関事象を検出するにはマイクロ秒オーダの時間分解能を必要とすることがわかった。これらの結果より、開発できたシステムとソフトウェアはマイクロ秒オーダの時間分解能を有しており、ウラン系列核種のマイクロ秒オーダの時間間隔を有する β - α 相関事象の測定も正確に行えることを確認できた。

また dt 幅を $100 \mu\text{s}$ に設定し、測定したFig. 7(c)のグラフについて相関事象付近を拡大した結果をFig. 8(a)に示す。チャンネルAには $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスが入力されているため、 α - α 相関事象と β - α 相関事象の両方が観測できる。そのため、ミリ秒オーダのアクチニウム系列核種の α - α 相関事象($^{219}\text{Rn} \rightarrow ^{215}\text{Po}$ (半減期 1.78ms) \rightarrow)がウラン系

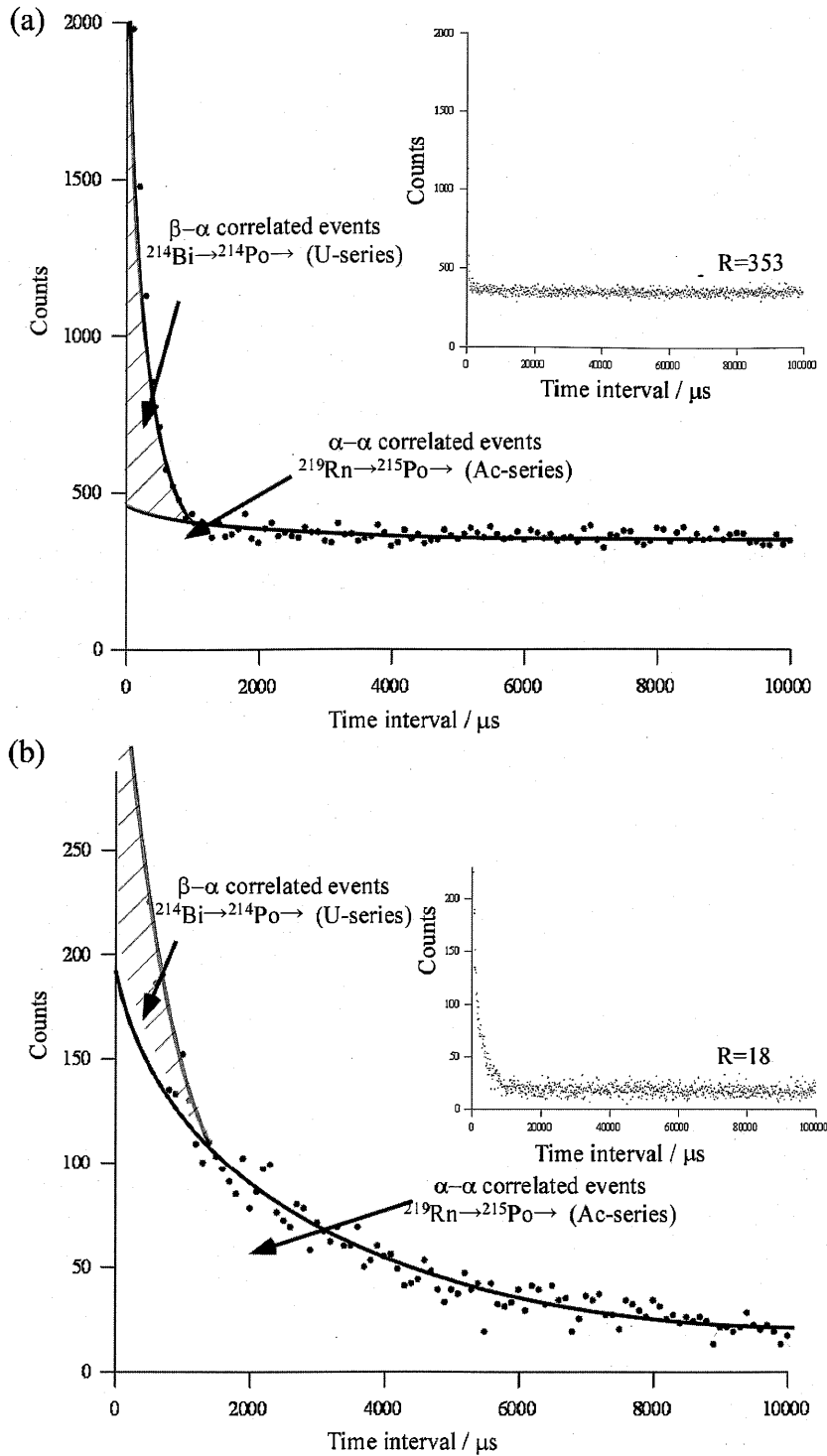


Fig. 8 Pulse time interval distribution curves by applying MTA

These spectra were obtained from a new system combined with liquid scintillation counting (LSC) apparatus, fed to (a) $\alpha/\beta(\gamma)$ mixed pulses and (b) α pulses after pulse-shape discrimination (PSD) process

列の β - α 相関事象 (Fig. 8 の斜線部分) の下に存在していることが確認できる。しかしながらアクチニウム系列の α - α 相関事象は、 β 線によるバックグラウンドが大きいため明確な相関事象として観測できなかった。一方、 α 線のみのパルスを入力させたチャンネル B を用いると、Fig. 8 (b) に示すように、ランダム事象となる $\beta(\gamma)$ パルスの大部分

が PSD 回路により除外されているため、バックグラウンドが約 1/20 にまで減少しており、アクチニウム系列のミリ秒オーダーの α - α 相関事象を明確に確認できた。ここで、 α - α 相関事象の上にウラン系列の β - α 相関事象が存在するのは、LSC の PSD 回路で β パルスを完全に除去できなかったためである。本システムの複数入力チャンネルを用い、

$\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスと α パルスを同時に別々のチャンネルに入力することで2つの異なる系列核種を同時に測定できることを確認した。

この結果を基に LSC の検出効率がほぼ100%であると仮定することで、今回の MTA スペクトルから ^{223}Ra (Ac 系列) と ^{226}Ra (U 系列) の放射能強度比 ($^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$) を見積もると 5.6×10^{-2} であった。最初の親核種である ^{235}U と ^{238}U との間にそれぞれ放射平衡が成り立っている場合、その放射能比は 4.6×10^{-2} であることから、今回用いたピッチブレンド試料溶液では、放射平衡がほぼ成り立っていることも確認できた。

VI. まとめ

マイクロ秒の時間分解能を有した高速時間測定ボード (ZN-HTS2) を使用した複数パルス入力を備えた高速パルス間隔データ処理測定およびリアルタイム表示システムを構築することができた。このシステムを用いることで、ウラン系列のマイクロ秒オーダーの β - α 相関事象を初めて観測するとともにリアルタイム表示することができた。これによりミリ秒からマイクロ秒オーダーのすべての天然に存在する壊変系列核種の相関事象をリアルタイムで測定することが可能となった。さらに $\alpha/\beta(\gamma)$ 混合パルスと α パルスを別々のチャンネルに入力することで、 β - α と α - α 相関事象のそれぞれを分離でき、かつオンラインで観測・表示することができた。

本システムと TIA 測定法を適用することにより、化学分離なしでの天然 α 放射性核種の系列別測定はもとより、原子力関連施設や核燃料サイクル施設などでのオンラインモニタリングへの使用の可能性も示唆された。例えば、排気設備や放射線管理現場での α , β 放射性核種の異常値の把握のみならず、天然の壊変系列核種のバックグラウンド観測に基づいた予期しない放出人工放射性核種の迅速同定などへの応用も期待できる。

MTA 理論式に対する有益なコメントを新潟大学博士研究員竹内昭洋氏に頂いたことをここに記しお礼申し上げます。本研究の研究費の一部は、新潟大学大学院自然科学研

究科・日本学術振興会特別研究員 DC 八幡 崇の日本学術振興会の科学研究費補助金 (特別研究員奨励費 No. 17-902) と新潟大学理学部化学科・教授橋本哲夫の基盤研究 C (No. 17500691) の助成によりました。この論文の一部は日本原子力学会「2006年春の大会」で発表いたしました。記して関係者に感謝いたします。

—参考文献—

- 1) W. J. McDowell, "Photon/electron-rejecting alpha liquid scintillation (PERALS) spectrometry: a review," *Radioact. Radiochem.*, **3**, 25-52 (1992).
- 2) T. Hashimoto, K. Sato, Y. Yoneyama, N. Fukuyama, "Simultaneous determination of environmental α -nuclides using liquid scintillation counting combined with time interval analysis (TIA) and pulse shape discrimination (PSD)," *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.*, **222**, 109-116 (1997).
- 3) T. Hashimoto, Y. Yoneyama, K. Sato, Y. Komatsu, "Pulse time interval analysis (TIA) combined with liquid scintillation counting for the determination of environmental α -nuclides-preparation and utilization of ^{225}Ra as a yield tracer," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **239**, 619-629 (1999).
- 4) T. Hashimoto, Y. Komatsu, D. G. Hong, Y. Uezu, "Determination of radionuclides in small pieces of archaeological sample and its application to TL-dating," *Radiat. Meas.*, **33**, 95-101 (2001).
- 5) T. Hashimoto, Y. Uezu, F. Ishizuka, H. Washio, "Detection sensitivity of time interval analysis for the determination of α -radionuclide with millisecond order lifetime," *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.*, **173**, 87-97 (1993).
- 6) T. Hashimoto, M. Noguchi, H. Washio, Y. Yoneyama, Y. Uezu, "Principle of single and multiple time interval analysis applicable to radioactive nuclides with half-lives of millisecond order," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **159**, 375-387 (1992).
- 7) 植頭康裕, 橋本哲夫, "時間間隔解析技術を用いた短寿命核種の定量," *Radioisotopes*, **51**, 229-236 (2002).
- 8) G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons, New York, 114-117 (1979).
- 9) T. Hashimoto, Y. Sanada, Y. Uezu, "Simultaneous determination of radionuclides separable into natural decay series by use of time-interval analysis," *Anal. Bioanal. Chem.*, **379**, 227-233 (2004).